

Н. Б Л О М Б Е Р Г Е Н

NONLINEAR OPTICS

A LECTURE NOTE

N. BLOEMBERGEN

*Harvard University*

W. A. Benjamin, Inc.  
New York — Amsterdam

1965

*Нелинейная оптика*

ПЕРЕВОД С АНГЛИЙСКОГО

ПОД РЕДАКЦИЕЙ

С. А. АХМАНОВА и Р. В. ХОХЛОВА

*Издательство «Мир»*

*Москва 1966*

Нелинейная оптика — одна из наиболее интересных новых областей физики. Особое значение она приобрела после изобретения оптических квантовых генераторов — лазеров. В интенсивных полях современных лазеров возникают новые явления, а хорошо известные оптические явления приобретают новые черты. Все эти новые эффекты объединяет нелинейная зависимость их протекания от интенсивности света.

Нелинейной оптикой активно занимаются исследователи многих стран. Уже первые результаты имеют большую научную и практическую ценность. Именно средствами нелинейной оптики удалось, например, создать мощные генераторы ультрафиолетового излучения и совершенно новые для оптики — перестраиваемые генераторы когерентного оптического излучения.

Предлагаемая книга — первая книга по нелинейной оптике, опубликованная в США, — написана крупным американским физиком Н. Бломбергом, широко известным своими работами по квантовой электронике и нелинейной оптике. Ее характеризует высокий научный уровень и широкий охват современных проблем.

Во вступительной статье редакторов перевода кратко освещено современное состояние нелинейной оптики и дан критический обзор содержания книги.

Книга будет полезна как специалистам — физикам, так и лицам, приступающим к изучению нелинейной оптики: инженерам по квантовой электронике, физикам смежных с оптикой специальностей, аспирантам и студентам старших курсов.

Редакция литературы по физике

## ВСТУПИТЕЛЬНАЯ СТАТЬЯ

### I

Термин *нелинейная оптика* прочно вошел в научную литературу в последние 3—4 года, прошедшие после создания лазеров; *нелинейными оптическими эффектами* называют эффекты, характер протекания которых зависит от интенсивности излучения.

Хорошо известно, что материальные уравнения линейной электродинамики, которая описывает гармонические волны, распространяющиеся в среде без искажений, и где имеет место принцип суперпозиции, являются приближенными. Так, линейное соотношение между поляризацией и напряженностью электрического поля  $\mathbf{P} = \kappa \mathbf{E}$  получается при простейшем классическом расчете на основе идеализированной модели гармонического осциллятора; при более общем квантовом рассмотрении линейная связь между поляризацией и полем соответствует первому приближению теории возмущений. Степень пригодности указанных приближений зависит в первую очередь от соотношения между амплитудой поля световой волны и характерным внутренним полем  $E_0$ , определяющим силы связи, действующие на оптический электрон в среде. Поле  $E_0$  связано с потенциалом ионизации  $I$  и характерным расстоянием  $a$  (на котором поле обеспечивает связь) соотношением  $eE_0 a = I$ . Для атома водорода это поле  $E_0 = 5 \cdot 10^9$  в/см. Для конденсированных сред величина  $E_0$  меньше, и, в частности, для полупроводников с относительно небольшой шириной запрещенной зоны  $E_0 \approx 10^7$  в/см; сравнимую с последней величиной напряженность поля нетрудно получить при фокусировке пучка современного мощного лазера. Поэтому для описания оптических эффектов в таких полях линейное материальное уравнение должно быть заменено

но уравнением более сложного вида  $\mathbf{P} = \mathbf{P}(\mathbf{E})$ , где  $\mathbf{P}(\mathbf{E})$  в общем случае — функционал. Однако во всяком случае для описания оптических явлений в нерезонансных условиях можно использовать разложение поляризации в ряд по параметру  $E/E_0 < 1$ :

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL}, \quad (1)$$

где (с учетом запаздывания)

$$\mathbf{P}^L = \int_0^\infty \chi(t') \mathbf{E}(t-t') dt', \quad (2a)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{NL} = & \int_0^\infty dt' \int_0^\infty \chi(t', t'') \mathbf{E}(t-t') \mathbf{E}(t-t'-t'') dt'' + \\ & + \int_0^\infty dt' \int_0^\infty dt'' \int_0^\infty \chi(t', t'', t''') \mathbf{E}(t-t') \mathbf{E}(t-t'-t'') \times \\ & \times \mathbf{E}(t-t'-t''-t''') dt''' + \dots \end{aligned} \quad (2b)$$

Выражение (2б) является естественным обобщением хорошо известного соотношения (2а) на нелинейный случай. Применяя к (2б) преобразование Фурье и переходя к записи по компонентам, имеем

$$\begin{aligned} P_i^{NL}(\omega_p) = & \chi_{ijk}(\omega_p, \omega_q, \omega_r) E_j(\omega_q) E_k(\omega_r) + \\ & + \chi_{ijkl}(\omega_p, \omega_q, \omega_r, \omega_s) E_j(\omega_q) E_k(\omega_r) E_l(\omega_s) + \dots \end{aligned} \quad (2в)$$

Спектральная компонента поляризации на частоте  $\omega_p$  образуется за счет комбинации двух полей при учете младшего нелинейного члена в разложении  $\mathbf{P} = \mathbf{P}(\mathbf{E})$  или трех и более полей при учете членов более высокого порядка (в зависимости от соотношения между частотами (2в) содержат либо сами поля  $\mathbf{E}$ , либо комплексно сопряженные величины). Нелинейные восприимчивости различных порядков  $\chi_{ijk}$ ,  $\chi_{ijkl}$  и т. п., как и линейная восприимчивость  $\chi$ , определяются физическими свойствами материальной среды и содержат, вообще говоря, более полную информацию об электронных энергетических уровнях, нежели  $\chi$ .

Следует иметь в виду, однако, что нелинейные эффекты при распространении световых волн в материальной среде могут быть связаны не только с особенностями

поведения оптических электронов в сильном поле световой волны, но также и с взаимодействием света с другими движениями среды: акустическими и оптическими фононами, спиновыми волнами, плазменными колебаниями и т. п.

Чтобы убедиться в этом, обратимся, например, к задаче о распространении интенсивной гармонической световой волны в жидкости. Помимо нелинейных эффектов, связанных с поведением оптических электронов отдельных молекул в сильном световом поле (назовем их, для краткости, фотон-фотонными взаимодействиями), могут возникать также нелинейные эффекты, связанные с механическим воздействием поля на среду. Хорошо известно, в частности, что в электромагнитной волне возникают электрострикционные эффекты; соответствующее давление равно

$$p = \frac{E^2}{8\pi} \rho \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \quad (3)$$

(здесь  $\rho$  — плотность и  $\epsilon$  — диэлектрическая проницаемость). В монохроматической волне  $E \sim \exp i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  электрострикция приводит, в частности, к появлению статического давления, пропорционального интенсивности поля, а следовательно, от интенсивности зависит и показатель преломления

$$n = n_0 + n_2 E^2 + \dots \quad (4)$$

В силу (4) возникает «самовоздействие» волны, достаточно заметное при потоках мощности  $\sim 10^8$ — $10^9$  вт/см<sup>2</sup>. В некоторых жидкостях, например сероуглероде,  $n_2$  достигает значений  $\sim 10^{-12}$  ед. CGSE и учет нелинейной добавки к показателю преломления становится существенным при полях, достижимых с помощью мощных лазеров. В бигармоническом световом поле

$$\mathbf{E} = \mathbf{A}_1 e^{i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \mathbf{A}_2 e^{i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})}$$

будет возникать давление на комбинационных частотах и, следовательно, такое поле будет генерировать, в частности, акустическую волну на частоте  $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ . Последняя в свою очередь модулирует диэлектрическую проницаемость среды и оказывает обратное воздействие

на электромагнитное поле, т. е. и здесь поведение световой волны начинает зависеть от ее интенсивности. Процессы указанного типа, при которых само поле световой волны возбуждает движения, приводящие к его рассеянию (фотон-фононные, фотон-магнонные, фотон-плазмонные и т. п.), получили название вынужденного рассеяния. Хотя в принципе и для их описания удается вводить нелинейные восприимчивости типа восприимчивостей, определенных в (2), важно иметь в виду их физическое отличие от процессов, в которых участвуют только электромагнитные волны. [Нетрудно видеть, в частности из (3), что вынужденное рассеяние на акустических фононах, как, впрочем, и самовоздействие световой волны, связанное с электрострикцией, может быть описано членом, кубичным по полю в формуле (26)]. Таким образом, физические причины, приводящие к появлению нелинейных оптических эффектов, достаточно многообразны.

Классификацию различных нелинейных оптических эффектов можно дать, рассматривая усредненную по времени свободную энергию  $\bar{F}$  элемента объема среды. В соответствии с вышесказанным при рассмотрении энергетических соотношений будем учитывать не только световые волны в среде (их напряженности обозначим через  $E$  и  $H$ ), но и низкочастотные электромагнитные поля  $E_0$ ,  $H_0$  (включающие как частный случай статическое поле), акустические  $A_{аф}$  и оптические  $A_{оф}$  фононы. Тогда в усредненную свободную энергию входят члены, квадратичные по однородным переменным (оптическую активность и линейный пьезоэффект мы здесь рассматривать не будем), и члены более высокого порядка, содержащие как однородные переменные, так и перекрестные члены. Считая все поля близкими к монохроматическим, выражение для свободной энергии можно представить в виде

$$\begin{aligned} \bar{F} = & \chi_1^{(2)} E E^* + \chi_2^{(2)} E_0 E_0^* + \chi_3^{(2)} A_{аф} A_{аф}^* + \dots \\ & + \chi_1^{(3)} E E E^* + \chi_2^{(3)} A_{аф} A_{аф} A_{аф}^* + \chi_3^{(3)} E E^* A_{аф} + \\ & + \chi_4^{(3)} E E^* A_{оф} + \chi_5^{(3)} E E^* H_0 + \chi_6^{(3)} E E^* E_0 + \dots \\ & + \chi_1^{(4)} E E E E^* + \chi_2^{(4)} E E E^* A_{оф} + \dots \end{aligned} \quad (5)$$

В выражении (5) записаны, разумеется, не все члены даже в рассматриваемых порядках; кроме того, наряду с фигурирующими в (5) членами должны быть включены и их комплексно сопряженные. Напомним также, что частоты различных сомножителей членов, входящих в (5), должны быть подобраны таким образом, чтобы «быстрая» зависимость слагаемых от времени отсутствовала. Коэффициенты в (5) являются, вообще говоря, тензорами, порядок которых указан в верхнем индексе. Поскольку поляризация, намагниченность, механические силы получаются из (5) путем дифференцирования по соответствующим переменным ( $P \rightarrow \partial \bar{F} / \partial E^*$ ;  $M \rightarrow \partial \bar{F} / \partial H^*$ ;  $f \rightarrow \partial \bar{F} / \partial A_{аф}^*$  и т. п.), нетрудно видеть, что нелинейные оптические эффекты могут быть связаны только с кубичными членами и членами более высокого порядка в (5). Действительно, первые два члена в нелинейной поляризации (2в) определяются членами при  $\chi_1^{(3)}$  и  $\chi_1^{(4)}$  в (5); процесс возбуждения акустических фононов световыми волнами [ср. (3)] описывается членом при  $\chi_3^{(3)}$  и т. п. В линейном же приближении (описываемом квадратичными членами в выражении для свободной энергии) ни волны одинаковой природы, ни волны разной природы не взаимодействуют.

Не следует думать, что экспериментальное наблюдение взаимодействий, связанных с кубичными членами и членами более высокого порядка в (5), дело лишь последних лет. Часть указанных членов соответствует эффектам, экспериментальное изучение которых было начато еще в прошлом веке. Действительно, член с  $\chi_6^{(3)}$  после дифференцирования по  $E^*$  дает  $P = \chi_6^{(3)} E E_0$  — поляризацию, пропорциональную напряженности статического электрического поля — хорошо известный линейный электрооптический эффект, или эффект Погкельса.

Аналогичный член при  $\chi_5^{(4)}$  описывает квадратичный эффект Керра; член при  $\chi_3^{(3)}$  дает поляризацию  $P = \chi_3^{(3)} E H_0$  и описывает вращение плоскости поляризации в магнитном поле, т. е. эффект Фарадея. Наконец, члены с  $\chi_3^{(3)}$  и  $\chi_4^{(3)}$  наряду с возбуждением фононов световыми волнами описывают и рассеяние света на аку-

стических и оптических фонах ( $P = \chi_{3,4}^{(3)} EA_\phi$ ), т. е. хорошо изученные в 20-х и 30-х годах эффекты обычного (или, как теперь принято говорить, спонтанного) релеевского и комбинационного рассеяния первого порядка.

Перечисленные только что эффекты не относятся к нелинейной оптике в смысле данного выше определения; они имеют место и в весьма слабых световых полях, где их протекание не зависит от интенсивности света. Их можно назвать *параметрическими оптическими эффектами*, т. е. эффектами, протекающими в средах, параметры которых заданным образом меняются с помощью внешних сил. Вместе с тем то обстоятельство, что параметрические эффекты определяются теми же физическими свойствами среды, как и оптические эффекты, зависящие от интенсивности световой волны, и, следовательно, всегда проявляются как обратное воздействие среды на поле, методическая общность в теоретическом рассмотрении задач о воздействии поля на среду и среды с переменными параметрами на поле делает целесообразным включение «параметрической оптики» в качестве одного из разделов в нелинейную оптику, рассматриваемую в более широком смысле<sup>1</sup>). При таком более общем подходе к разряду нелинейных оптических явлений следует отнести вообще все явления, описываемые кубичными членами и членами более высокого порядка в (5), содержащими световые поля, т. е. все взаимодействия электромагнитных волн между собой и с волнами иной природы. С таким широким определением понятия нелинейной оптики приходится часто сталкиваться в литературе.

Период наиболее интенсивного развития параметрической оптики относится к 20-м и 30-м годам; именно в это время были проведены весьма важные исследования спонтанного комбинационного рассеяния и спонтанного релеевского рассеяния; обстоятельное изложе-

<sup>1</sup> Дополнительным аргументом к этому может служить и то обстоятельство, что иногда параметры среды для слабой световой волны изменяются с помощью интенсивной световой волны; этот случай в равной мере относится и к параметрической оптике и к нелинейной оптике, понимаемой в узком смысле.

ние результатов, достигнутых параметрической оптикой до изобретения лазеров, можно найти в многочисленных обзорах и монографиях (см., например, [1—3]). Следует отметить, что весьма четкая трактовка явления спонтанного комбинационного рассеяния, базирующаяся на общем «колебательном» подходе, была дана Л. И. Мандельштамом [4], указавшим, что это явление можно трактовать как модуляцию световой волны, т. е. как параметрический процесс.

Важную главу параметрической оптики составляют классические работы по дифракции света на ультразвуке; их обзор и библиографию можно найти, например, в книге Борна и Вольфа [5]. В достаточно общей форме вопросы, связанные с распространением электромагнитных волн в средах с переменными параметрами, рассматривались Бриллюэном (см. [6]); этому же вопросу посвящена монография Рытова [7], опубликованная в 1940 г. Наконец, в сравнительно недавнее время вопросы параметрической оптики рассматривались в обзоре Слэтера [8].

Основной причиной относительно медленного развития собственно нелинейной оптики до изобретения лазеров было отсутствие подходящих источников света. Вместе с тем и здесь еще в годы, предшествовавшие бурному развитию квантовой электроники, был выполнен ряд важных исследований. В первую очередь к ним относятся исследования С. И. Вавилова и его сотрудников, целеустремленно занимавшихся поисками нелинейных оптических эффектов. С. И. Вавиловым было отмечено, что минимальные световые поля, при которых могут наблюдаться нелинейные эффекты, соответствуют резонансным условиям; поэтому основное внимание было сосредоточено на наблюдении нелинейных эффектов вблизи линий поглощения. С. И. Вавилову и его сотрудникам принадлежат первые наблюдения эффекта «просветления» непрозрачной среды в поле интенсивной волны, эффекта, широко используемого теперь в лазерной технике. Чрезвычайно ясное и четкое рассмотрение причин появления оптических нелинейностей и качественной картины протекания нелинейных оптических эффектов содержится в монографии С. И. Вавилова «Микроструктура

света» [9]; там же им, по-видимому, впервые был введен и термин «нелинейная оптика».

Фактором, существенно стимулировавшим работы по нелинейной оптике еще на раннем этапе, было интенсивное развитие нелинейной радиофизики и в особенности ее теоретического раздела — нелинейной теории колебаний. Действительно, поскольку и радиофизика и оптика имеют дело с колебаниями и волнами одной природы, представляется вполне естественным перенесение идей и методов нелинейной теории колебаний на оптику. Именно под таким углом зрения обсуждались возможности постановки опытов по нелинейным взаимодействиям световых волн в серии работ Горелика [10—12], выполненных еще в 1947—1950 гг. Один из предлагавшихся опытов — весьма тонкий опыт по смешению оптического дублета (использовались зеemannовские компоненты зеленой линии ртути) на фотокатоде — был выполнен Форрестером и сотрудниками в 1955 г. [13]. Следует отметить, что, хотя с современными экспериментальными средствами опыты типа опыта Форрестера доступны любой физической лаборатории, результаты анализа влияния пространственной и временной когерентности пучков на оптическое смешение, проведенного в работах [10—13], представляют несомненный интерес и для современной нелинейной оптики.

Началом современного этапа развития нелинейной оптики с полным основанием можно считать опыты Франкена и сотрудников [14], впервые наблюдавших в середине 1961 г. генерацию второй гармоники рубинового лазера в оптически прозрачных кристаллах. Интересно, что уже в этом же году наблюдался и нелинейный оптический эффект более высокого порядка — самодействие световой волны, обусловленное двухфотонным поглощением (опыты Кайзера и Гарретта [15]). Эти работы вызвали бурный поток теоретических и экспериментальных исследований; успеху последних немало способствовал и одновременный прогресс лазерной техники, позволивший от мощностей  $1 \text{ квт/см}^2$ , использовавшихся в опытах Франкена и Гарретта, перейти к мощностям  $1000 \text{ Мвт/см}^2$  в нефокусированных пучках. Наряду с исследованием «фотон-фотонных» взаимодей-

ствий в различных средах, при различных геометриях опыта и т. п. уже в 1962 г. начались работы по исследованию взаимодействий других типов, описываемых перекрестными членами в (5).

Одним из первых был зарегистрирован эффект, обратный эффекту Поккельса — оптическое детектирование. В 1962 г. был обнаружен эффект генерации когерентных оптических фононов в поле интенсивной световой волны [16] — эффект, приводящий в комбинации с рассеянием света на этих фонах к так называемому вынужденному комбинационному рассеянию, а в 1963 г. — и эффект генерации акустических фононов и вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна (Таунс с сотрудниками [17]). Наконец, совсем недавно было экспериментально зарегистрировано вынужденное рассеяние в области крыла линии Релея [18]. Регистрация нелинейных оптических эффектов, связанных с членами в (5), содержащими магнитное поле, до последнего времени вызвала значительные трудности; однако в июне 1965 г. появилось сообщение [19] о наблюдении одного из таких эффектов — обратного эффекта Фарадея; последнее позволяет надеяться на успешное наблюдение вынужденного рассеяния на спиновых волнах. Таким образом, и в магнитооптике становится возможным наблюдение не только параметрических, но и нелинейных эффектов.

Хотя прогресс нелинейной оптики после изобретения лазеров связан в первую очередь с возможностью получения значительных напряженностей световых полей, следует иметь в виду и другое немаловажное обстоятельство. Нелинейные оптические эффекты являются, как правило, волновыми эффектами (протяженность нелинейной среды в опыте составляет  $10^3$ — $10^4$  длин волн); поэтому на протекание нелинейного эффекта существенно влияет временная и пространственная когерентность излучения. При высокой степени когерентности возможно накопление даже весьма слабых нелинейных оптических эффектов на больших расстояниях. Именно последним обстоятельством объясняется все возрастающая роль газовых лазеров в нелинейной оптике (см., например, [20, 21, 44]). Можно думать, что в бли-

жайшее время опыты с газовыми лазерами будут одним из интереснейших направлений в нелинейной оптике.

Результаты, полученные современной нелинейной оптикой, несколько схематично можно разбить на две группы. К первой из них следует отнести новые данные о микроскопических характеристиках вещества, полученные при изучении нелинейных оптических эффектов. Только с появлением лазеров удалось измерить спектральные компоненты тензоров  $\chi_1^{(3)}$ ,  $\chi_1^{(4)}$  на оптических частотах; знание последних, вообще говоря, дает информацию об электронных энергетических полосах, не содержащуюся в линейной восприимчивости. Новые возможности изучения энергетических уровней открывает многофотонное поглощение (при двухфотонных процессах в centrosymmetric средах возможны, в частности, переходы между уровнями с одинаковой четностью); соответствующую область спектроскопии называют многофотонной спектроскопией. Вместе с тем заметим, что эффекты вынужденного рассеяния определяются теми же спектральными компонентами тензоров  $\chi_3^{(3)}$ ,  $\chi_3^{(4)}$  и т. д., что и соответствующее спонтанное рассеяние, детально изученное в параметрической оптике. Однако в вынужденном рассеянии совершенно иной характер носит развитие волнового процесса в пространстве (имеет место экспоненциальное нарастание компонент рассеянного излучения). Наблюдение широкого класса новых волновых взаимодействий представляет собой вторую группу результатов нелинейной оптики. Последние тесно связаны с практическими приложениями нелинейной оптики. Уже сейчас нелинейная оптика располагает и значительным количеством практических достижений. К числу важнейших из них следует отнести следующие:

1. Создание мощных генераторов гармоник и комбинационных частот, перекрывающих (набором дискретных линий) диапазон длин волн от 0,2 до 1 мк. Значительные мощности этих генераторов, достигающие единиц и десятков мегаватт (см. [22, 23]), позволяют расширить и экспериментальные возможности самой нелинейной оптики (они открывают возможности наблюдения вынужденного рассеяния в резонансных условиях,

двухфотонного поглощения в диэлектриках, многофотонной ионизации газов и т. п.). Именно средствами нелинейной оптики, возможно, удастся получить когерентное излучение в области мягких рентгеновских лучей.

2. Создание параметрических усилителей и перестраиваемых параметрических генераторов света [24, 25]. Перспективы, открывающиеся в оптике в связи с созданием перестраиваемых генераторов света, трудно переоценить. Такие генераторы во многом расширяют возможности изучения вещества, воздействия на вещество, связи и т. п.

3. Ряд результатов, полученных нелинейной оптикой, имеет непосредственное отношение к развитию самой лазерной техники. В этой области следует отметить работы по модуляции добротности лазеров с помощью насыщающихся фильтров [26] и работы по двухфотонной накачке полупроводниковых лазеров, проведенные Басовым с сотрудниками [27]. Интересно, что многофотонное поглощение ограничивает, по-видимому, предельные мощности лазеров; на это обстоятельство обратили внимание Бункин и Прохоров [28]. С другой стороны, использование двухфотонных переходов в инвертированных системах, как впервые отметили Прохоров и Селиваненко [29], может привести, так же, как и указанный выше метод параметрической генерации, к созданию лазеров с перестраиваемой частотой. Заметим, что в этой области есть уже определенные практические успехи: недавно наблюдался двухквантовый переход в инвертированной системе, в котором участвовали фонон и фотон [30].

## II

Предлагаемая книга принадлежит перу крупного американского физика Бломбергера, хорошо известного своими работами в области магнитного резонанса и квантовой электроники. В области нелинейной оптики Бломбергера и его сотрудникам принадлежит серия весьма важных теоретических и экспериментальных работ (часть их включена в эту книгу в качестве прило-

жений). Здесь следует упомянуть прежде всего работы по теории нелинейной поляризации, в которых были установлены чрезвычайно существенные пространственно-частотные перестановочные соотношения для тензоров нелинейной восприимчивости, пионерские и в значительной мере исчерпывающие вопрос теоретические и экспериментальные работы, посвященные волновым явлениям на границе нелинейной среды, работы по теории нелинейных волновых процессов и теории вынужденного комбинационного рассеяния. Наиболее существенными результатами последних является детальное изучение поведения комбинационных восприимчивостей и условий нарастания антистоксовых компонент в вынужденном рассеянии. Наконец, должны быть отмечены работы Бломбергера и его сотрудников, посвященные исследованию влияния многомодовой структуры лазерной излучения на характер протекания процессов генерации оптических гармоник и вынужденного комбинационного рассеяния. Все это делает книгу Бломбергера, первую книгу по нелинейной оптике, изданную в США, особенно интересной для советского читателя; написанная на высоком научном уровне, она содержит изложение фундаментальных результатов, знакомство с которыми совершенно необходимо как для работающих в области нелинейной оптики, так и для приступающих к ее изучению.

Вместе с тем следует иметь в виду, что для нелинейной оптики, переживающей и по сей день период бурного экстенсивного и интенсивного развития, почти полтора года, прошедшие между написанием книги автором и завершением работы над русским переводом, являются большим сроком. Поэтому целесообразно дать краткий обзор содержания предлагаемой книги под углом зрения современных достижений нелинейной оптики. Цель этого обзора (как и первого раздела настоящей вводной статьи и многих подстрочных редакторских примечаний) заключается также и в том, чтобы по возможности облегчить изучение книги читателям, впервые знакомящимся с нелинейной оптикой (а такими читателями в силу современного интереса к лазерной технике и связанными с ней научными достижениями будут

и радиоинженеры, и физики, работающие в смежных областях, и студенты старших курсов).

Следует иметь в виду, что изучение материала книги может потребовать от читателя затраты некоторого труда, поскольку научный уровень книги достаточно высок, а изложение в ряде случаев носит конспективный характер. Определенные трудности могут возникать также в связи с тем, что в этой бурно развивающейся области физики еще не установилась стандартная терминология; кроме того, и автор не всегда был последователен в использовании применяемых в книге терминов; некоторые разъяснения на этот счет содержатся в редакторских примечаниях.

### III

При теоретическом рассмотрении все нелинейные оптические процессы естественным образом можно разделить на две группы. Характер протекания процессов первого типа существенно определяется фазовыми соотношениями между взаимодействующими электромагнитными полями, а следовательно, их описание невозможно в терминах населенностей, характеризующих заданными числами фотонов. К процессам этого типа относятся оптическое умножение и смешение частот, параметрическое усиление и преобразование и т. п. Для процессов второго типа, связанных с реальным изменением состояния материальной системы, фазовые соотношения между электромагнитными полями не играют такой определяющей роли; важными примерами последних являются стоксово комбинационное рассеяние и многофотонное поглощение.

Отмеченное разграничение нелинейных процессов последовательно проводится в предлагаемой книге; оно базируется на детальном исследовании поведения нелинейной восприимчивости среды, проведенном в приложении III (в конце книги). Процессы первого типа автор называет параметрическими, а второго — комбинационными, или многоквантовыми. Следует отметить, что такая терминология не всегда согласуется с терминологией, принятой в других работах (например, в [31] для обозначения указанных процессов используются термины



когерентный, некогерентный, представляющиеся, вообще говоря, более удачными); термин *параметрический* в отечественной литературе, а иногда и в работах самого автора (см., например, приложение I) понимается в более узком смысле, в котором он обычно используется в теории колебаний.

Гл. 1 является введением, призванным очертить круг рассматриваемых проблем и сообщить предварительные сведения об экспериментальных основаниях нелинейной оптики. Читателю, впервые знакомящемуся с этой областью, она может показаться чрезмерно конспективной; в связи с этим наряду с литературой, приводимой автором, можно рекомендовать обзоры [32, 33], а также книгу [34], предназначенную для менее подготовленных читателей.

Гл. 2 содержит сжатое, но вместе с тем разностороннее изложение квантовой теории нелинейной восприимчивости. Ее содержание сильно связано с содержанием приложения III. Основное внимание в гл. 2 уделено применению метода матрицы плотности для расчета нелинейных восприимчивостей. Для ознакомления с методом матрицы плотности под углом зрения задач, возникающих в нелинейной оптике, можно рекомендовать также книгу Файна и Ханина [35]. Заметим, кстати, что в ней детально разбираются и многие вопросы, являющиеся предметом гл. 2.

Микроскопическая теория нелинейной восприимчивости интенсивно развивается и в настоящее время. Из работ, опубликованных в этой области и не отраженных в книге, укажем на работу Л. В. Келдыша [36], посвященную теории многофотонной фотонионизации и многофотонного поглощения, работу Батчера [37], посвященную последовательному изложению теории нелинейной восприимчивости, обзор Овандера [38], посвященный микроскопической теории нелинейных оптических эффектов в кристаллах, и обзор Бонч-Бруевича и Ходового [33].

В настоящее время намечаются определенные успехи в теории нелинейной восприимчивости конденсированной среды, уже не ограничивающейся рассмотрением самых элементарных моделей. Заслуживает внимания

обсуждение вопроса о связи атомной и макроскопической нелинейных восприимчивостей, поскольку здесь, по видимому, удастся хотя бы грубо указать класс кристаллов, обладающих значительной нелинейной восприимчивостью [39].

Недавно Терхьюн и его сотрудники [40] наблюдали нелинейные оптические эффекты, связанные не с нелинейными свойствами среды как целого, а с нелинейными свойствами отдельных молекул—так называемое трехфотонное молекулярное рассеяние. Последнее открывает важные перспективы изучения микроструктуры оптических нелинейностей и, несомненно, явится фактором, стимулирующим дальнейшие теоретические исследования. Интересно, что измеренная в работе [40] нелинейная восприимчивость молекулы  $CCl_4$  соответствует восприимчивости типичных пьезоэлектрических кристаллов. Опыты такого рода могут способствовать выяснению вопроса о влиянии межмолекулярного взаимодействия на нелинейную восприимчивость.

Гл. 3 и 4 посвящены изложению основ теории волн в нелинейных диспергирующих средах и ее приложениям к различным задачам, возникающим в нелинейной оптике. Разумеется, число конкретных задач, решенных к настоящему времени, существенно превышает количество примеров, рассмотренных в книге. В частности, более подробно, чем в основном тексте и приложении I, исследована задача о генерации третьей гармоники, генерации суммарных и разностных частот, параметрическом усилении при высокочастотной и низкочастотной накачке и т. п.; соответствующие ссылки даны в списке дополнительной литературы. Здесь же нам представляется уместным обратить внимание на обстоятельства более принципиального порядка.

Отметим прежде всего, что переход от нелинейного волнового уравнения к приближенным уравнениям первого порядка (так называемым уравнениям связанных волн, или, как их еще называют, укороченным уравнениям) выполнен в гл. 4 даже для случая плоских немодулированных волн не в общем виде. Действительно, в книге всюду фигурируют уравнения для скалярных медленно меняющихся амплитуд, т. е. по существу предпо-

лагается, что поляризация взаимодействующих волн остается неизменной.

Более детальный анализ показывает, что это предположение обосновано для анизотропной среды (нормальные волны которой имеют определенные направления поляризаций), но для изотропной среды выполняется лишь в частных случаях, поскольку здесь поляризации нормальных волн произвольны. В общем же случае нелинейного взаимодействия в оптически изотропной среде (например, генерации второй гармоники в кристалле типа GaAs, вынужденном комбинационном рассеянии или вынужденном рассеянии Мандельштама — Бриллюэна в жидкостях) уравнения первого порядка являются векторными и описывают одновременно изменение амплитуд и поляризаций взаимодействующих волн. Более детально этот вопрос рассмотрен в работе [41]. Заметим, кстати, что в теории нелинейных волновых явлений в диспергирующих средах плодотворным оказывается использование идей, а в ряде случаев и конкретных методов нелинейной теории колебаний (например, при анализе системы уравнений для связанных волн полезным оказывается метод фазовой плоскости и т. п.). Эта сторона нелинейной оптики подробно обсуждается в работе [41]; там же можно найти и соответствующую библиографию.

Весьма существенным для современной нелинейной оптики является распространение теории взаимодействия и самовоздействия волн на реальные лучи, обладающие конечной шириной спектральной линии (модулированные, в частности импульсно-модулированные волны) и конечным поперечным сечением. Задачи такого типа вообще не рассматриваются в настоящей книге. Поэтому представляется целесообразным хотя бы кратко дать их конкретную формулировку. Это удобно сделать на примере стандартной задачи о генерации второй оптической гармоники, рассмотренной в гл. 4 и в приложении I для плоских немодулированных волн.

Если спектральная линия основного излучения имеет конечную ширину  $\Delta\omega$ , малую по сравнению со средней частотой  $\omega$ ,  $\Delta\omega/\omega \ll 1$ , для полей основного излучения и гармоники вместо формул (4.23) из гл. 4 следует

писать, очевидно,

$$\mathbf{E}_1(\omega) = \mathbf{e}_1 A_1(t, z) e^{i(\omega t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})}, \quad (6)$$

$$\mathbf{E}_2(2\omega) = \mathbf{e}_2 A_2(t, z) e^{i(2\omega t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})}, \quad (7)$$

где  $A_1, A_2$  — медленно меняющиеся функции теперь уже и координаты и времени.

Подставляя (6) и (7) в волновое уравнение и учитывая лишь групповое запаздывание (что соответствует первому приближению в учете дисперсионных эффектов для квазимонохроматических волн), приходим в случае малой нелинейности к уравнениям первого порядка для комплексных амплитуд [ср. с уравнениями (4.24), (4.25)]

$$\frac{\partial A_1}{\partial z} + \frac{1}{u_1} \frac{\partial A_1}{\partial t} = -i\beta_1 e^{i\Delta k z} A_2 A_1^*, \quad (8)$$

$$\frac{\partial A_2}{\partial z} + \frac{1}{u_2} \frac{\partial A_2}{\partial t} = -i\beta_2 e^{-i\Delta k z} A_1^2. \quad (9)$$

Здесь  $u_1, u_2$  — групповые скорости волн основной частоты и волны гармоники; через  $\beta_{1,2}$  для краткости обозначены коэффициенты, фигурирующие в (4.24) и (4.25);  $\Delta k = 2k_{1z} - k_{2z}$ . Решение уравнений в частных производных (8), (9) представляет, вообще говоря, существенно более сложную задачу, нежели решение соответствующих обыкновенных уравнений для немодулированных волн. Имеется, однако, важный частный случай, для которого учет производных комплексных амплитуд по времени тривиален. Это случай равенства групповых скоростей  $u_1 = u_2 = u$ . При этом заменой переменных  $\xi = t + z/u$ ,  $\eta = t - z/u$  система (8), (9) приводится к системе уравнений в обыкновенных производных

$$\frac{dA_1}{d\xi} = -i\beta_1 e^{i\Delta k u(\xi - \eta)/2} A_2 A_1^*, \quad (10)$$

$$\frac{dA_2}{d\xi} = -i\beta_2 e^{-i\Delta k u(\xi - \eta)/2} A_1^2, \quad (11)$$

имеющих тот же вид, что и для немодулированных волн. Поэтому случай  $u_1 = u_2$  может быть назван квазистати-

ческим; характер изменения комплексных амплитуд с координатой остается таким же, как и в немодулированной волне, однако вид спектра в процессе нелинейного взаимодействия несколько модифицируется. Новые обстоятельства возникают в случае  $u_1 \neq u_2$ , когда существует групповое запаздывание взаимодействующих волн. На протяжении нелинейной среды  $l$  групповое запаздывание  $T = l(u_1^{-1} - u_2^{-1})$ . Здесь характер изменения комплексных амплитуд в пространстве определяется соотношением между запаздыванием  $T$  и характерным временем  $\tau$ , определяющим ширину спектра волны основного излучения  $\tau \approx (\Delta\omega)^{-1}$  (таким образом, для случайно-модулированной волны  $\tau$  имеет порядок времени корреляции, а для импульсно-модулированной — длительности импульса). Нетрудно убедиться путем непосредственного вычисления (это, впрочем, представляется ясным и из физических соображений), что при

$$\tau \gg T = l |u_1^{-1} - u_2^{-1}| \quad (12)$$

процесс генерации гармоники происходит, как и в немодулированной волне (т. е. справедливо квазистатическое приближение), а при  $\tau < T$  возникают существенные отличия.

При  $A_1 \gg A_2$  и  $\Delta k = 0$  из (8) и (9) следует, что

$$|A_2|^2 \sim l^2 \text{ при } \tau > T \quad (13)$$

и

$$|A_2|^2 \sim l \text{ при } \tau < T. \quad (14)$$

Таким образом, если при  $\tau > T$  интенсивность гармоники изменяется как квадрат числа частиц  $N$  среды, участвующих в нелинейном процессе,  $|A_2|^2 \sim N^2$ , то при  $\tau < T$   $|A_2|^2 \sim N$ ; зависимость интенсивности от  $N$  имеет такой же вид, как и соответствующая зависимость для типичного процесса некогерентного рассеяния (например, спонтанного комбинационного или спонтанного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна). Поэтому длина

$$l_{\omega} = (\Delta\omega)^{-1} |u_1^{-1} - u_2^{-1}|^{-1}, \quad (15)$$

для которой  $\tau = T$ , может быть названа когерентной длиной. С зависимостью типа (14) приходится сталкиваться и в задаче о генерации второй гармоники в статистически неоднородной среде. Наиболее ярким примером такой ситуации является задача о нелинейном рассеянии в среде с центром инверсии, в которой отдельные молекулы обладают отличным от нуля тензором  $\chi_{ijk}$  (см. [40])<sup>1)</sup>. Следует иметь в виду вместе с тем, что термин «когерентная длина» широко используется в современной нелинейной оптике и для определения пространственных масштабов нелинейного взаимодействия, не связанных со статистическими эффектами, в частности пространственных масштабов, определяемых только дисперсионными свойствами нелинейной среды.

Уравнения в частных производных, типа уравнений (8) и (9), должны, строго говоря, использоваться и при исследовании других нелинейных процессов: смешения, параметрического усиления, вынужденного рассеяния. К счастью, в большинстве практически интересных случаев можно ограничиться квазистатическим приближением, полагая  $(\partial A_i / \partial t) = 0$ . Действительно, даже для  $\tau \approx 10^{-8}$  сек (характерная длина импульса лазера с модулируемой добротностью) в задачах о генерации гармоник, о смешении частот, вынужденном комбинационном рассеянии  $\tau \approx T$  при  $l \approx 10^2$  см, что заметно превышает длины нелинейных сред, используемых в эксперименте. Важным исключением, однако, оказывается вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна; в этом случае  $T \approx l/v$ , где  $v$  — скорость звука. Подставляя  $v \approx 10^5$  см/сек и  $\tau = 10^{-8}$  сек, убеждаемся, что квазистатическое приближение становится неприменимым уже при  $l \approx 10^{-3}$  см. Особенности рассеяния, связанные с этим обстоятельством, подробно обсуждаются в работе [42].

Обратимся теперь к вопросу об учете конечного поперечного сечения и расходимости волновых пучков в нелинейной среде. В предлагаемой книге для анализа

<sup>1)</sup> Интересно, что при больших  $\Delta k$  некогерентный процесс генерации гармоники оказывается более эффективным, нежели когерентный процесс.

явлений в ограниченных пучках (см. гл. 5, § 1) используются результаты теории, развитой для плоских волн. Нетрудно видеть, что такой подход соответствует по существу приближению геометрической оптики — учитывается лишь изменение комплексных амплитуд взаимодействующих волн вдоль лучей. Для учета же дифракционных эффектов в пучке конечного сечения (весьма важных в таких задачах, как задачи о генерации гармоник и вынужденном рассеянии в фокусированных пучках, задачи о нелинейных взаимодействиях на больших длинах, реализуемых в лучах газовых лазеров) следует ввести в рассмотрение производные амплитуды не только вдоль, но и поперек лучей.

Поэтому для ограниченных пучков решение нелинейных уравнений следует искать в виде (временные изменения здесь не записываем)

$$E = eA(\mathbf{r} \cdot \mathbf{s}, \mathbf{r} \times \mathbf{s}) e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}. \quad (16)$$

Здесь  $\mathbf{s}$  — лучевой вектор; поскольку в направлениях, перпендикулярных лучу, происходит переход в область тени, изменения амплитуды вдоль луча следует считать более медленными, нежели поперек луча. С учетом (16) уравнения для амплитуд связанных волн, описывающие процесс генерации второй гармоники в анизотропной среде в двумерном пучке конечного поперечного сечения, принимают вид

$$\frac{\partial A_1}{\partial z} = \frac{1}{2ik_1} \frac{\partial^2 A_1}{\partial x^2} - i\beta_1 e^{i(2k_1 - k_2) \cdot \mathbf{r}} A_2 A_1^*, \quad (17)$$

$$\frac{\partial A_2}{\partial z} = \frac{1}{2ik_2} \frac{\partial^2 A_2}{\partial x^2} - \gamma \frac{\partial A_2}{\partial x} - i\beta_2 e^{i(2k_1 - k_2) \cdot \mathbf{r}} A_1^2. \quad (18)$$

Здесь координата  $z$  отсчитывается вдоль луча, а  $x$  — поперек луча. Уравнения записаны для наиболее интересного случая, когда волна основной частоты обыкновенная, а волна гармоники необыкновенная;  $\gamma$  — угол анизотропии. При  $\beta_1 = \beta_2 = 0$  (линейная среда) уравнения (17) и (18) переходят в уравнения параболического типа с мнимым коэффициентом диффузии, широко используемым в современной теории дифракции [43]. Пользуясь (17) и (18), удается построить последовательную теорию

рию генерации второй гармоники в фокусе, позволяющую удовлетворительно объяснить экспериментальные данные.

Эффекты, связанные с конечным сечением световых пучков, активно обсуждаются в последнее время в связи с опытами по генерации гармоник в двоякопреломляющих кристаллах (при больших длинах предел нарастания мощности гармоники в пучке конечной апертуры кладет различие направлений волнового и лучевого векторов [21]), а также опытами по вынужденному комбинационному рассеянию (см. [45, 46]).

Однако, пожалуй, одной из наиболее интересных задач современной нелинейной оптики, в которой принципиальную роль играет конечное сечение светового пучка, является задача о самофокусировке и самоканализации интенсивного светового пучка. В среде, показатель преломления которой зависит от интенсивности световой волны [появление такой зависимости, как нетрудно видеть, связано с членами при  $\chi_1^{(4)}$  и  $\chi_3^{(3)}$  в (5)], показатель преломления внутри пучка может превышать показатель преломления вне пучка и, следовательно, лучи будут стремиться собраться к оси пучка [47]. Последнее должно, очевидно, приводить (при фокусировке в нелинейной среде) к изменению фокусного расстояния линзы и к изменению (как нетрудно показать, уменьшению) размеров фокальной области (эти явления могут быть названы самофокусировкой), а при определенных условиях к режиму волноводного распространения пучка (самоканализация). Эффекты самофокусировки и самоканализации можно проанализировать в том же «квазиоптическом» приближении, используя которое мы получили уравнения (17) и (18). Рассматривая среду, для которой показатель преломления  $n = n_0 + n_2 |A|^2$ , и подставляя (16) в соответствующее волновое уравнение, получаем

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{1}{2ik} \Delta_{\perp} A + \frac{k}{2i} \frac{n_2}{n_0} |A|^2 A, \quad (19)$$

где  $\Delta_{\perp}$  — поперечный лапласиан (в двумерном случае  $\Delta_{\perp} = \partial^2 / \partial x^2$ ). Анализ уравнения (19) показывает, что,

хотя режим самоканализации в экспериментальных условиях получить трудно (для этого необходим специальный подбор краевых условий), эффект самовоздействия обязательно следует учитывать при анализе экспериментов по нелинейной оптике, проводимых в фокусированных (а иногда и нефокусированных) пучках. Эффект уменьшения величины фокальной области, особенно для сферических линз, может быть значительным (соответствующую библиографию см. в гл. 5).

Среди других задач, не затронутых в гл. 3—5, следует указать на задачи, связанные с исследованием нелинейных явлений в оптических резонаторах. Первоочередный интерес они представляют в связи с исследованием процессов в параметрических генераторах света, комбинационных лазерах, резонаторных умножителях частоты. Некоторые результаты, относящиеся к указанному кругу вопросов, можно найти в [41, 48—50], однако в целом теория таких процессов еще далека от завершения.

В области экспериментальной нелинейной оптики наиболее интересные исследования за время, прошедшее после написания книги Бломбергена, выполнены в области параметрического усиления и генерации света и вынужденного рассеяния. Особый интерес здесь представляют работы, имеющие целью создание плавно перестраиваемых параметрических генераторов непрерывного действия, использующих в качестве генераторов накачки газовые лазеры [51]. Широкий круг исследований по вынужденному комбинационному рассеянию<sup>1)</sup>, выполненных в разных странах, показал, что, хотя многие важные черты наблюдаемых здесь явлений согласуются с теорией типа теории, развитой в гл. 4 настоящей книги, имеются и явления, не укладывающиеся в эту теоретическую схему. К последним относятся существенные отличия в диаграмме направленности антистоксового излучения (иногда оно становится диффузным), аномально большие коэффициенты усиления стоксовых компонент, в несколько раз превосходящие теоретические, резкое уширение линий и т. п. Эти явления обсуждались на состоявшихся летом 1965 г. конференциях по

<sup>1</sup> Первый обзор по этому вопросу дан в работе [55].

нелинейной оптике в Минске [52] и в Сан-Хуане (Пуэрто-Рико) [53]. В качестве одной из возможных причин этих аномалий называлась многомодовая структура лазерного излучения; имеются и данные, свидетельствующие о важном вкладе эффектов самофокусировки.

Значительное количество невыясненных вопросов имеется и в области изучения вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна. Так, не выяснен до конца вопрос о существовании антистоксовых компонент в вынужденном рассеянии; результаты первых опытов, в которых такие компоненты как будто бы наблюдались, по-видимому, не подтвердились (см. [53]). Интересные результаты получены при исследовании гармоник звука, возникающего в процессе вынужденного рассеяния [54]; есть основание считать, что они могут быть достаточно сильными. Наконец, весьма интересной задачей является наблюдение вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна в кристаллах при низких температурах, что может позволить вывести из среды гиперзвуковые колебания, возникающие в процессе рассеяния.

Следует отметить, что эта область быстро расширяется; обсуждаются возможности наблюдения вынужденного рассеяния на плазмонах в твердых телах и магнетонах (см. [53]).

В заключение заметим, что в последнее время обнаруживается все более тесная связь между нелинейными оптическими явлениями и разрушением оптически прозрачных сред в интенсивных лазерных полях. С одной стороны, такие эффекты, как многофотонное поглощение и вынужденное рассеяние, могут стать причиной разрушения среды. С другой — разрушение сред ограничивает предельные потоки мощности, которые могут быть пропущены через среду, и, следовательно, ограничивает возможности наблюдения взаимодействий высоких порядков и эффективность практических устройств, использующих нелинейные оптические явления.

#### IV

При переводе и редактировании предлагаемой книги встретились определенные трудности, связанные пре-

жде всего с весьма лаконичным характером изложения. Поэтому помимо подстрочных редакционных примечаний не имеющие принципиального характера поправки и разъяснения вносились непосредственно в текст; точно так же были исправлены и замеченные опечатки. Однако то обстоятельство, что ряд формул автор приводит без вывода, не позволяет считать, что работа по выявлению опечаток выполнена полностью. Следует указать также, что терминология и обозначения в оригинале не всегда унифицированы; при редактировании этот недостаток устранялся лишь в наиболее очевидных случаях. Обозначения для векторных операций полностью соответствуют оригиналу. При транскрибировании фамилий мы, где возможно, исходили из прецедентов, основываясь на статьях и книгах, имеющих на русском языке, хотя распространенные транскрипции, возможно, и не всегда правильны (в частности, фамилию автора, по-видимому, правильнее произносить Блумберген).

Отметим, наконец, что примечания редакторов и переводчиков сделаны лишь в основном тексте книги; приложения, призванные служить справочным материалом, никак не комментируются, хотя, разумеется, целый ряд вопросов, затронутых в них, детально изучался и в последующие годы.

*С. Ахманов, Р. Хохлов*

Сентябрь 1965 г.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Волькенштейн М. В., Молекулярная оптика, М., 1951.
2. Брандмюллер И., Мозер Г., Введение в спектроскопию комбинационного рассеяния света, изд-во «Мир», 1964.
3. Фабелинский И. Л., Молекулярное рассеяние света, М., 1965.
4. Мандельштам Л. И., Собрание трудов, т. I, II, Изд-во АН СССР, 1950.
5. Born M., Wolf E., Principles of Optics, London, 1959.
6. Бриллюэн Л., Пароди М., Распространение волн в периодических структурах, ИЛ, 1959.
7. Рытов С. М., Модулированные колебания и волны, Труды ФИАН, 1940.

8. Slater J., Rev. Mod. Phys., 30, 197 (1958).
9. Вавилов С. И., Микроструктура света, Изд-во АН СССР, 1950.
10. Горелик Г. С., ДАН СССР, 43, 46 (1947).
11. Горелик Г. С., Усп. физич. наук, 34, 321 (1948).
12. Боровицкий С. И., Горелик Г. С., Усп. физич. наук, 59, 553 (1956).
13. Forrester A. T., Gudmunsen R. A., Johnson P. O., Phys. Rev., 99, 1691 (1955).
14. Franken P., Hill A., Peters C., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 7, 118 (1961).
15. Kaiser W., Garrett G. C., Phys. Rev. Lett., 7, 229 (1961).
16. Eckhardt G., Hellwarth R., McClung F., Schwarz S., Weiner D., Woodbury E., Phys. Rev. Lett., 9, 455 (1962).
17. Chiao R., Townes C., Stoicheff B., Phys. Rev. Lett., 12, 592 (1964).
18. Маш Д. И., Морозов В. В., Старунов В. С., Фабелинский И. Л., ЖЭТФ, письма в редакцию, 2, № 1, 41 (1965).
19. Pershan P., Van der Ziel J., Malmstrom L., Optically induced magnetization resulting from the inverse Faraday effect (см. [53]).
20. Ashkin A., Boyd G., Dziedzic J., Phys. Rev. Lett., 11, 14 (1963).
21. Ashkin A., Boyd G., Dziedzic J., Kleinman D., Phys. Rev., 137, № 4A, 1305 (1965).
22. Terhune R., Maker P., Savage C., Appl. Phys. Lett., 2, 54 (1963).
23. Ахманов С. А., Ковригин А. И., Пискарькас А. С., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, письма в редакцию, 2, № 5, 223 (1965).
24. Miller R., Giordmaine J., Phys. Rev. Lett., 14, 973 (1965).
25. Ахманов С. А., Ковригин А. И., Пискарькас А. С., Фадеев В. В., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, письма в редакцию, 2, № 7, 3 (1965).
26. Sorokin P., Luzzi J., Lankard J., Pettit G., IBM Journ. Res., 8, 182 (1964).
27. Басов Н. Г., Грасюк А. З., Зубарев И. Г., Катулин В. А., ЖЭТФ, письма в редакцию, 1, № 4, 29 (1965).
28. Бункин Ф. В., Прохоров А. М., ЖЭТФ, 48, № 4, 1084 (1965).
29. Прохоров А. М., Усп. физич. наук, 85, № 4, 599 (1965).
30. Shiergen N., Stimulated phonon-photon double quantum emission. (См. [53].)
31. Pershan, Nat. Bur. Stand. Journ., 671 (1964).
32. Terhune R., Solid State Design, 4, 38 (1963). (Имеется перевод в сборнике «Зарубежная радиоэлектроника», № 6, М., 1964.)
33. Бонч-Бруевич А. М., Ходовой В. И., Усп. физич. наук, 85, 3 (1965).
34. Климонтович Ю. Л., Квантовые генераторы света и нелинейная оптика, М., 1966.
35. Файн В. М., Ханин Я. И., Квантовая радиофизика, М., 1965.
36. Келдыш Л. В., ЖЭТФ, 47, 1945 (1964).

37. Butcher P. N., Bull. Eng. Experim. Stat., Ohio State Univ., 1965, p. 143.
38. Овандер Л. Н., Усп. физич. наук, **86**, № 1, 3 (1965).
39. Miller R., Appl. Phys. Lett., **5**, № 1, 17 (1964).
40. Terhune R., Maker P., Savage C., Phys. Rev. Lett., **14**, 681 (1965).
41. Ахманов С. А., Хохлов Р. В., Проблемы нелинейной оптики, М., 1964.
42. Kroll N., Journ. Appl. Phys., **36**, № 1, 34 (1965).
43. Малюжинец Г. Д., Усп. физич. наук, **69**, 321 (1959).
44. Francois G., Siegman A., Phys. Rev., **139**, A4 (1965).
45. Луговой В. Н., ЖЭТФ, **48**, 1216 (1965).
46. Haus H., Kelley H., Zeiger H., Phys. Rev., **138**, A960 (1965).
47. Chiao R., Garmire E., Townes C., Phys. Rev. Lett., **13**, 479 (1964).
48. Kingston R., McWhorter A., Proc. IEEE, **53**, № 1, 4 (1965).
49. Ахманов С. А., Дмитриев В. Г., Моденов В. П., Фадеев В. В., Радиотехника и электроника, **10**, № 12 (1965).
50. Gulver W., Serpi E., Journ. Appl. Phys., **35**, 3421 (1964).
51. Ashkin A., Boyd G., Optical nonlinear parametric and harmonic interactions in  $\text{LiNbO}_3$  (см. [53]).
52. Апанасевич П. А., Журнал прикл. спектр., **3**, № 2, 196 (1965); Изв. АН БССР, серия физ.-математич. наук, № 4, 1965.
53. Physics of Quantum Electronics Conference Proceedings, ed. P. Kelley, V. Lax, P. Tannenwald, New York, 1965.
54. Grewe R., Appl. Phys. Lett., **6**, № 8, 165 (1965).
55. Зубов В. А., Сущинский М. М., Шувалов И. К., Усп. физич. наук, **83**, № 2, 197 (1964).

## ПРЕДИСЛОВИЕ

Эта монография основана на лекциях, подготовленных для курса квантовой электроники в Гарвардском университете весной 1963 г. и для летней школы в Лезуш в 1964 г. Нелинейная оптика — еще совсем молодая область физики, предметом которой является изучение эффектов, возникающих при очень высоких интенсивностях света, достижимых в лазерных пучках. Нелинейная оптика — одна из наиболее интересных областей исследования, ставших доступными после разработки мощных лазеров.

Писать монографию по нелинейной оптике в настоящее время, когда она еще переживает период бурного развития, по-видимому, безрассудная храбрость. Могут сказать, что такая монография в лучшем случае будет способствовать тому, что она сама скоро окажется устаревшей. Тем не менее можно надеяться, что она сможет иметь некоторую не столь быстро преходящую ценность. Общие принципы электромагнитной теории Максвелла и квантовой механики хорошо установлены. Они применимы и к описанию взаимодействий высшего порядка между светом и материальной средой; свойства среды описываются при этом с помощью нелинейных восприимчивостей.

Нелинейные свойства элементов цепей с сосредоточенными постоянными на радиочастотах и микроволновых систем хорошо известны радиоинженерам. В настоящей монографии обсуждаются нелинейные явления на оптических частотах. Оказывается, что генерация гармоник, параметрическое усиление, модуляция и выпрямление имеют свои аналоги и в видимой области электромагнитного спектра. В настоящей книге изложе-

ние построено таким образом, что читатели, знакомые с теорией электромагнитных волн, но незнакомые с квантовой механикой, могут ограничиться изучением чисто классического описания нелинейных оптических явлений. Эти читатели могут опустить гл. 2, в которой рассматривается квантовая теория линейной и нелинейной восприимчивостей материальной среды.

Эта книга предназначена для всех тех, кто активно интересуется квантовой электроникой, — для физиков, исследующих нелинейные электромагнитные свойства материи, для радиоинженеров, работающих над проблемами связи и другими применениями оптического излучения высокой мощности, для оптиков, которым важно знать поведение световых лучей при очень больших интенсивностях.

Так как нелинейная оптика находится еще в стадии быстрого развития, не делалось попыток охватить все экспериментальные данные и дать полную библиографию. Подчеркиваются фундаментальные теоретические идеи и основные экспериментальные результаты.

Автор благодарен докторам Дюкуэнгу, Шену и Форстеру, которые внимательно прочитали рукопись и внесли много поправок. За все оставшиеся ошибки полностью ответствен автор. Автор признателен редакторам журнала *Physical Review* и соответствующим соавторам за разрешение воспроизвести три приложения. Автор благодарен докторам Першану и Терхьюну за предоставление некоторых материалов до их опубликования. Автор выражает благодарность Элизабет Диксон, которая напечатала рукопись в сжатый срок.

Монография посвящается Дели Бломберген, чья поддержка и сочувственное отношение сыграли решающую роль в своевременном завершении этого труда.

*Н. Бломберген*

Кембридж, Массачусетс,  
июль 1964 г.

## КЛАССИЧЕСКОЕ ВВЕДЕНИЕ

### § 1. Нелинейные восприимчивости

Нелинейные свойства максвелловских материальных уравнений

$$D = \epsilon(E) E, \quad B = \mu(H) H \quad (1.1)$$

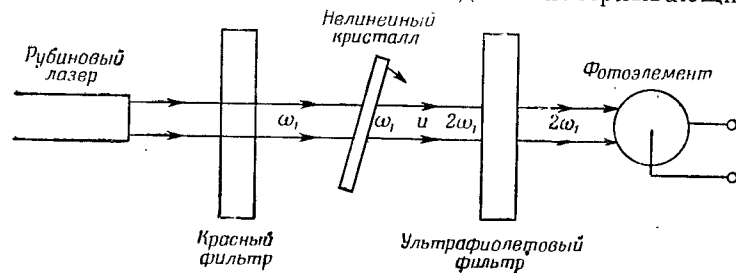
известны достаточно давно; диэлектрическая и магнитная проницаемости могут быть функциями напряженностей полей. При конструировании электрических машин в девятнадцатом столетии нелинейности проницаемости ферромагнитной среды уделялось большое внимание. Причиной этой нелинейности является движение границ и вращение доменов. Она может быть источником гармонических искажений в усилителях звуковой частоты, в которых используются индуктивности с ферромагнитными сердечниками. Парамагнитное насыщение, описанное Ланжевенном и Бриллюэном, может рассматриваться как нелинейность на нулевой частоте. Действие магнитных и диэлектрических усилителей основано на нелинейности ферромагнетиков и сегнетоэлектриков на сравнительно низких частотах. Нелинейные свойства плазмы тоже хорошо известны и являются причиной Люксембург-Горьковского эффекта, возникающего при распространении радиоволн в ионосфере. В последнее время нелинейные свойства плазмы и других материалов были исследованы в диапазоне СВЧ. Нелинейность при ферромагнитном резонансе использовалась, например, для генерации второй и более высоких гармоник в СВЧ диапазоне.

Нелинейные свойства вещества в оптическом диапазоне были ярко продемонстрированы в опытах по генерации гармоник света. Франкен и др. [1] обнаружили ультрафиолетовое излучение ( $\lambda = 3470 \text{ \AA}$ ) с частотой,

3 Н. Бломберген



равной удвоенной частоте рубинового лазера, при прохождении его луча через кристалл кварца. Схема эксперимента показана на фиг. 1. Этот эксперимент, выполненный в 1961 г., положил начало большому циклу теоретических и экспериментальных исследований нелинейных оптических свойств различных сред. По этой тематике имеется несколько обзоров [2—4], в которых можно найти довольно полную библиографию. В настоящей книге не делается попытки дать исчерпывающий



Фиг. 1. Схема эксперимента по генерации второй гармоники света.

обзор всех работ в этой области исследования; основное внимание уделяется обсуждению различных явлений с единой точки зрения.

Нелинейные свойства материальной среды описываются с помощью разложения поляризации в ряд по степеням напряженности поля. Например, в чисто дипольном случае имеем

$$P = \chi \cdot E + \chi : EE + \chi : EEE + \dots \quad (1.2)$$

Первый член определяет обычную нелинейную восприимчивость, второй — нелинейную восприимчивость низшего порядка и т. д. Такое разложение поляризации по полю применимо вследствие малости оптических нелинейностей. Именно из-за малой величины эффекта оптические нелинейности были экспериментально обнаружены только недавно, после появления мощных лазеров. С помощью лазеров с модуляцией добротности [5] теперь удается получать электрические поля с максимальными амплитудами порядка  $10^6$  в/см, что соответствует потоку мощности порядка  $10^9$  вт/см<sup>2</sup>. Вместе с

тем при благоприятных условиях можно обнаружить нелинейные оптические эффекты и с потоком мощности порядка  $0,1-10$  мвт/см<sup>2</sup>.

Теория распространения волн в нелинейной среде может быть развита чисто классически; при этом нелинейные оптические свойства среды могут анализироваться таким же образом, как анализировались линейные оптические свойства материальных сред в начале прошлого столетия. Для развития теории нелинейных свойств сред во времена Максвелла, Герца, Лоренца и Друде не хватало движущей силы экспериментальных открытий. Экспериментальная реализация вынужденного излучения света внезапно изменила обстановку; началось энергичное исследование поведения световых лучей высокой интенсивности. Уже сделано много обобщений классических законов оптики на случаи, когда существенны нелинейности. В то же время сами нелинейности представляют значительный интерес с точки зрения изучения строения вещества. Подобная же ситуация имеет место, разумеется, и в линейном случае. Линейный показатель преломления определяет пути световых лучей, и, наоборот, изучая их поведение, мы получаем данные о природе вещества.

## § 2. Классические атомные модели нелинейности

### ГАЗ СВОБОДНЫХ ЭЛЕКТРОНОВ

Рассмотрим движение одного электрона в плазме под действием линейно поляризованной световой волны, компоненты поля которой равны

$$B_y = E_x = Ee^{ikz - i\omega t} + E^*e^{-ikz + i\omega t} = 2\text{Re} [Ee^{ikz - i\omega t}], \quad (1.3)$$

где  $k = \omega c^{-1}$ . Заметим, что действительная амплитуда волны равна  $2|E|$ , т. е. наша амплитуда  $|E|$  вдвое меньше общепринятой. При использовании этого нового определения, введенного Першаном [4], линейная восприимчивость не изменяется, но нелинейная восприимчивость низшего порядка увеличивается вдвое;

дополнительные множители, равные двум, появляются и в восприимчивостях высших порядков. Новое определение обладает известным преимуществом при рассмотрении свойств симметрии тензоров нелинейных восприимчивостей. В предельном случае равенства двух частот, от которых зависит нелинейная восприимчивость, или в случае, когда одна частота становится равной нулю, возможно возникновение путаницы [6]. Новое определение позволяет почти полностью избежать трудностей, связанных с множителем два. В конце расчета можно вернуться к старому определению. Фурье-компонента какой-либо физической величины на частоте  $+\omega$  имеет временную зависимость вида  $\exp(-i\omega t)$ , а на частоте  $-\omega$  — вида  $\exp(+i\omega t)$ .

Уравнения движения одного электрона в плазме имеют вид

$$\begin{aligned} m\ddot{x} &= eE_x - \frac{e}{c} \dot{z}B_y - \frac{m\dot{x}}{\tau}, \\ m\ddot{y} &= -\frac{m\dot{y}}{\tau}, \\ m\ddot{z} &= \frac{e}{c} \dot{x}B_y - \frac{m\dot{z}}{\tau}. \end{aligned} \quad (1.4)$$

Феноменологическое время между столкновениями  $\tau$  описывает затухание движения; наличие конечного  $\tau$  обеспечивает существование стационарного состояния, не зависящего от начальных условий. Нелинейные эффекты в (1.4) связаны с лоренцевой силой; она приводит к возникновению гармоник. Стационарное решение уравнений (1.3) и (1.4) может быть найдено в виде ряда Фурье методом последовательных приближений.

В первом, линейном приближении имеем известный результат:

$$x(\omega) = \frac{-eE \exp(ikz - i\omega t)}{m(\omega^2 + i\omega\tau^{-1})}. \quad (1.5)$$

Если подставить это линейное решение в последнее уравнение (1.4), то в нелинейном приближении низшего

порядка получим

$$z(2\omega) = \frac{-ie^2 E^2 \exp(2ikz - 2i\omega t)}{m^2 c (4\omega + 2i\tau^{-1})(\omega^2 + i\omega\tau^{-1})}. \quad (1.6)$$

Линейный дипольный момент  $ex(\omega)$  приводит к известной формуле Томсона, описывающей релеевское рассеяние света свободными электронами. Аналогично дипольный момент  $ez(2\omega)$  излучает на частоте второй гармоники. Этот нелинейный процесс рассеяния можно грубо представить как поглощение двух квантов из падающего луча и излучение одного кванта удвоенной частоты, причем диаграмма излучения соответствует диполю, ориентированному вдоль направления падающего луча.

Некогерентное нелинейное рассеяние отдельными электронами не имеет, однако, практического значения. Нелинейные явления настолько слабы, что обнаружить можно лишь когерентное излучение большого ансамбля частиц. Аналогичное различие между когерентным и некогерентным рассеянием имеет место и для линейного случая. Поэтому основное внимание должно быть сконцентрировано на средней поляризации небольшого объема и показателе преломления плазмы, а не на некогерентном релеевском рассеянии за счет флуктуаций плотности. В жидкостях и кристаллах относительные флуктуации плотности еще меньше, и основной интерес представляет средняя поляризация среды<sup>1)</sup>.

Если средняя плотность электронов в плазме равна  $N_0 \text{ см}^{-3}$ , то линейная поляризация равна

$$P_x(\omega) = \chi(\omega) E_x(\omega) = N_0 ex(\omega). \quad (1.7)$$

Так как на оптических частотах  $\omega\tau \ll 1$ , то из (1.5) и (1.7) непосредственно следует известное выражение для

<sup>1)</sup> Вместе с тем нелинейное рассеяние света конденсированной средой или газом несет информацию об индивидуальных нелинейных свойствах отдельных молекул или ионов. Поэтому, несмотря на значительные экспериментальные трудности, наблюдение нелинейного рассеяния представляет несомненный интерес. Теоретические оценки некоторых характеристик нелинейного рассеяния даны в работах [31\*—33\*]; об успешных опытах по наблюдению нелинейного рассеяния излучения рубинового лазера в твердых телах и жидкостях сообщалось в работе [34\*]. — *Прим. ред.*

восприимчивости плазмы:

$$\epsilon - 1 = 4\pi\chi = -\frac{4\pi N_0 e^2}{m\omega^2}.$$

Аналогично нелинейная поляризация с частотой второй гармоники равна

$$P_z(2\omega) = N_0 e z(2\omega).$$

В бесконечной плазме нет когерентного излучения с частотой  $2\omega$ , так как вектор нелинейной поляризации параллелен направлению распространения. Однако когерентное излучение второй гармоники возможно на границе плазмы.

В этом же приближении имеется также небольшой продольный постоянный ток, соответствующий члену

$$\dot{x}(\omega) B_y(-\omega) + \dot{x}(-\omega) B_y(+\omega).$$

Плотность тока равна

$$J_z(0) = N_0 e \dot{z}(0) = \frac{iN_0 e^3 \omega \tau |E|^2}{m^2 c (\omega^2 + i\omega\tau^{-1})}. \quad (1.8)$$

В аналогичном классическом случае это выражение описывает передачу импульса при комптоновском рассеянии.

Описанная процедура может быть, конечно, использована и для вычисления более высоких гармоник. Имеется, в частности, компонента поляризации  $P_x(3\omega)$ , которая может привести к излучению третьей гармоники.

Нелинейности в плазме в диапазоне СВЧ могут быть довольно большими, особенно в присутствии постоянного магнитного поля, при котором может возникнуть циклотронный резонанс [7]. Помимо лоренцевой силы в реальной плазме на более низких частотах имеются и другие источники нелинейности. Следует учитывать градиенты гидродинамического давления и индуцированные вариации электронной плотности. Довольно полное обсуждение всех этих эффектов дано Уитмером и Барреттом [8].

## АНГАРМОНИЧЕСКИЙ ОСЦИЛЛЯТОР

В очень полезной модели, использованной Друде и Лоренцем (см. [9]) для расчета линейной поляризации среды, электроны рассматриваются как гармонические осцилляторы. Резонансные частоты осцилляторов выбирают при этом такими, чтобы они соответствовали наблюдаемым атомным спектральным линиям. В действительности движение валентных электронов происходит в кулоновском поле ионов. При очень больших отклонениях от положения равновесия следует учитывать ангармоничность электронных осцилляторов. Модель ангармонического осциллятора уже использовалась Релеем для объяснения нелинейностей в акустических резонаторах [10].

Рассмотрим движение одномерного ангармонического осциллятора с затуханием, на который воздействует электрическое поле с фурье-компонентами на частотах  $\pm \omega_1$  и  $\pm \omega_2$ :

$$\ddot{x} + \Gamma \dot{x} + \omega_0^2 x + \nu x^2 = \frac{2e}{m} \operatorname{Re} (E_1 e^{ik_1 z - i\omega_1 t} + E_2 e^{ik_2 z - i\omega_2 t}). \quad (1.9)$$

Линейное приближение непосредственно дает известный результат

$$x(\omega_1) = \frac{e}{m(-\omega_1^2 + \omega_0^2 - i\omega_1 \Gamma)} E_1 \exp(ik_1 z - i\omega_1 t). \quad (1.10)$$

В нелинейном приближении низшего порядка появляются слагаемые с частотами вторых гармоник  $2\omega_1$ ,  $2\omega_2$ , слагаемое с нулевой частотой, соответствующее «выпрямлению» света за счет квадратичной нелинейности  $\nu x^2$ , и слагаемые с суммарной и разностной частотами  $\omega_1 + \omega_2$  и  $\omega_1 - \omega_2$ , соответствующие биениям между двумя световыми волнами. Мы приведем только две фурье-компоненты: вторую гармонику

$$x(2\omega_1) = \frac{-(e^2/m^2) \nu E_1^2 \exp(2ik_1 z - 2i\omega_1 t)}{D^2(\omega_1) D(2\omega_1)} \quad (1.11)$$

и компоненту с разностной частотой

$$x(\omega_1 - \omega_2) = \frac{-(e^2/m^2) v E_1 E_2^* \exp[i(k_1 - k_2)z - i(\omega_1 - \omega_2)t]}{D(\omega_1) D^*(\omega_2) D(\omega_1 - \omega_2)}, \quad (1.12)$$

где в знаменателях введено обозначение

$$D(\omega) = \omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega = D^*(-\omega).$$

Из (1.11) непосредственно следуют выражения для нелинейной поляризации и нелинейной восприимчивости, описывающих генерацию второй гармоники:

$$P_x^{NL}(2\omega) = \chi_{xxx}(2\omega, \omega, \omega) E_x^2(\omega), \quad (1.13)$$

$$\chi_{xxx}(2\omega, \omega, \omega) = \frac{-N_0(e^3/m^2)v}{D^2(\omega) D(2\omega)}. \quad (1.14)$$

Индексы *xxx*, конечно, излишни в одномерном примере. Они лишь напоминают, что нелинейная восприимчивость обычно связывает три вектора и имеет трансформационные свойства тензора третьего ранга. Обобщение на случай трехмерного ангармонического осциллятора очевидно. Аналогичное выражение может быть получено для нелинейной восприимчивости

$$\chi_{xxx}(\omega_1 - \omega_2, \omega_1 - \omega_2).$$

Заметим, что дисперсия нелинейной восприимчивости низшего порядка определяется значениями трех частот, а не одной. Зависимость от частоты усиливается при приближении к резонансу одного из знаменателей. Если, например, разностная частота равна резонансной частоте,  $D(\omega_1 - \omega_2) = i\omega_0\Gamma$  при  $\omega_1 - \omega_2 = \omega_0$ , то нелинейная восприимчивость на разностной частоте больше, чем на всех других частотах.

Если разность  $\omega_1 - \omega_2$  равна или достаточно близка к резонансной частоте  $\omega_0$ , то при расчете нелинейных эффектов следующего порядка можно удерживать только фурье-компоненту (1.12). За счет члена  $vx^2$  эта компонента вместе с линейными слагаемыми приводит к появлению компонент с частотами  $2\omega_1 - \omega_2$ ,  $\omega_1 - 2\omega_2$  (по-

мимо компонент с первоначальными частотами  $\omega_1$  и  $-\omega_2$ ). Так, например,

$$x^{NL}(\omega_2)^* = x^{NL}(-\omega_2) = \frac{(e^3/m^3)v^2 E_2^* |E_1|^2}{[D^*(\omega_2)]^2 |D(\omega_1)|^2 D(\omega_1 - \omega_2)}$$

или

$$\chi_{xxxx}(\omega_2 = \omega_2 + \omega_1 - \omega_1) = \frac{N_0(e^4/m^3)v^2}{D^2(\omega_2) |D(\omega_1)|^2 D^*(\omega_1 - \omega_2)}. \quad (1.15)$$

При резонансе,  $\omega_1 - \omega_2 = \omega_0$ , и при условии, что  $\omega_1 \gg \omega_0$ ,  $D(\omega_1 - \omega_2)$  является чисто мнимой величиной; другие множители в знаменателе действительны, поэтому

$$\chi_{xxxx}(\omega_2 = \omega_2 + \omega_1 - \omega_1) = -\frac{iN_0(e^4/m^3)v^2}{\omega_0\Gamma(\omega_1^2 - \omega_0^2)^2(\omega_2^2 - \omega_0^2)^2}. \quad (1.16)$$

Аналогично можно найти

$$\chi_{xxxx}(\omega_1 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_2) = \chi_{xxxx}^*(\omega_2 = \omega_2 + \omega_1 - \omega_1) \quad (1.17)$$

и

$$\begin{aligned} \chi_{xxxx}(2\omega_1 - \omega_2 = \omega_1 + \omega_1 - \omega_2) &= \\ &= \frac{N_0(e^4/m^3)v^2}{D^2(\omega_1) D^*(\omega_2) D(2\omega_1 - \omega_2) D(\omega_1 - \omega_2)}. \end{aligned} \quad (1.18)$$

Сравнение (1.10), (1.12) и (1.16) показывает, что между нелинейной поляризацией первого порядка и линейной поляризацией, а также между нелинейными поляризациями смежных порядков имеют место следующие соотношения:

$$\left| \frac{P^{NL}}{P^L} \right| \approx \left| \frac{P_{(n+1)}^{NL}}{P_{(n)}^{NL}} \right| \approx \frac{e|E|}{mD} \frac{v}{D}.$$

На основе рассмотрения физической природы связи электрона в атоме можно считать, что если отклонение  $x$  по порядку величины равно радиусу  $a$  равновесной орбиты электрона, то нелинейная сила  $m\omega^2 x$  имеет величину того же порядка, что и линейная сила  $m\omega_0^2 a = e|E_{ат}|$ , где  $E_{ат}$  — внутриатомное электрическое поле,

связывающее электрон. Поэтому  $v/D \approx v/\omega_0^2 \approx a^{-1}$  и отношение поляризаций смежных порядков равно  $e|E|/m\omega_0^2 a = |E|/|E_{ат}|$ . Амплитуда электрического поля световой волны должна сравниваться с электрическим полем внутри атома, типичная величина которого порядка  $3 \cdot 10^8$  в/см. Поэтому даже для предельных потоков энергии  $10^{10}$  вт/см<sup>2</sup>, имеющих место в фокусе лазера с модулированной добротностью, нелинейность можно рассматривать как малое возмущение, поскольку даже в этом предельном случае  $|E/E_{ат}| \sim 3 \cdot 10^{-3}$ . Следует заметить, что это отношение увеличивается в  $Q = \omega_0/\Gamma$  раз, если один из множителей в знаменателе становится резонансным<sup>1)</sup>. Вместе с тем даже малые нелинейные эффекты могут быть обнаружены благодаря высокой чувствительности оптических индикаторов. Терхьюн [11], например, обнаружил эффект генерации в кальците третьей гармоники излучения рубинового лазера (работавшего в режиме свободной генерации), несмотря на то, что в нелинейном процессе участвовал лишь один из  $10^{15}$  фотонов основного излучения. В типичном импульсе рубинового лазера содержится  $4 \cdot 10^{18}$  фотонов (1 Дж), поэтому сравнительно нетрудно обнаружить 1000 фотонов (за импульс) с  $\lambda = 2313$  Å. Нелинейная восприимчивость, описывающая процесс генерации третьей гармоники  $3\omega$ , дается выражением, аналогичным (1.15), но содержащим в этом случае в знаменателе произведение  $D^3(\omega_1)D(2\omega_1)D(3\omega_1)$ .

### МАГНИТНЫЕ ВОЛЧКИ

Значительное число нелинейных эффектов впервые исследовалось в связи с магнитным резонансом [12—15]<sup>2)</sup>. Это явление можно описать классически как движение безынерционного магнитного волчка с постоянным отношением  $\gamma$  его углового и магнитного моментов. Уравнения движения Блоха для компонент вектора на-

<sup>1)</sup> При наличии резонанса следует, вообще говоря, учитывать эффект насыщения; это соответствует учету всех членов в разложении  $\mathbf{P} = \mathbf{P}(\mathbf{E})$  (см. гл. 2, § 6 и приложение III). — Прим. ред.

<sup>2)</sup> См. также ссылки в приложении III.

магниченности с феноменологическими константами затухания имеют вид

$$\begin{aligned} \dot{M}_{x,y} &= \gamma (\mathbf{M} \times \mathbf{H})_{x,y} - \frac{M_{x,y}}{T_2}, \\ \dot{M}_z &= \gamma (\mathbf{M} \times \mathbf{H})_z - \frac{M_z - M_0}{T_1}. \end{aligned} \quad (1.19)$$

Предположим, что на систему одновременно действуют сильное постоянное поле  $H_0$ , направленное вдоль оси  $z$ , слабое переменное поле, осциллирующее с частотой  $\omega_2$  и также направленное вдоль оси  $z$ , и переменное поле с частотой  $\omega_1$ , прецессирующее вокруг оси  $z$ :

$$\begin{aligned} H_z &= H_0 + H_2 e^{-i\omega_2 t} = H_2^* e^{i\omega_2 t}, \\ H_x + iH_y &= 2H_1 e^{-i\omega_1 t}. \end{aligned} \quad (1.20)$$

Частота магнитного резонанса равна  $\omega_0 = \gamma H_0$ .

Опять можно найти решения для фурье-компонент каждой из составляющих магнитного момента  $M_x$ ,  $M_y$  и  $M_z$ . При разложении решения в ряд по возрастающим степеням амплитуд полей  $H_1$  и  $H_2$  получаются следующие выражения для фурье-компонент, связанных с нелинейным взаимодействием низшего порядка:

$$M_z^{\text{NL}}(0) = \frac{-2\gamma^2 |H_1|^2 T_1 T_2 M_0}{[1 + (\omega_1 - \omega_0)^2 T_2^2]^2}, \quad (1.21)$$

$$\begin{aligned} (M_x + iM_y)^{\text{NL}}(\omega_1 - \omega_2) &= \\ &= \frac{-2\gamma^2 H_1 H_2^* M_0 \exp[-i(\omega_1 - \omega_2)t]}{(\omega_1 - \omega_0 + iT_2^{-1})(\omega_1 - \omega_2 - \omega_0 + iT_2^{-1})}. \end{aligned} \quad (1.22)$$

Формула (1.21) описывает начальный этап известного эффекта насыщения, а (1.22) — генерацию разностной частоты. При замене  $\omega_2$  на  $-\omega_2$  получается аналогичное выражение для суммарной частоты.

В следующем нелинейном приближении эти фурье-компоненты опять взаимодействуют с исходными полями. Соответствующие члены здесь не приводятся; они аналогичны выражениям, полученным в этом же приближении для ангармонического осциллятора. Кроме

того, они идентичны квантовомеханическим выражениям, полученным в следующей главе и примененным для случая, когда система обладает только двумя энергетическими уровнями.

### § 3. Феноменологическая интерпретация нелинейной поляризации

Физическая интерпретация введенных выше комплексных нелинейных восприимчивостей требует анализа лежащих в их основе элементарных квантовых процессов и не может быть дана в рамках настоящего классического введения. Возможна, однако, феноменологическая интерпретация. Рассмотрим сначала нелинейную поляризацию низшего порядка

$$P_{\omega_3}^{NL} = \chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_1 E_2 e^{i(k_1 + k_2) \cdot r - i(\omega_1 + \omega_2) t}. \quad (1.23)$$

В общем случае  $\chi$  является тензором третьего ранга. В системах с центром инверсии он равен нулю. В кристаллах без центра инверсии не равны нулю те же компоненты  $\chi_{ijk}$ , что и у пьезоэлектрического тензора<sup>1)</sup>. Вид этого тензора для различных точечных групп симметрии рассматривался многими авторами (см., например, [16, 17, 35\*, 38\*]).

Если одно из приложенных электрических полей постоянно, например  $\omega_2 = 0$ , то (1.23) описывает линейный электрооптический эффект в среде, которая может быть поглощающей. Известно, что средняя по времени работа, совершаемая гармоническим полем частоты  $\omega$

<sup>1)</sup> При  $\omega_1 = \omega_2$  свойства симметрии тензора  $\chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$  и пьезоэлектрического тензора идентичны. Оба тензора симметричны по последним двум индексам. При  $\omega_1 \neq \omega_2$  тензор восприимчивости не обязательно симметричен по этим индексам.

(Несимметричная по двум последним индексам часть тензора  $\chi_{ijk}$ , отличная от нуля при  $\omega_1 \neq \omega_2$ , играет существенную роль в процессе генерации суммарных и разностных частот в ряде жидкостей, газов и поликристаллов. Антисимметричная часть является доминирующей нелинейностью в оптически активных жидкостях. Таблица отличных от нуля антисимметричных компонент тензора  $\chi_{ijk}$  для всех кристаллических классов дана в обстоятельной работе Джордмэйна [36\*]; там же методом возмущений выполнена и оценка величин нелинейной поляризуемости для жидкостей. — Прим. ред.)

над единицей объема диэлектрической среды, в случае, когда  $T$  много больше периода колебания, равна

$$W = \frac{1}{T} \int_0^T \mathbf{E} \cdot \frac{d\mathbf{P}}{dt} dt = -2\omega \operatorname{Im} \mathbf{E} \cdot \mathbf{P}^* = +2\omega \operatorname{Im} \mathbf{E}^* \cdot \mathbf{P}. \quad (1.24)$$

В линейном случае  $W = 2\omega \chi''(\omega) |\mathbf{E}|^2$ .

Заметим, что положительное поглощение имеет место при положительных значениях  $\chi''$  ( $\chi^L = \chi' + i\chi''$ ), с учетом того, что по нашему определению волна с положительной частотой характеризуется временной зависимостью  $\exp(-i\omega t)$ . В случае линейного электрооптического эффекта имеется дополнительное поглощение энергии:

$$W = 2\omega \chi''(\omega = \omega + 0) |\mathbf{E}|^2 E_{\text{пост}}.$$

Однако в случае генерации второй гармоники мнимая часть спектральной компоненты нелинейной восприимчивости  $\chi(2\omega = \omega + \omega)$  не связана с поглощением. Комплексное значение этой нелинейной восприимчивости определяет фазу поляризации с удвоенной частотой относительно фазы светового поля с исходной частотой. Средние по времени поглощаемая мощность и запасенная энергия равны нулю в случае, когда поляризация изменяется с частотой  $2\omega$  при поле, имеющем частоту  $\omega$ . Заметим, что пространственное изменение фазы поляризации с удвоенной частотой определяется волновым вектором первичной волны и имеет, согласно (1.23), вид  $\exp(2ik_1 \cdot r)$ .

При феноменологическом рассмотрении удобно использовать термодинамическую потенциальную функцию  $F$ , из которой путем дифференцирования можно получить поляризацию. Эта функция идентична свободной энергии и характеризует способность среды совершать работу над генераторами поля при постоянной энтропии. Если среда не имеет потерь, то тепло не выделяется и энтропия среды постоянна. Имеет смысл рассматривать только усредненную по времени функцию, полный дифференциал которой равен

$$\langle dF \rangle_t = - \sum_i \mathbf{P}(\omega_i) \cdot d\mathbf{E}_i - \sum_i \mathbf{P}^*(-\omega_i) \cdot d\mathbf{E}_i. \quad (1.25)$$

В случае линейной среды получаем известное выражение, квадратичное по амплитудам полей:

$$\langle F^L \rangle = -\operatorname{Re} \sum_i E^* (-\omega_i) \cdot \chi^L(\omega_i) \cdot E(\omega_i). \quad (1.26)$$

Нелинейность низшего порядка соответствует члену, кубическому по амплитудам Фурье. Рассмотрим, например, случай трех волн с частотами  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  и  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Усредненный по времени термодинамический потенциал будет иметь следующее

$$\langle F^{NL} \rangle = -2\operatorname{Re} [E_3^*(\omega_3) \chi^{NL}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E(\omega_1) E_2(\omega_2)]. \quad (1.27)$$

Отсюда получаем выражение для  $i$ -й компоненты поляризации с частотой  $\omega_3$ , обусловленной  $j$ -й компонентой поля с частотой  $\omega_1$  и  $k$ -й компонентой поля с частотой  $\omega_2$ :

$$P_i(\omega_3) = -\frac{\partial F}{\partial E_{i3}^*} = \chi_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_{j1} E_{k2}.$$

Далее, так как в случае среды без потерь восприимчивость  $\chi$  действительна, то

$$P_j(\omega_1) = -\left(\frac{\partial F}{\partial E_{j1}}\right)^* = \chi_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_{i3} E_{k2}^*.$$

Отсюда получаем условия симметрии по отношению к перестановке индексов<sup>1)</sup>.

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) &= \chi_{jik}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) = \\ &= \chi_{kij}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1). \end{aligned} \quad (1.28)$$

Если нелинейные восприимчивости действительны, то можно переставлять индексы при соответствующей перестановке частот. Если, кроме того, дисперсия во всей области частот, содержащей  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  и  $\omega_3$ , пренебре-

<sup>1)</sup> Далее в тексте эти соотношения называются также пространственно-частотными перестановочными соотношениями. Этим подчеркивается, что изменение частотных аргументов восприимчивостей связано, вообще говоря, с изменением порядка координатных индексов. — *Прим. ред.*

жимо мала, то частоты можно переставлять произвольным образом. В этом случае тензор нелинейной восприимчивости становится симметричным по всем индексам, которые можно переставлять произвольно. Эти соотношения для недиспергирующей среды впервые сформулировал Клейнман [18], а общие соотношения симметрии по индексам (1.28) были получены Армстронгом, Бломбергом, Дюкуэнгом и Першаном [19]<sup>1)</sup>. Они могут быть проверены в каждом конкретном случае непосредственным расчетом. В частности, они имеют место для ангармонического осциллятора без затухания.

Наличие компоненты нелинейной поляризации с частотой  $\omega_i$ , сдвинутой по фазе на  $90^\circ$  относительно поля с той же частотой, обуславливает поглощение или усиление на этой частоте. Например, средняя по времени работа, совершаемая волной  $E_3$ , имеющей частоту  $\omega_3$ , равна

$$W(\omega_3) = -i\omega_3 (E_3 \cdot P_3^* - E_3^* \cdot P_3) = 2\omega_3 \operatorname{Im} E_3^* \cdot P_3.$$

Суммарная работа над средой, совершаемая в единицу времени всеми тремя волнами и представляющая скорость нагревания среды, равна

$$\begin{aligned} W &= -2 \operatorname{Im} \sum_{ijk} [\omega_3 \chi_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) - \\ &- \omega_1 \chi_{jik}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) - \omega_2 \chi_{kij}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1)] E_{1j}^* E_{2k}^* E_{3i}. \end{aligned} \quad (1.29)$$

В случае среды без потерь, когда восприимчивость  $\chi$  действительна и удовлетворяет соотношениям симметрии (1.28), это выражение, естественно, равно нулю. В этом приближении поглощаемая на частоте  $\omega_3$  мощность излучается на частотах  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , а мощность, поглощаемая на частотах  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , излучается на частоте  $\omega_3$ .

Если первоначально существовали только волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , то образуется фазированная решетка диполей, осциллирующих с частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Излучаемое этой решеткой поле с частотой  $\omega_3$  будет рассчита-

<sup>1)</sup> См. также [20].

но в одной из последующих глав. В настоящей главе поля считаются заданными и рассчитываются индуцированные поляризации, линейные и нелинейные. В дальнейшем мы будем рассматривать эти поляризации, в свою очередь, как источники полей, и найдем самосогласованные решения с помощью уравнений Максвелла.

Рассмотрим генерацию второй гармоники волной нелинейной поляризации

$$P^{NL}(2\omega) = \chi(2\omega = \omega + \omega) E_1^2 e^{2ik_1 \cdot r - 2i\omega t}$$

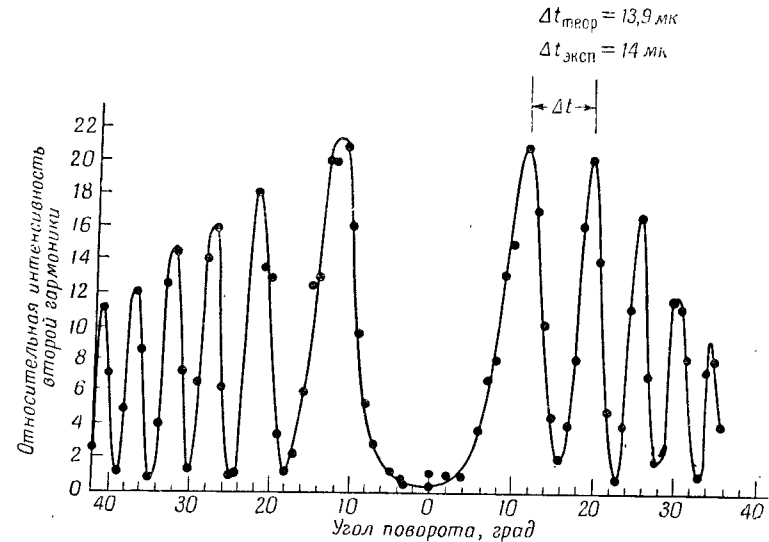
в присутствии электромагнитной волны частоты  $2\omega$ ,  $E_2 \exp(ik_2 \cdot r - 2i\omega t)$ . Вследствие обычной частотной дисперсии фазовые скорости распространения электромагнитной волны частоты  $2\omega$  и волны нелинейной поляризации будут отличны ( $k_2 \neq 2k_1$ ). Фазы этих волн «разойдутся» на  $\pi$  на расстоянии  $l_{\text{кор}}$ , определяемом равенством  $(k_2 - 2k_1) \cdot l_{\text{кор}} = \pi$ . Поэтому знак поглощаемой из поля второй гармоники мощности

$$-W(\omega) = W(2\omega) = 2\omega \operatorname{Im} E_2^* P^{NL}(2\omega)$$

будет периодически изменяться с расстоянием. После того как волна второй гармоники нарастет до определенной величины (это сопровождается соответствующим уменьшением мощности первичной волны) она снова начнет поглощаться, а мощность первичной волны возрастать и т. д. Этот «интерференционный» эффект можно наглядно продемонстрировать, если в экспериментальной установке, изображенной на фиг. 1, изменять оптическую толщину нелинейного кристалла путем вращения его или изменения температуры. Характерная зависимость мощности второй гармоники от толщины кристалла, полученная Терхьюном и др. [21], представлена на фиг. 2. Расстояние между двумя смежными максимумами соответствует изменению оптического пути на  $2l_{\text{кор}}$ . Джордмейн [22] и Терхьюн [21] показали, что это рассогласование фазовых скоростей, связанное с частотной дисперсией, можно скомпенсировать, используя взаимодействие обыкновенной и необыкновенной волн в одноосных кристаллах. Фиг. 3 демонстрирует чрезвычайно большой рост интенсивности второй гармоники при согласовании фазовых скоростей обыкновенного и

второй гармоники со скоростью обыкновенного луча первичной волны (при  $k_1 \parallel k_2$  согласование фазовых скоростей в этих опытах сводится к их уравниванию).

Если  $\omega_1$  — оптическая частота, а  $\omega_2$  лежит в диапазоне СВЧ, то поляризация на частотах  $\omega_1 \pm \omega_2$  приводит к появлению боковых частот у оптической несущей. Эта СВЧ



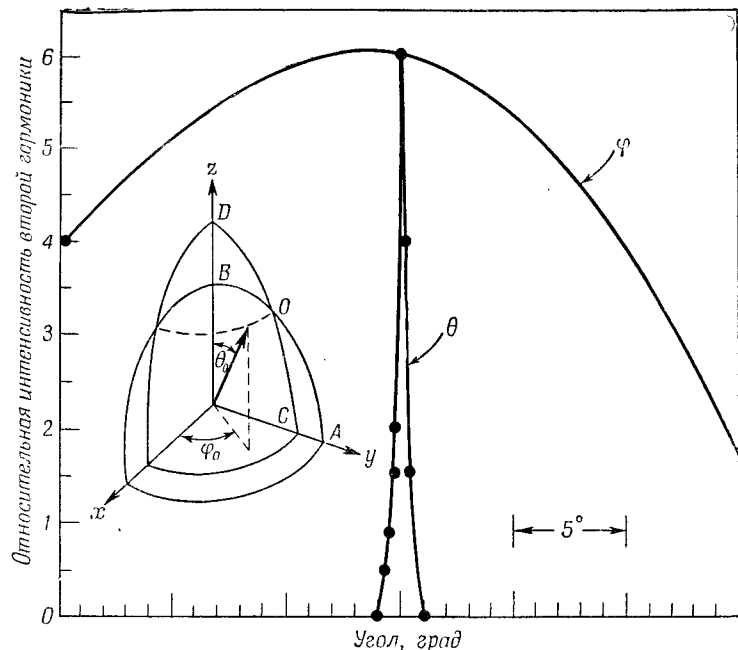
Фиг. 2. Зависимость интенсивности гармоники от оптической толщины пьезоэлектрического кристалла для случая, когда фазовые скорости исходной волны и волны второй гармоники не согласованы (по данным работы [21]).

модуляция света имеет большое значение для связи [23, 24]. Согласование скоростей здесь также существенно в случаях, когда протяженность устройства больше одной длины волны модулирующего сигнала<sup>1)</sup>. Эксперимен-

<sup>1)</sup> Для модулированных волн, с которыми мы имеем дело в этом примере, должны быть согласованы уже не фазовые скорости, а групповая скорость модулированной волны и фазовая скорость модулирующей волны. В так называемом модуляторе бегущей волны модуляция эффективна, если проекция групповой скорости света на направление распространения модулирующей волны равна фазовой



тально наблюдался также обратный процесс, при котором биения двух световых лучей приводили к генерации СВЧ мощности на разностной частоте.



Фиг. 3. Графики, характеризующие зависимость интенсивности второй гармоники в кристалле  $\text{KN}_2\text{PO}_4$  от углов  $\theta$  и  $\varphi$ , образованных волновым вектором основного излучения с осями кристалла (по данным работы [21]).

Ось  $z$  — оптическая ось кристалла. Резкое возрастание интенсивности гармоники при  $\theta = \theta_0$  соответствует согласованию фазовых скоростей необыкновенной волны частоты  $2\omega$  и обыкновенной волны частоты  $\omega$ .

Возможно также наблюдение суммарной частоты при взаимодействии двух различных световых пучков. Наконец, при  $\omega_2 = -\omega_1$  и  $E_2 = E_1^*$  соотношение (1.23) описывает также появление статической нелинейной поляризации («выпрямление» света). В этом случае на продольных гранях кристалла появляется постоянное напряжение, которое наблюдалось Франкеном и др. [25]. Этот

эффект можно рассматривать как обратный линейный электрооптический эффект.

Обратимся теперь к рассмотрению нелинейной поляризации следующего порядка малости:

$$P^{NL}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \chi E_1 E_2 E_3 e^{i(k_1 + k_2 + k_3) \cdot r - i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t}$$

Отметим сразу же, что входящий сюда тензор восприимчивости четвертого ранга отличен от нуля для всех групп точечной симметрии<sup>1)</sup>. В изотропных жидкостях также возможен целый ряд явлений, связанных с нелинейностью подобного типа.

При  $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3$  записанная выше нелинейная поляризация обуславливает генерацию третьей гармоники, что впервые наблюдалось Терхьюном и др. [11]. При  $\omega_1 = \omega_2 = -\omega_3$  и  $E_1 = E_2 = E_3^*$  нелинейная поляризация содержит компоненту

$$P_i^{NL}(\omega_1) = \sum \chi_{ijkl} (\omega_1 = -\omega_1 + \omega_1 - \omega_1) \times E_j^*(-\omega_1) E_k(\omega_1) E_l(+\omega_1). \quad (1.30)$$

Действительная часть входящей сюда спектральной компоненты восприимчивости описывает изменение показателя преломления, пропорциональное интенсивности светового луча, мнимая же часть описывает зависимость коэффициента поглощения света от интенсивности. В частности, она описывает начальную стадию эффекта насыщения, хорошо известного в области магнитного резонанса. Эта компонента велика, когда частота  $\omega_1$  близка к резонансной. Этот эффект используется в так называемых насыщающихся фильтрах, которые становятся прозрачными при больших потоках мощности [26]. Компонента мнимой нелинейной восприимчивости, максимальная при резонансе среды на частоте  $2\omega_1$ , описывает двухквантовое поглощение, наблюдавшееся Гарреттом и Кайзером [27]. В работе [27] была обнаружена голубая флуоресценция ионов  $\text{Eu}^{2+}$  в  $\text{CaF}_2$  при облучении их светом рубинового лазера. Красные кванты не могут возбудить ион путем независимых последовательных одно-

<sup>1)</sup> Таблицу отличных от нуля компонент  $\chi_{ijkl}$  для всех кристаллических классов можно найти в [37\*]. — Прим. ред.

квантовых процессов; подтверждением двухквантовой природы наблюдавшейся флуоресценции была ее пропорциональность квадрату интенсивности излучения рубинового лазера.

В изотропной жидкости тензор четвертого ранга имеет только две независимые компоненты. В этом случае соотношение (1.30) может быть записано в векторной форме

$$P^{NL}(\omega) = \chi_{44}(\omega) \mathbf{E}(\omega) (\mathbf{E}(\omega) \cdot \mathbf{E}^*(-\omega)) + \chi_{12} \mathbf{E}^*(-\omega) (\mathbf{E}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega)), \quad (1.31)$$

где использованы обозначения Фойгта:

$$1 = xx, \quad 2 = yy, \quad 4 = xy.$$

Терхьюн продемонстрировал существование компоненты  $\chi_{12}$ . Этот эксперимент будет более подробно обсуждаться в гл. 5.

Если положить  $\omega_1 > \omega_2 = -\omega_3$  и считать для простоты, что поле  $E_2$  линейно поляризовано в направлении  $x$ , то нелинейная поляризация с частотой  $\omega_1$  будет иметь следующие компоненты:

$$\begin{aligned} P_x^{NL}(\omega_1) &= \chi_{11} E_{1x} |E_{2x}|^2, \\ P_y^{NL}(\omega_1) &= \chi_{21} E_{1y} |E_{2x}|^2, \\ P_z^{NL}(\omega_1) &= \chi_{31} E_{1z} |E_{2x}|^2. \end{aligned}$$

Действительные части этих компонент поляризации описывают изменение показателя преломления на частоте  $\omega_1$  в присутствии поля с частотой  $\omega_2$ . При  $\omega_2 = 0$  эти соотношения просто описывают квадратичный электрооптический эффект (эффект Керра), т. е. двулучепреломление, возникающее в электрическом поле.

Мнимая часть  $\chi'' > 0$  представляет положительное поглощение, пропорциональное интенсивности поля на частоте  $\omega_2$ . Заметим, что фаза этой нелинейной поляризации фиксирована относительно фазы поля этой же частоты.

Изменение средней по времени плотности свободной энергии, обусловленное одновременным присутствием

полей с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  и биквадратное по амплитудам этих полей, можно представить в следующем виде:

$$F^{NL} = -2\text{Re} \chi_{11} |E_{1x}|^2 |E_{2x}|^2 - 2\text{Re} \chi_{12} |E_{2x}|^2 (|E_{1y}|^2 + |E_{1z}|^2).$$

Средняя по времени суммарная мощность, поглощаемая средой, равна

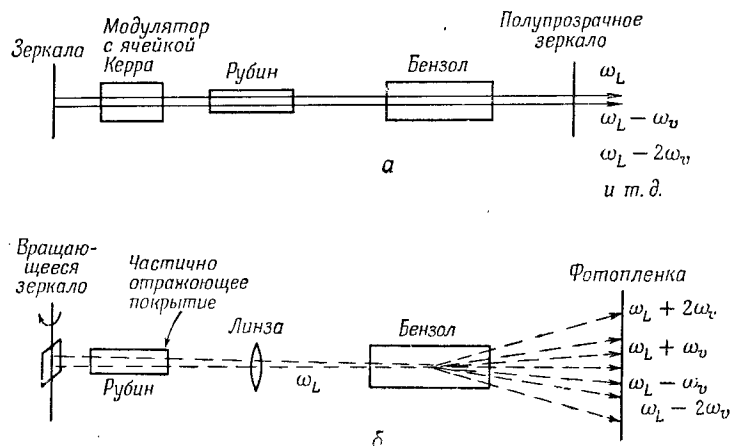
$$W = 2(\omega_1 - \omega_2) [\text{Im} \chi_{11} (\omega_1 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_2) |E_{1x}|^2 |E_{2x}|^2 + \text{Im} \chi_{12} (|E_{1y}|^2 + |E_{1z}|^2) |E_{2x}|^2].$$

Здесь было использовано соотношение симметрии для тензора комплексной восприимчивости типа (1.17). Это соотношение имеет место, если существенна только одна резонансная частота среды, близкая к  $\omega_2 - \omega_1$ , а затухание  $\Gamma$  можно удержать только в одном из знаменателей. Такое условие удовлетворяется в модели ангармонического осциллятора.

Согласно (1.17), при резонансе ( $\omega_1 - \omega_2 = \omega_0$ )  $\text{Im} \chi_{11}(\omega_2 = \omega_2 + \omega_1 - \omega_1) < 0$ ; на меньшей частоте  $\omega_2$  поглощение отрицательно, а на большей частоте  $\omega_1$  положительно. При достаточно большом значении  $|E(\omega_1)|^2$  отрицательное поглощение, связанное с  $\chi_{11}$ , может превысить все потери на частоте  $\omega_2$ , и напряженность поля  $E_2(\omega_2)$  будет экспоненциально нарастать в пространстве, причем постоянная нарастания пропорциональна интенсивности поля на частоте  $\omega_1$ . Если усиление достаточно велико и имеется обратная связь, то на частоте  $\omega_2$  может возникнуть генерация. Строгое рассмотрение процесса самовозбуждения колебаний возможно лишь на основе квантовой механики [здесь существенно спонтанное излучение, поскольку при  $E(\omega_2) = 0$ ,  $P^{NL}(\omega_2) = 0$ ]. Грубо спонтанное излучение можно рассматривать как шум, вызванный нулевыми колебаниями осцилляторов. Этот шум усиливается и приводит к самовозбуждению автоколебаний.

Рассмотренный эффект соответствует процессу вынужденного комбинационного рассеяния, при котором поглощается квант  $\hbar\omega_1$ , излучается квант  $\hbar\omega_2$  (стоксова частота), а энергия системы увеличивается на  $\hbar\omega_0 =$

$= \hbar(\omega_1 - \omega_2)$ . Эффект вынужденного комбинационного рассеяния был открыт Вудбери и др. [28]. Они обнаружили, что при определенных условиях рубиновый лазер,



Фиг. 4. *a* — схема генератора, использующего эффект вынужденного комбинационного рассеяния; *b* — схема эксперимента по наблюдению вынужденного излучения со стоксовой и антистоксовой частотами вне оптического резонатора (лазерный луч фокусируется в объем рассеивающей среды).

в котором между зеркалами резонатора помещена ячейка с жидкостью, помимо основного излучения с  $\lambda = 6943 \text{ \AA}$  излучает дополнительную частоту. Разность основной и дополнительной частот оказывается равной частоте колебательного перехода молекул соответствующей жидкости. Дополнительное излучение возникает при превышении определенного порогового уровня мощности основного излучения лазера <sup>1)</sup>.

Эффект проявляется вполне четко, как только превышен порог. Он наблюдался в большом числе различных

<sup>1)</sup> Таким образом, в опытах Вудбери и др. исследовался генератор, использующий эффект вынужденного комбинационного рассеяния; обратная связь на частоте  $\omega_2$  осуществлялась за счет отражений от зеркал лазерного резонатора. Такой генератор в литературе называют также раман-лазером или комбинационным лазером. — *Прим. ред.*

жидкостей, а также в твердых телах и газах. В последующих работах было выяснено, что эффект возможен также и вне лазерного резонатора, если луч лазера фокусируется внутри кристалла или ячейки с исследуемой жидкостью. Если имеется излучение и на лазерной частоте  $\omega_1$  и на стоксовой частоте  $\omega_2$ , то возникает нелинейная поляризация на антистоксовой частоте  $2\omega_1 - \omega_2$ . Эта компонента определяется восприимчивостью, данной выражением (1.18) с тем же резонансным знаменателем  $D(\omega_1 - \omega_2)$ . Терхьюн [29] первый обнаружил излучение на антистоксовой частоте. Это излучение имеет характерную коническую диаграмму направленности. Естественно, будут существовать и компоненты поляризации с другими комбинационными частотами  $\omega_1 + n(\omega_1 - \omega_2)$ ,  $\omega_1 - n(\omega_1 - \omega_2)$  и т. д. Явление вынужденного комбинационного рассеяния будет обсуждаться более подробно в гл. 5. Типичные схемы экспериментов показаны на фиг. 4.

#### § 4. План дальнейшего изложения

В этой главе мы ввели нелинейную поляризацию и выразили ее через приложенные поля, которые предполагались заданными. Следующий логический шаг заключается в рассмотрении этой нелинейной поляризации как дополнительного источника полей. Этот второй шаг будет сделан в гл. 3. Читатель, не желающий прерывать изучение классической трактовки нелинейных оптических эффектов, может опустить следующую главу, в которой нелинейная восприимчивость рассчитывается квантовомеханически с целью дальнейшего выяснения атомного механизма нелинейности. В гл. 2 мы не будем ограничиваться рассмотрением чисто дипольного взаимодействия. В ней установлены некоторые общие соотношения, связывающие действительные и мнимые части нелинейных восприимчивостей и основные квантовые процессы; кратко обсуждаются также пределы применимости полуклассического рассмотрения полей.

В гл. 3 нелинейные материальные уравнения включаются в систему уравнений Максвелла. Взаимодействие между световыми волнами в нелинейной среде рассмат-

ривается в гл. 4. Даны решения связанных волновых уравнений для параметрических эффектов и эффектов типа комбинационного рассеяния<sup>1)</sup>. Рассмотрено также взаимодействие световых и упругих волн. На основании анализа граничных условий для нелинейной среды обобщены оптические законы отражения, преломления и т. д.

Краткий обзор экспериментальных результатов и их интерпретация даны в гл. 5. Обсуждаются величины нелинейных восприимчивостей различных материалов. Особое внимание уделяется анализу экспериментальных данных по комбинационному рассеянию. Некоторые частные вопросы, включающие задачу о нелинейности в лазерных генераторах, упомянуты в гл. 6. В качестве приложения в книгу для удобства читателей включены три ранее опубликованные статьи, что позволило опустить в основном тексте некоторые довольно сложные расчеты.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Franken P. A., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 7, 118 (1961).
2. Franken P. A., Ward J. F., Rev. Mod. Phys., 35, 23 (1963).
3. Bloembergen N., Proc. IEEE, 51, 124 (1963).
4. Pershan P. S., Progress in Optics, Amsterdam (в печати).

<sup>1)</sup> Здесь и далее автор пользуется введенной им ранее классификацией нелинейных волновых взаимодействий (см., например, приложение III к книге). Параметрическими он называет волновые взаимодействия, характер протекания которых существенно зависит от фазовых соотношений между взаимодействующими волнами (таким, как генерация гармоник, смешение, собственно параметрическое усиление и т. п.), а комбинационными — взаимодействия типа стоксова комбинационного рассеяния, которые зависят от квадратов амплитуд (чисел фотонов) и не зависят от фаз. Подробную мотивировку такой классификации можно найти также в [39\*]. Определенным неудобством указанной терминологии является то обстоятельство, что часто термин «параметрическое взаимодействие» понимается в более узком смысле (см., в частности, приложение I). Поэтому далее, там, где использование термина «параметрическое взаимодействие» может вызвать неясности, сделаны примечания. Отметим также, что более удачными представляются используемые также в литературе для обозначения вышеуказанных типов взаимодействий термины «когерентные» и «некогерентные» волновые взаимодействия. — *Прим. ред.*

5. McClung F. J., Hellwarth R. W., Proc. IEEE, 51, 46 (1963).
6. Ward J. F., Franken P. A., Phys. Rev., 133, A183 (1964).
7. Lax B., Mavroides J. G., Edwards D. F., Phys. Rev. Lett., 8, 166 (1962).
8. Whitmer R. F., Barrett E. B., Phys. Rev., 121, 661 (1961); 125, 1478 (1962).
9. Becker R., Elektronen Theorie, Leipzig, 1933. (Имеется перевод: Р. Беккер, Электронная теория, М., 1941.)
10. Rayleigh, Theory of Sound, vol. 1, New York, 1945, p. 76. (Имеется перевод: Релей, Теория звука, т. I, М.—Л., 1940.)
11. Terhune R. W., Maker P. D., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., 8, 404 (1962).
12. Brossel J., Cagnac B., Kastler A., Journ. Phys. Rad., 15, 6 (1954).
13. Kusch P., Phys. Rev., 93, 1022 (1954).
14. Bloch F., Phys. Rev., 102, 104 (1956).
15. Ayres W. P., Vartanian P. H., Melchor J. L., Journ. Appl. Phys., 27, 188 (1956).
16. Nye J. F., Physical Properties of Crystals, Oxford, 1957. (Имеется перевод: Дж. Най, Физические свойства кристаллов, ИЛ, 1962.)
17. Smith C. S., Solid State Physics, vol. 5, ed. Seitz F., Turnbull D., New York, 1958.
18. Kleinman D. A., Phys. Rev., 126, 1977 (1962).
19. Armstrong J. A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S., Phys. Rev., 127, 1918 (1962). (См. приложение I к настоящей книге).
20. Карпман В. И., ЖЭТФ, 44, 1307 (1963).
21. Maker P. D., Terhune R. W., Nisenhoff M., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., 8, 21 (1962).
22. Giordmaine J. A., Phys. Rev. Lett., 8, 19 (1962).
23. Kamipow I. P., Liu J., Proc. IEEE, 51, 132 (1963).
24. Peters C. J., Proc. IEEE, 51, 147 (1963).
25. Bass M., Franken P. A., Ward J. F., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 9, 446 (1962).
26. Sorokin P. P., Luzzi J. J., Lankard J. R., Pettit G. D., IBM Journ. Res., 8, 182 (1964).
27. Kaiser W., Garrett G. C. B., Phys. Rev. Lett., 7, 229 (1961).
28. Eckhardt G., Hellwarth R. W., McClung F. J., Schwarz S. E., Weiner D., Woodbury E. J., Phys. Rev. Lett., 9, 455 (1962).
29. Terhune R. W., Bull. Am. Phys. Soc., II (8), 359 (1963).
30. Terhune R. W., Solid State Design, 4, 38 (November 1963). (Имеется перевод в сборнике «Зарубежная радиоэлектроника», № 6, М., 1964.)
- 31\*. Li-Yin-Yuan, Acta Phys. Sinica, 20, 164 (1964)<sup>1)</sup>.

<sup>1)</sup> Здесь и далее звездочками отмечены работы, добавленные редакторами перевода. — *Прим. ред.*

- 32\*. Kielich S., Bull. Acad. Polon. Sci., **12**, 53 (1964).  
 33\*. Ахманов С. А., Клышко Д. Н., ЖЭТФ, письма в редакцию, **2**, 15 (1965).  
 34\*. Terhune R. W., Maker P. D., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., **14**, 681, 1965.  
 35\*. Ахманов С. А., Хохлов Р. В., Проблемы нелинейной оптики, М., 1964, гл. V.  
 36\*. Giordmaine J. A., Phys. Rev., **138**, A1599 (1965).  
 37\*. Maker P. D., Terhune R. W., Savage C. M., Proceedings Third Conference on Quantum Electronics, Paris, 1963, ed P. Grivet, N. Bloembergen, New York, 1964, p. 1559.  
 38\*. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М., Электродинамика сплошных сред, М., 1957.  
 39\*. Файн В. М., Ханин Я. И., Квантовая радиофизика, М., 1965.

## КВАНТОВАЯ ТЕОРИЯ НЕЛИНЕЙНЫХ ВОСПРИИМЧИВОСТЕЙ

### § 1. Уравнение Лиувилля для матрицы плотности <sup>1)</sup>

В отсутствие переменных внешних полей квантовомеханическая система, описываемая гамильтонианом  $\mathcal{H}_0$ , имеет не зависящие от времени собственные состояния  $u_n$  с энергиями  $W_n$ , которые являются решениями уравнения Шредингера

$$\mathcal{H}_0 u_n = W_n u_n. \quad (2.1)$$

Функции  $u_n$  образуют полную систему ортогональных функций. Отклик рассматриваемой квантовомеханической системы на зависящее от времени возмущение  $\mathcal{H}_1(t)$  описывается зависящей от времени волновой функцией, которую можно представить в виде ряда по  $u_n$  с коэффициентами, зависящими от времени.

$$\psi(t) = \sum_n c_n(t) u_n. \quad (2.2)$$

Коэффициенты  $c$  удовлетворяют дифференциальным уравнениям

$$\dot{c}_k = -i\hbar^{-1} \sum_n c_n (k | \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1(t) | n). \quad (2.3)$$

Среднее значение некоторого оператора  $O$  в момент времени  $t$  равно

$$\langle O(t) \rangle = (\psi^*(t) | O | \psi(t)) = \sum_{k,m} O_{mk} c_k c_m^* = \text{Sp } O R, \quad (2.4)$$

<sup>1)</sup> Прекрасное изложение метода матрицы плотности и его применений см., например, в [1—3]. (См. также [33\*, 34\*]. — Прим. ред.)

где  $R$  — оператор с матричными элементами  $R_{km} = c_k c_m^*$ . Из уравнений (2.3) следует, что  $R$  удовлетворяет дифференциальному уравнению

$$\dot{R} = i\hbar^{-1} (R\mathcal{H} - \mathcal{H}R) = i\hbar^{-1} [\mathcal{H}, R]. \quad (2.5)$$

Эта операторная форма справедлива в любом представлении и особенно удобна в случае, когда имеется ансамбль систем, описываемых одним и тем же гамильтонианом  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1(t)$ . Среднее по ансамблю  $\bar{R} = \rho$  называется матрицей плотности; эта матрица удовлетворяет уравнению движения

$$\dot{\rho} = -i\hbar^{-1} [\mathcal{H}, \rho]. \quad (2.6)$$

Если известны средние начальные условия для ансамбля, то решение этого уравнения позволяет найти среднее по ансамблю любой физической величины, изображаемой оператором  $O$ :

$$\langle O \rangle = \text{Sp}(\rho O). \quad (2.7)$$

Так как  $\mathcal{H}_0$  не зависит от времени, а  $\mathcal{H}_1(t)$  мы рассматриваем как малое возмущение, то решение можно найти в виде ряда по степеням  $\mathcal{H}_1$ . Перейдем к представлению взаимодействия

$$\begin{aligned} \rho' &= e^{+(i/\hbar)\mathcal{H}_0 t} \rho e^{-(i/\hbar)\mathcal{H}_0 t}, \\ \mathcal{H}'_1 &= e^{+(i/\hbar)\mathcal{H}_0 t} \mathcal{H}_1 e^{-(i/\hbar)\mathcal{H}_0 t}. \end{aligned} \quad (2.8)$$

В этом представлении  $\rho'$  удовлетворяет уравнению

$$\frac{d\rho'}{dt} = -i\hbar^{-1} (\mathcal{H}'_1, \rho' - \rho' \mathcal{H}'_1), \quad (2.9)$$

которое можно решить методом последовательных приближений:

$$\begin{aligned} \rho'(t) &= \rho'(0) - i\hbar^{-1} \int_0^t [\mathcal{H}'_1(t'), \rho'(0)] dt' - \\ &- \hbar^{-2} \int_0^t dt' \int_0^{t'} dt'' [\mathcal{H}'_1(t'), [\mathcal{H}'_1(t''), \rho'(0)]] + \dots \end{aligned} \quad (2.10)$$

Можно, конечно, совершить обратный переход к гейзенберговскому представлению  $\rho(t)$ , что завершает формальное решение с помощью теории возмущений для нестационарных процессов.

## § 2. Случайные возмущения и затухание

Как следует из материала гл. 1, нас будет интересовать в основном стационарный отклик на возмущение периодическими электромагнитными полями. Однако все рассматриваемые нами системы подвержены неизбежным стохастическим возмущениям. Затухание, которое было введено в классические уравнения движения феноменологическим образом, обусловлено усредненным действием этих возмущений. Физическое происхождение этих случайных возмущений различно. Тепловое движение в жидкостях, колебания решетки в кристаллах, спонтанное излучение, безызлучательный распад при спонтанной эмиссии фононов, столкновения с электронами проводимости, ионные или молекулярные столкновения в газе — все эти процессы могут быть причиной возмущений. При полуклассическом подходе случайное возмущение  $\mathcal{H}_1(t)$  — оператор, действующий только на рассматриваемую материальную систему. Изменения электромагнитных полей, колебания, движение частиц описываются классически стохастическим образом. Среднее значение  $\langle \mathcal{H}'_1(t) \rangle = 0$ , т. е. все матричные элементы  $\langle (m | \mathcal{H}'_1 | n) \rangle$  исчезают при усреднении. Если имеется неисчезающая часть, то ее можно включить в  $\mathcal{H}_0$ . Стохастический процесс предполагается стационарным, так что корреляционные функции типа  $\langle \mathcal{H}'_{1,kl}(t) \mathcal{H}'_{1,mn}(t + \tau) \rangle$  не зависят от  $t$ . Спектральные плотности могут быть определены путем фурье-преобразования этих функций корреляции. Существенно, что спектры рассматриваемых стохастических процессов достаточно широки, вследствие чего может быть введено конечное время корреляции  $\tau_c$ , такое, что

$$\overline{\mathcal{H}'_{1,kl}(t) \mathcal{H}'_{1,mn}(t + \tau)} = 0 \text{ при } \tau > \tau_c.$$

Рассмотрим решение (2.10) уравнения (2.9) при  $t \gg \tau_c$ . Возьмем среднее по всем процессам затухания. Корреляцией между  $\rho'(0)$  и  $\mathcal{H}'(t')$  можно пренебречь. В принципе начальное значение  $\rho'(0)$  определяется непосредственно предшествовавшими значениями  $\mathcal{H}(t)$ , которые в свою очередь коррелируют с непосредственно следующими за ними значениями  $\mathcal{H}(t')$ . Однако корреляция между  $\mathcal{H}(t')$  и  $\rho'(0)$  исчезает при  $t' > \tau_c$ , и основной вклад в интегралы в (2.10) дают интервалы времени, для которых  $t'' > \tau_c$ ,  $t' > \tau_c$ , но  $t' - t'' < \tau_c$ . Перейдем от переменной  $t''$  к  $\tau = t' - t''$ . Предел интегрирования по  $\tau$  по этой же причине может быть распространен до  $+\infty$ . Если члены высшего порядка в (2.10) пренебрежимо малы, то усредненное решение для  $t \gg \tau_c$  при случайном возмущении равно

$$\rho'(t) = \rho'(0) - t\hbar^{-2} \int_0^{\infty} \overline{[\mathcal{H}'_1(t), [\mathcal{H}'_1(t-\tau), \rho'(0)]]} d\tau. \quad (2.11)$$

Относительное изменение  $\rho'(t)$  составляет

$$\frac{\rho'(t) - \rho'(0)}{\rho'(0)} \approx \frac{t}{\rho'(0)} \frac{d\rho'}{dt} \approx -t\hbar^{-2} \overline{|\mathcal{H}'_1|^2} \tau_c. \quad (2.12)$$

Если среднее квадратичное возмущение достаточно мало и быстро изменяется, так что

$$\hbar^{-2} \overline{|\mathcal{H}'_1|^2} \tau_c^2 \ll 1, \quad (2.13)$$

то можно выбрать время таким образом, чтобы выполнялось условие  $t \gg \tau_c$  и вместе с тем имело место неравенство

$$\left| \frac{\rho'(t) - \rho'(0)}{\rho'(0)} \right| \ll 1.$$

При этих условиях члены высшего порядка в (2.10) действительно малы, поскольку отношение двух последующих приближений равно, очевидно,  $(\hbar^{-2} \langle |\mathcal{H}'_1| \rangle^2 \tau_c^2)^{1/2}$ . Следовательно, условие (2.13) позволяет записать (2.11) в виде

$$\left( \frac{d}{dt} \right)_{\text{случ}} \rho' = -\hbar^{-2} \int_0^{\infty} \overline{[\mathcal{H}'_1(t), [\mathcal{H}'_1(t-\tau), \rho'(t)]]} d\tau. \quad (2.14)$$

Если записать это операторное равенство в явном виде в представлении, в котором гамильтониан  $\mathcal{H}_0$  диагонален, то скорость изменения типичного матричного элемента выразится следующим образом:

$$\frac{d}{dt} \rho'_{kl} = \sum_{mn} e^{i(\omega_{km} - \omega_{ln})t} R_{kl, mn} \rho'_{mn},$$

где коэффициенты  $R$  не зависят от  $t$  вследствие стационарности. Если пренебречь малыми секулярными возмущениями, т. е. оставить только непериодические члены, для которых  $\omega_{km} = \omega_{ln}$ , то можно получить не зависящую от времени характеристическую матрицу затухания

$$\frac{d}{dt} \rho'_{kl} = \sum_{mn} R_{kl, mn} \rho'_{mn}. \quad (2.15)$$

Если исключить возможность случайного вырождения и не рассматривать равное или почти равное расстояние между уровнями, то единственными несекулярными членами, вызванными стохастическим возмущением, будут релаксационные члены

$$\frac{d}{dt} \rho'_{kl} = R_{klkl} \rho'_{kl}, \quad (2.16)$$

$$\frac{d}{dt} \rho'_{kk} = \sum_m R_{kkmm} \rho'_{mm} = \sum_m \omega_{km} \rho'_{mm} - \left( \sum_m \omega_{mk} \right) \rho'_{kk}.$$

Последнее равенство соответствует скоростным уравнениям, описывающим изменение населенностей различных энергетических уровней. Коэффициент  $\omega_{km}$  может быть идентифицирован с пропорциональной времени вероятностью перехода между уровнями  $k$  и  $m$ . Расписывая коммутаторы в (2.14), получаем<sup>1)</sup>

$$\omega_{km} = \hbar^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} \overline{\mathcal{H}'_{km}(t) \mathcal{H}'_{mk}(t-\tau)} e^{-i\omega_{km}\tau} d\tau. \quad (2.17)$$

<sup>1)</sup> В (2.15) и (2.17) константы затухания выражены через возмущение в представлении Шредингера с явными экспоненциальными временными факторами. Сама матрица плотности все еще рассматривается в представлении взаимодействия.

Таким образом, вероятность перехода пропорциональна спектральной плотности матричного элемента, связывающего уровни, разность энергий которых соответствует частоте  $\omega_{km}$ . Все диагональные элементы релаксируют связанным образом, так что система с  $\mathfrak{N}$  энергетическими уровнями, удовлетворяющими соотношению  $\sum \rho_{kk} = 1$ , имеет  $\mathfrak{N} - 1$  характерных времен релаксации.

Затухание недиагональных элементов  $\rho_{kl}$  можно получить аналогичным образом, рассматривая различные слагаемые в коммутаторах. Вклад недиагональных элементов возмущения равен

$$R_{klkl}^{\text{неад}} = -\frac{1}{2} \sum_n (\omega_{kn} + \omega_{ln}) = R_{lklk}^{\text{неад}}. \quad (2.18)$$

Адиабатическая часть затухания недиагональных элементов связана со случайными возмущениями энергетических уровней диагональными элементами стохастических процессов. В определенном смысле возмущения модулируют резонансную частоту и уширяют резонанс следующим образом:

$$\begin{aligned} R_{klkl}^{\text{ад}} &= -\hbar^{-2} \int_0^{\infty} \{ \overline{\mathcal{H}_{kk}(t) \mathcal{H}_{kk}(t-\tau)} + \overline{\mathcal{H}_{ll}(t) \mathcal{H}_{ll}(t-\tau)} - \\ &\quad - \overline{\mathcal{H}_{kk}(t) \mathcal{H}_{ll}(t-\tau)} - \overline{\mathcal{H}_{ll}(t) \mathcal{H}_{kk}(t-\tau)} \} d\tau = \\ &= \int_0^{\infty} \overline{\delta\omega_{kl}(t) \delta\omega_{kl}(t-\tau)} d\tau, \end{aligned} \quad (2.19)$$

где

$$\hbar\delta\omega_{kl}(t) = (k | \mathcal{H}_1(t) | k) - (l | \mathcal{H}_1(t) | l).$$

Наиболее серьезным недостатком этой полуклассической теории релаксации является то, что система релаксирует согласно (2.16) к конечному состоянию с равными друг другу диагональными элементами матрицы плотности. Это соответствует термодинамическому равновесию при бесконечно большой температуре. Из общих физических соображений следует ожидать, что в конечном состоянии система приобретает температуру резервуара, который обуславливает случайное движение, приво-

дящее к затуханию. В действительности, как это будет показано в § 8 настоящей главы, надлежащее квантование резервуара устраняет этот недостаток. А пока на основании принципа детального равновесия примем, что

$$\omega_{kn} = \omega_{nk} e^{-\hbar\omega_{kn}/kT}. \quad (2.20)$$

Это условие обеспечивает больцмановское распределение равновесных населенностей

$$\rho_{kk} = \rho_{nn} e^{-\hbar\omega_{kn}/kT}. \quad (2.21)$$

Недиагональные элементы релаксируют к нулевым значениям в соответствии с условием хаотичности фаз волновых функций при термодинамическом равновесии. Заметим также, что при воздействии стохастического возмущения<sup>1)</sup> среднее значение  $\rho_{kn}$  остается равным нулю. Случайный процесс не приводит в среднем к установлению определенных фазовых соотношений.

Следует заметить, что различные механизмы затухания не обязательно должны быть связаны с одной и той же температурой. Ярким примером этого является процесс накачки лазера некогерентным излучением. В теплом угле, охватываемом лампой-вспышкой, некогерентные излучательные процессы имеют высокую температуру, в других направлениях — много меньшую, а безызлучательные переходы, связанные с решеткой, характеризуются температурой кристалла. В газовом лазере процессы столкновений с электронами описываются одной температурой, столкновений со стенками — другой и т. д.

Любые стохастические процессы, удовлетворяющие основному условию (2.13), и в том числе процессы некогерентной накачки, можно учесть с помощью соответствующих феноменологических релаксационных членов.

Зависящее от времени когерентное возмущение состоит из одного или нескольких периодических слагаемых, имеющих очень большое или бесконечное время корреляции  $\tau_c$ . Спектральная плотность такого возмущения описывается  $\delta$ -функциями. Мы не будем рассматривать промежуточный случай, при котором  $\hbar^{-1} | \mathcal{H}_1 | \tau_c \approx 1$ .

<sup>1)</sup> С достаточно широким спектром. — Прим. перев.



После обратного перехода от представления взаимодействия к представлению Шредингера уравнение движения принимает вид

$$\dot{\rho} = -i\hbar^{-1} [\mathcal{H}_0, \rho] - i\hbar^{-1} [\mathcal{H}_{\text{кор}}(t), \rho] + R\rho, \quad (2.22)$$

где  $R$  связано с не зависящим от времени затуханием, определяемым равенствами (2.16) и (2.19) в представлении, в котором гамильтониан  $\mathcal{H}_0$  диагонален. Релаксационный член можно представить в операторной форме только в определенных частных случаях. Если имеется система энергетических уровней  $n$ , подверженных только неадиабатическим возмущениям, и если стохастическое возмущение связывает эти уровни только с уровнями  $\mu$ , не принадлежащими системе, то релаксационный член можно представить в виде  $-1/2(\Gamma\rho + \rho\Gamma)$ , где  $\Gamma$  — диагональная матрица,

$$\Gamma_{nn} = \sum_{\mu} w_{n\mu}.$$

Кроме рассмотренного выше однородного уширения, часто приходится иметь дело с неоднородным уширением, вызванным распределением резонансных частот. Такое уширение могут вызвать, например, внутренние напряжения в кристаллах. В некоторых случаях разумное приближение можно получить простым увеличением констант затухания  $R_{khl}$ , так чтобы они соответствовали наблюдаемому уширению линии. Однако такой метод может дать неправильные результаты. В принципе неоднородное уширение следует учитывать усреднением по распределению резонансных частот в конце расчета.

### § 3. Отклик на периодические возмущения

В то время как отклик на случайные возмущения рассматривался на основе временного подхода, стационарный отклик на периодические возмущения алгебраически проще рассчитывать с помощью спектрального подхода. Для получения решения в виде ряда по возрастающим степеням когерентного возмущения, так же как и в § 2, будет использоваться метод матрицы плотности [4] (см. также [5]).

В случае стационарного отклика уравнения являются алгебраическими. В первом приближении уравнения для типичных диагонального и недиагонального элементов имеют вид

$$-i\omega\rho_{kk}^{(1)} = \sum_n w_{kn}\rho_{nn}^{(1)} - \sum_n w_{nk}\rho_{kk}^{(1)} - i\hbar^{-1} [\mathcal{H}_{\text{кор}}(\omega), \rho^{(0)}]_{kk}, \quad (2.23)$$

$$-i\omega\rho_{kl}^{(1)} = -i\omega_{kl}\rho_{kl}^{(1)} - \Gamma_{kl}\rho_{kl}^{(1)} - i\hbar^{-1} [\mathcal{H}_{\text{кор}}(\omega), \rho^{(0)}]_{kl},$$

где  $\rho^{(0)}$  — стационарное решение для матрицы плотности в отсутствие когерентных возмущений. Диагональные элементы не обязательно имеют больцмановское распределение. На систему могут действовать некогерентные источники накачки, изменяющие стационарные населенности настолько, что для некоторых уровней будет иметь место инверсия. В обычных условиях  $\rho^{(0)}$  имеет распределение, соответствующее термодинамическому равновесию. Недиagonalные элементы  $\rho^{(0)}$  всегда равны нулю. При термодинамическом равновесии фазы распределены случайно; распределение фаз остается таковым и в присутствии некогерентной накачки.

Решение уравнений (2.23) в первом приближении определяет линейный отклик, который содержит те же фурье-компоненты, что и возмущение  $\mathcal{H}_{\text{кор}}(\omega)$ . Второе приближение получается при подстановке линейного приближения в уравнение движения. В общем случае член  $\mathcal{H}(\omega, \rho^{(1)})_{kk}$  будет содержать комбинации частот исходного возмущения. Например, компоненты с частотой второй гармоники определяются уравнениями

$$\begin{aligned} -2i\omega\rho_{kk}^{(2)}(2\omega) &= \sum_n w_{kn}\rho_{nn}^{(2)} - \sum_n w_{nk}\rho_{kk}^{(2)} - \\ &- i\hbar^{-1} [\mathcal{H}_{\text{кор}}(\omega), \rho^{(1)}(\omega)]_{kk}, \\ -2i\omega\rho_{kl}^{(2)}(2\omega) &= -i\omega_{kl}\rho_{kl}^{(2)}(2\omega) - \Gamma_{kl}\rho_{kl}^{(2)} - \\ &- i\hbar^{-1} [\mathcal{H}_{\text{кор}}(\omega), \rho^{(1)}(\omega)]_{kl}. \end{aligned} \quad (2.24)$$

Эта процедура может быть продолжена до бесконечности. В самом общем случае фурье-компонента с частотой  $5^*$

той  $\omega_n = \omega_{n-1} + \omega$  в  $n$ -м приближении, пропорциональная  $n$ -й степени возмущения, может быть найдена по фурье-компоненте с частотой  $\omega_{n-1}$  предыдущего приближения:

$$-i\omega_n \rho_{kl}^{(n)}(\omega_n) = -i\omega_{kl} \rho_{kl}^{(n)}(\omega_n) - \Gamma_{kl} \rho_{kl}^{(n)}(\omega_n) - i\hbar^{-1} [\mathcal{H}_{\text{кор}}(\omega), \rho^{(n-1)}(\omega_{n-1})]_{kl}. \quad (2.25)$$

Таким образом, имеется система алгебраических операций для нахождения спектральных компонент элементов матрицы плотности  $\rho$  в виде ряда по степеням возмущения. С помощью соотношения (2.7) для среднего значения физической величины  $O$  (которая сама может явно зависеть от времени) можно найти фурье-компоненты стационарного отклика любой физической величины.

Проиллюстрируем эту процедуру с помощью простого физического примера. Рассчитаем фурье-компоненты среднего значения электрического дипольного момента ансамбля локализованных одноэлектронных систем на частотах второй и третьей гармоник. Пусть когерентное возмущение имеет вид

$$\mathcal{H}_{\text{кор}}(t) = -ex[E_x e^{-i\omega t} + E_x^* e^{i\omega t}] \quad (2.26)$$

и пусть оператор дипольного момента  $ex$  имеет только действительные недиагональные элементы  $x_{ng} = x_{gn}$ ,  $x_{nn} = 0$ .

Согласно уравнениям (2.23), линейные фурье-компоненты матрицы плотности равны

$$\rho_{ng}^{(1)}(\omega) = \frac{-\hbar^{-1} ex_{ng} E_x e^{-i\omega t}}{\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} (\rho_{gg}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}); \quad (2.27)$$

аналогичные выражения для компонент на частоте  $-\omega$  получаются заменой  $\omega$  на  $-\omega$  и  $E_x$  на  $E_x^*$ . Среднее значение линейного электрического дипольного момента равно

$$\begin{aligned} \langle \mathcal{P}_{(\omega)}^{(1)} \rangle &= \sum_g \sum_n [ex_{gn} \rho_{ng}^{(1)}(\omega)] = \\ &= \sum_n \sum_g \frac{|ex_{gn}|^2 \hbar^{-1} 2\omega_{ng}}{\omega_{ng}^2 - (\omega + i\Gamma_{ng})^2} \rho_{gg}^{(0)} (E_x e^{-i\omega t}). \end{aligned} \quad (2.28)$$

Двойная сумма представляет комплексную восприимчивость системы. Если не делать различия между макроскопическим и действующим полями и пренебречь затуханием, то получим дисперсионную формулу Крамерса — Гейзенберга

$$\chi'(\omega) = 2N_0 \hbar^{-1} \sum_n |ex_{gn}|^2 \omega_{ng} (\omega_{ng}^2 - \omega^2)^{-1},$$

где  $N_0$  — плотность числа частиц в состоянии  $|g\rangle$ . Заметим, что выражение (2.28) действительно при  $\omega \rightarrow 0$ , т. е. в постоянном поле модель связанных зарядов не приводит к стационарным потерям. Эта особенность является следствием отдельного рассмотрения затухания матричных элементов  $\rho_{ng}(\pm\omega)$  и  $\rho_{gn}(\pm\omega)$ . В действительном представлении, при котором не делается различия между положительными и отрицательными частотами, приходится вносить поправку в релаксационные члены поперечных компонент (например, в уравнениях Блоха), так что релаксация происходит к термодинамическому равновесию, соответствующему мгновенному значению гамильтониана  $\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{кор}}(t)$ . Этот вопрос, детально разобранный Ван Флеком и Вайскопфом [6], для оптического диапазона имеет несколько академический интерес, поскольку роль антирезонансного члена, у которого  $\omega$  и  $\omega_{ng}$  имеют одинаковый знак, здесь пренебрежимо мала. Тем не менее с удовлетворением отмечаем, что наш подход дает правильные результаты даже на очень низких частотах. Заметим также, что мнимая часть изменяет знак при изменении знака  $\omega$ , поэтому знак поглощаемой мощности одинаков для положительных и отрицательных частот.

Рассмотрим далее нелинейную поляризацию низшего порядка, которая будет иметь фурье-компоненты с частотами второй гармоники  $\pm 2\omega$  и с нулевой частотой. Изменение населенности  $\rho_{nn}^{(2)}(0)$  соответствует эффекту насыщения. Так как диагональные элементы  $x_{nn}$  предполагаются равными нулю, то для расчета поляризации на частоте второй гармоники нужно определить только недиагональные элементы  $\rho_{n'n}^{(2)}(2\omega)$ . Из уравнения

(2.24) после подстановки в него (2.27) непосредственно получаем

$$\begin{aligned} \rho_{n'n}^{(2)}(2\omega) = & \sum_{n''} \frac{e^2 x_{n'n''} x_{n''n} E^2 e^{-2i\omega t}}{\hbar^2 (2\omega - \omega_{n'n} + i\Gamma_{n'n})(\omega - \omega_{n''n} + i\Gamma_{n''n})} \times \\ & \times (\rho_{n''n''}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) + \\ + & \sum_{n''} \frac{e^2 x_{n''n} x_{n'n''} E^2 e^{-2i\omega t}}{\hbar^2 (2\omega - \omega_{n'n} + i\Gamma_{n'n})(\omega - \omega_{n''n} + i\Gamma_{n''n})} (\rho_{n''n''}^{(0)} - \rho_{n'n'}^{(0)}). \end{aligned} \quad (2.29)$$

Среднее значение дипольного момента на частоте второй гармоники равно

$$\langle \mathcal{P}_x(2\omega) \rangle = \chi_{xxx}(2\omega) E^2 e^{-2i\omega t} = \sum_n \sum_{n'} e x_{nn'} \rho_{n'n}(2\omega). \quad (2.30)$$

В случае, когда затухание пренебрежимо мало, нелинейная восприимчивость может быть представлена в другой форме, если в выражении (2.29) сгруппировать члены, содержащие  $\rho_{n''n''}^{(0)}$ . Множитель  $2\omega - \omega_{n'n}$  в знаменателе при этом сокращается (этого не происходит при наличии затухания, так как в общем случае  $\Gamma_{n'n} \neq \Gamma_{n''n} + \Gamma_{n'n''}$ ). В отсутствие затухания, изменив индексы тройной суммы, получаем

$$\begin{aligned} \chi_{xxx}(2\omega) = & \sum_{g \neq n} \sum_{n' \neq n'} \sum_n N_0 e^3 x_{gn} x_{nn'} x_{n'g} \rho_{gg}^{(0)} \hbar^{-2} \times \\ & \times [(2\omega - \omega_{ng})^{-1} (\omega - \omega_{n'g})^{-1} + (2\omega + \omega_{ng})^{-1} \times \\ & \times (\omega + \omega_{n'g})^{-1} - (\omega + \omega_{ng})^{-1} (\omega - \omega_{n'g})^{-1}]. \end{aligned} \quad (2.31)$$

Отсюда следует, что эта нелинейная восприимчивость равна нулю в системах с центром инверсии, не имеющих случайного вырождения. В таких системах волновые функции  $g, n, n'$  имеют определенную четность и  $x$  связывает только состояния с противоположными четностями. Так как выражение (2.31) содержит нечетное число матричных элементов оператора  $x$ , то оно равно нулю.

В соответствии с нашим определением комплексных амплитуд эта нелинейная восприимчивость в два раза больше выражений, полученных в предыдущих работах [7].

Приведенные расчеты показывают, что метод матрицы плотности упрощает трудоемкие вычисления, связанные с использованием возмущенных волновых функций (такой подход применяется в приложении I) и в то же время позволяет естественным образом ввести затухание. Применение метода матрицы плотности позволяет описывать поглощение и дисперсию в одном порядке теории возмущений, поэтому он используется здесь и в приложении III. В приложении III приведены полные выражения для нелинейной поляризации с суммарной частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  в случае, когда на систему действуют два периодических электрических поля. Симметричная форма тензора нелинейной восприимчивости третьего ранга [см. формулу (2.23) приложения III] имеет место только в случае среды без потерь. Соотношения симметрии относительно перестановки индексов, полученные в гл. 1 из феноменологических энергетических соображений, подтверждаются, таким образом, непосредственными расчетами.

Аналогично, поляризация на частоте третьей гармоники может быть получена из следующего выражения:

$$\rho_{n''n}^{(3)}(3\omega) = \frac{- \sum_{n'} (e x_{n''n'} E_x^{(\omega)} \rho_{n'n}^{(2)}(2\omega) - \rho_{n''n'}^{(2)}(2\omega) e x_{n'n} E_x^{(\omega)})}{\hbar (3\omega - \omega_{n''n} + i\Gamma_{n''n})}. \quad (2.32)$$

При суммировании индекс  $n'$  можно положить равным  $n''$  или  $n$ , так что нам понадобятся фурье-компоненты диагонального элемента  $\rho_{nn}^{(2)}(2\omega)$ , которые при пренебрежении малым диагональным затуханием равны

$$\begin{aligned} \rho_{gg}^{(2)}(2\omega) = & \sum_n \frac{e^2 x_{ng} x_{gn} E^2 e^{-2i\omega t}}{\omega \hbar^2} \times \\ & \times \rho_{gg}^{(0)} \left[ \frac{1}{\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} + \frac{1}{\omega + \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} \right]. \end{aligned} \quad (2.33)$$

Подстановка (2.33) и (2.29) в (2.32) дает выражение для  $\rho_{n'n}^{(3)}(3\omega)$ , которое позволяет рассчитать поляризацию с частотой третьей гармоники:

$$P(3\omega) = \chi(3\omega) E^3 e^{-3i\omega t} = N_0 \sum_{n''} \sum_n e x_{nn''} \rho_{n''n}^{(3)}(3\omega).$$

В пренебрежении затуханием и изменением населенностей (что всегда оправдано практически) это выражение должно свестись к формуле (2.22) приложения I. Если затухание пренебрежимо мало, то можно перегруппировать слагаемые и изменить индексы. Это дает

$$\chi_{xxxx}^{(3\omega)} = \sum_{n''+g} \sum_{n'} \sum_{n+g} \sum_g \hbar^{-3} N_0 e^4 x_{gn} x_{nn'} x_{n'n''} x_{n''g} [ ] \rho_{gg}^{(0)}, \quad (2.34)$$

где

$$[ ] = (3\omega - \omega_{n''g})^{-1} (2\omega - \omega_{n'g})^{-1} (\omega - \omega_{ng})^{-1} - \\ - (3\omega + \omega_{n''g})^{-1} (2\omega + \omega_{n'g})^{-1} (\omega + \omega_{ng})^{-1} + \\ + (\omega - \omega_{n''g})^{-1} (2\omega - \omega_{n'g})^{-1} (\omega + \omega_{ng})^{-1} - \\ - (\omega + \omega_{n''g})^{-1} (2\omega + \omega_{n'g})^{-1} (\omega - \omega_{ng})^{-1}.$$

Это выражение с точностью до множителя 4 совпадает с формулой (2.22) приложения I (расхождение в 4 раза возникает вследствие нашего измененного определения комплексных амплитуд поля).

Метод матрицы плотности использовался многими авторами для расчета нелинейного отклика среды на оптических частотах [8—13]. Мы рассмотрим нелинейность низшего порядка более систематически для случая, когда исходное поле содержит две частоты и учитываются все мультипольные моменты. Это описание особенно полезно в случае нелокализованных электронных волновых функций.

#### § 4. Нелинейная проводимость низшего порядка

Рассмотрим твердое тело в одноэлектронном приближении; будем использовать блоховские волновые функции. Поскольку «блоховские» электроны реагируют на усредненные по пространству электрические и магнит-

ные поля, проведение различия между действующим и макроскопическими полями излишне. Разумеется, это различие существенно для локализованных электронов в плотной среде, поэтому для таких электронов наше рассмотрение следует модифицировать. Это будет сделано в следующей главе. Как показывает более детальное рассмотрение Нозьера и Пайнса [14] и Адлера [15], для блоховских электронов действующее поле равно макроскопическому.

Электромагнитное поле определяется векторным потенциалом

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 2\text{Re} [ \mathbf{A}_1 e^{i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r} - i\omega_1 t} + \mathbf{A}_2 e^{i\mathbf{q}_2 \cdot \mathbf{r} - i\omega_2 t} ]. \quad (2.35)$$

В этом параграфе волновой вектор поля обозначается через  $\mathbf{q}$ , так как обозначение  $\mathbf{k}$  мы оставляем для волнового вектора блоховского электрона. Ниже будет использоваться кулоновская калибровка, в которой скалярный потенциал равен нулю,  $\varphi = 0$

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}, \quad \mathbf{H} = \nabla \times \mathbf{A}. \quad (2.36)$$

Гамильтониан взаимодействия в случае одного нерелятивистского электрона равен

$$\mathcal{H}_{\text{кор}} = -\frac{e}{2mc} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) - \frac{e\hbar}{mc} \mathbf{s} \cdot \nabla \times \mathbf{A} + \\ + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A} \cdot \mathbf{A}. \quad (2.37)$$

Оператор плотности тока для электрона с зарядом  $+e$  равен

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}_0) = +\frac{e}{2m} \left\{ \left[ \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \left( \mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) + \left( \mathbf{p} - \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \right] + \right. \\ \left. + 2i [\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) (\mathbf{p} \times \mathbf{s}) - (\mathbf{p} \times \mathbf{s}) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)] \right\}, \quad (2.38)$$

где оператор положения определяется следующим образом:

$$\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) = | \mathbf{r}_0 \rangle \langle \mathbf{r}_0 |.$$

В последующем изложении плотность спинового тока не учитывается и член гамильтониана, зависящий от спина, будет опущен. Цель расчета — найти компоненту плотности тока с частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Из формулы (2.35) следует, что пространственное изменение этой компо-

ненты описывается фактором  $\exp i(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{r}$ . Наша задача периодична не только во времени, но и в пространстве, поэтому мы применим фурье-преобразование к пространству волновых чисел:

$$\mathbf{j}(\mathbf{q}, t) = \int \mathbf{j}(\mathbf{r}_0, t) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_0} d\mathbf{r}_0. \quad (2.39)$$

Поскольку явная зависимость  $\mathbf{j}$  от времени определяется векторным потенциалом  $\mathbf{A}(t)$ , следует различать три частотные фурье-компоненты этого оператора:

$$\begin{aligned} \mathbf{j}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, 0) &= + \frac{e}{2m} [\mathbf{p} e^{-i(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{r}} + e^{-i(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{r}} \mathbf{p}], \\ \mathbf{j}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, \omega_1) &= - \frac{e^2}{mc} A_1 e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}}, \\ \mathbf{j}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, \omega_2) &= - \frac{e^2}{mc} A_2 e^{-i\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{r}}. \end{aligned} \quad (2.40)$$

Фурье-компонента плотности тока с частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ , квадратичная по амплитудам поля, дается выражением

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{j}^{\text{NL}}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, \omega_3) \rangle &= \sum_n \sum_{n'} [\rho_{nn'}^{(2)}(\omega_3) \mathbf{j}_{n'n}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, 0) + \\ &+ \rho_{nn'}^{(1)}(\omega_1) \mathbf{j}_{n'n}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, \omega_2) + \rho_{nn'}^{(1)}(\omega_2) \mathbf{j}_{n'n}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, \omega_1)]. \end{aligned} \quad (2.41)$$

Матричные элементы возмущения  $\mathcal{H}$  по блоховским волновым функциям

$$u_{n'k}^* e^{-ik' \cdot \mathbf{r}} \text{ и } u_{nk} e^{+ik \cdot \mathbf{r}}$$

равны

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{nn'}(\omega_{1,2}) &= - \frac{e}{mc} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{q}_{1,2}) \times \\ &\times \left( nk | \mathbf{p} + \hbar \mathbf{k}' + \frac{\hbar}{2} \mathbf{q}_{1,2} | n'k' \right) \cdot \mathbf{A}_{1,2}, \\ \mathcal{H}_{nn'}(\omega_3) &= + \frac{e^2}{2mc^2} \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2) \times \\ &\times (nk | n'k') \mathbf{A}_1 \cdot \mathbf{A}_2, \end{aligned} \quad (2.42)$$

где

$$(n'k' | O | nk) = \frac{1}{V} \int d\mathbf{r} u_{n'k}^* O u_{nk}$$

(интегрирование производится по единичной ячейке с объемом  $V$ ). Фурье-компоненты матрицы плотности, входящие в (2.41), можно рассчитать теперь с помощью рекуррентного соотношения (2.25). В нулевом порядке матрица плотности определяется распределением Ферми — Дирака для термодинамического равновесия:

$$\rho_{nn} = f(W_n) = \frac{1}{e^{(W_n - E_F)/kT} + 1}. \quad (2.43)$$

Подставляя все члены в (2.41), получаем явное выражение, идентичное формулам в работах Ченга и Миллера [12], формула (13), и Дюкуэнга [16]:

$$\begin{aligned} \langle j_{\alpha}(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2, \omega_3) \rangle &= \frac{e^3 E_{1\beta} E_{2\gamma}}{2m^2 \omega_1 \omega_2} \sum P(\beta, \mathbf{q}_1, \omega_1; \gamma, \mathbf{q}_2, \omega_2) [1], \\ [1] &= \sum_{n'nk} (n, \mathbf{k} | \rho_{\beta} + \hbar k_{\beta} - \frac{1}{2} \hbar q_{1\beta} | n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1) \times \\ &\times \frac{(n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 | n, \mathbf{k}) \delta_{\gamma\alpha} [f(E_{n, \mathbf{k}}) - f(E_{n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1})]}{\hbar(\omega_1 + \omega_{n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1}; n, \mathbf{k}) + i\Gamma_{n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1; n, \mathbf{k}}} + \\ &+ \sum_{n'nk} \frac{1}{2} \frac{(n, \mathbf{k} | n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2) \delta_{\beta\gamma} [f(E_{n, \mathbf{k}}) - f(E_{n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2})]}{\hbar(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{n, \mathbf{k}}; n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2) + i\Gamma_{n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2; n, \mathbf{k}}} \times \\ &\times \left( n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2 | \rho_{\alpha} + \hbar k_{\alpha} - \frac{1}{2} \hbar q_{1\alpha} - \frac{1}{2} \hbar q_{2\alpha} | n, \mathbf{k} \right) - \\ &- \frac{1}{m} \sum_{n, n', n'', \mathbf{k}} (n, \mathbf{k} | \rho_{\beta} + \hbar k_{\beta} - \frac{1}{2} \hbar q_{1\beta} | n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1) \times \\ &\times (n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 | \rho_{\gamma} + \hbar k_{\gamma} - \hbar q_{1\gamma} - \frac{1}{2} \hbar q_{2\gamma} | n'', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2) \times \\ &\times \frac{(n'', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2 | \rho_{\alpha} + \hbar k_{\alpha} - \frac{1}{2} \hbar q_{1\alpha} - \frac{1}{2} \hbar q_{2\alpha} | n, \mathbf{k})}{\hbar(\omega_2 - \omega_{n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1}; n'', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2) + i\Gamma_{n', n''}} \times \\ &\times \frac{f(E_{n'', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2}) - f(E_{n', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1})}{\hbar(\omega_1 - \omega_{n, \mathbf{k}}; n'', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2) + i\Gamma_{n, n''} + \omega_2} + \sum'. \end{aligned} \quad (2.44)$$

где через  $\Sigma'$  обозначен член, комплексно сопряженный предыдущему члену с обратными знаками  $\omega_1, \omega_2, q_1$  и  $q_2$  ( $P$  — оператор перестановки).

Применим сначала это выражение к газу свободных электронов. Эта система имеет только одну энергетическую зону. Передача энергии при столкновении фотона оптического диапазона с электроном ничтожна:

$$\hbar\omega_{nk, nk'} = \frac{\hbar^2}{2m} [k^2 - (\mathbf{k} - \mathbf{q}_1, 2)^2] \ll \hbar\omega_{1,2}.$$

Если затухание также мало, то знаменатели в (2.44) не зависят от  $\mathbf{k}$ . В случае поперечных электромагнитных волн, распространяющихся в направлении  $\alpha$ , волновой вектор  $q$  имеет только  $\alpha$ -компоненты. Так как для свободного электрона  $u_{nk}$  постоянно, матричный элемент  $p_\beta + \hbar k_\beta - 1/2 q_{1\beta}$ , входящий в первое слагаемое (2.44), равен  $k_\beta$ . После суммирования по всем  $k_\beta$  слагаемые с  $k_\beta$  и  $-k_\beta$  взаимно уничтожаются. По той же причине последнее слагаемое в формуле (2.44) исчезает. В результате получаем следующее выражение:

$$\begin{aligned} j_\alpha(\omega_1 + \omega_2) &= \frac{e^3 E_{1\beta} E_{2\gamma}}{2m^2 \omega_1 \omega_2} \times \\ &\times \sum_k \frac{\left[ k_\alpha - \frac{1}{2} (q_{1\alpha} + q_{2\alpha}) \right] [f(E_k) - f(E_{k - q_{1\alpha} - q_{2\alpha}})] \delta_{\beta\gamma}}{\omega_1 + \omega_2} = \\ &= \frac{-Ne^3 \delta_{\beta\gamma} E_{1\beta} E_{2\gamma}}{2m^2 c \omega_1 \omega_2}, \end{aligned} \quad (2.45)$$

где  $N$  — число электронов проводимости. При  $\omega_1 = \omega_2$  это выражение идентично классическому

$$j(2\omega) = -Ne\dot{z}(2\omega),$$

где  $\dot{z}(2\omega)$  определяется формулой (1.6) при  $\Gamma = \tau^{-1} = 0$ .

Вернемся к дипольному приближению, положив в (2.44)  $q_1 = q_2 = 0$ . Ясно, что в этом приближении для свободных электронов получается нулевой результат. Матричный элемент типа

$$(n'', \mathbf{k} - \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2 | p_\alpha + \hbar \left( k_\alpha - \frac{1}{2} q_{1\alpha} - \frac{1}{2} q_{2\alpha} \right) | n, \mathbf{k})$$

в (2.44) можно заменить в этом приближении матричным элементом для межзонного вертикального перехода

$$(n'', k | p_\alpha | n, k) \equiv p_{n''n}^\alpha = \int u_{n''k}^* p_\alpha u_{nk} d\mathbf{r}. \quad (2.46)$$

Плотность нелинейного тока принимает вид

$$\langle j_\alpha(\omega_3) \rangle = \sigma_{\alpha\beta\gamma}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_\beta(\omega_1) E_\gamma(\omega_2), \quad (2.47)$$

где тензор нелинейной проводимости равен

$$\sigma_{\alpha\beta\gamma}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \frac{\hbar^{-2} e^3}{m^3 c^2 \omega_1 \omega_2} P(\beta, \omega_1; \gamma, \omega_2) \times$$

$$\times \sum_{n, n', n''} (2\pi)^{-3} \int f(E_{nk}) d^3k [ ],$$

$$\begin{aligned} [ ] &= \frac{p_{nn'}^\alpha p_{n''n'}^\beta p_{n''n}^\gamma}{[\omega_1 + \omega_2 - \omega_{n'n}(k) + i\Gamma_{n'n}(k)] [\omega_2 - \omega_{n''n''}(k) + i\Gamma_{n''n''}(k)]} + \\ &+ \frac{p_{nn'}^\beta p_{n''n'}^\alpha p_{n''n}^\gamma}{[\omega_1 + \omega_2 + \omega_{n''n}(k) + i\Gamma_{n''n}(k)] [\omega_1 + \omega_{n'n}(k) + i\Gamma_{n'n}(k)]} + \\ &+ \frac{p_{nn'}^\gamma p_{n''n'}^\alpha p_{n''n}^\beta}{[\omega_1 + \omega_2 - \omega_{n''n}(k) + i\Gamma_{n''n}(k)] [\omega_2 + \omega_{n'n}(k) + i\Gamma_{n'n}(k)]} + \\ &+ \frac{p_{nn'}^\alpha p_{n''n'}^\beta p_{n''n}^\gamma}{[\omega_1 + \omega_2 - \omega_{n''n'}(k) + i\Gamma_{n''n'}(k)] [\omega_1 - \omega_{n''n}(k) + i\Gamma_{n''n}(k)]}. \end{aligned} \quad (2.48)$$

Здесь суммирование по  $\mathbf{k}$  заменено интегрированием. Зависимость всех матричных элементов в выражении  $[ ]$  от  $\mathbf{k}$  подразумевается. Интегрирование по зонам можно в определенном смысле рассматривать как учет неоднородного уширения резонансных линий  $\omega_{n'n''}$ . Предполагается, что зоны  $n''$  не заселены.

Если среда имеет центр инверсии, то можно так определить функции  $u$ , что  $u_{n,k}(r) = u_{n,-k}(-r)$  и поэтому  $p_{n''n}^\alpha(\mathbf{k}) = -p_{n''n}^\alpha(-\mathbf{k})$ . Следовательно, тензор  $\sigma_{\alpha\beta\gamma}$

равен нулю в дипольном приближении. Можно показать обычным способом, что в этом же приближении (при постоянстве векторного потенциала в пределах единичной ячейки) имеют место следующие равенства:

$$\dot{v}_{nn'}^{\alpha} = \dot{x}_{nn'}^{\alpha} = i\omega_{nn'} x_{nn'}^{\alpha} = m^{-1} p_{nn'}^{\alpha} = \frac{e}{mc} A_{nn'} = m^{-1} p_{nn'}^{\alpha}. \quad (2.49)$$

Поэтому недиагональные матричные элементы импульса можно заменить соответствующими матричными элементами дипольного момента. В этом же приближении проводимость связана с восприимчивостью следующим образом:

$$\mathbf{j}^{\text{NL}}(\omega_3) = \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{E}\mathbf{E} = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} = -i\omega_3 \boldsymbol{\chi} : \mathbf{E}\mathbf{E}. \quad (2.50)$$

Если выражение (2.48) просуммировать по всем электронам заселенной зоны, то оно должно быть полностью эквивалентно формулам (2.21) и (2.22) приложения III.

Эту эквивалентность можно доказать в общем виде, что впервые было проделано Гепперт-Майер [17]. Рассмотрим гамильтониан одноэлектронной системы, размеры которой малы по сравнению с длиной волны:

$$\mathcal{H} = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) - \frac{e}{mc} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2(\mathbf{r}, t). \quad (2.51)$$

Соответствующий лагранжиан равен

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}^2 - V(\mathbf{r}) + \frac{e}{c} \dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t).$$

Добавление к нему полной производной по времени не изменит уравнений движения системы, поэтому лагранжиан

$$\mathcal{L}' = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}^2 - V(\mathbf{r}) - \frac{e}{c} \mathbf{r} \cdot \frac{d\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{dt} \quad (2.52)$$

эквивалентен первоначальному. Эквивалентный гамильтониан равен

$$\mathcal{H}' = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) + \frac{e}{c} \mathbf{r} \cdot \frac{d\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)}{dt}. \quad (2.53)$$

Если пространственное изменение мало, то полную производную по времени можно заменить частной производной, так что в дипольном приближении эквивалентный гамильтониан равен

$$\mathcal{H}' = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V(\mathbf{r}) - e \mathbf{r} \cdot \mathbf{E} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{ког}}^1. \quad (2.54)$$

Фьютак [18] (см. также [19]) обобщил это доказательство и показал, что в высшем приближении эквивалентный гамильтониан действительно соответствует мультипольному разложению

$$\mathcal{H}_{\text{ког}} = -\mathbf{P} \cdot \mathbf{E} - \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} - \mathbf{Q} : \nabla \mathbf{E} + \dots, \quad (2.55)$$

где  $\mathbf{Q}$  — квадрупольный момент. Это выражение не учитывает полностью установление диамагнитной энергии в системе, что, однако, не имеет значения для обсуждаемых здесь нелинейных эффектов.

С физической точки зрения это разложение весьма удобно в случае локализованных волновых функций. Такими функциями описываются валентные электроны молекул жидкостей и газов, групп молекул в твердых телах и локализованных парамагнитных ионов. Матрицу плотности можно разложить в комбинированный ряд по степеням  $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{H}$  и  $\nabla \mathbf{E}$ . Средние значения электрического дипольного момента, магнитного дипольного момента и электрического квадрупольного момента можно представить в виде суммы фурье-компонент, каждой из которых соответствует комбинированный ряд по степеням амплитуд электрического и магнитного поля и их градиентов. Эта процедура не представляет принципиальных трудностей, но довольно громоздка. Члены, связанные с магнитным дипольным и электрическим квадрупольными моментами, описывают генерацию второй гармоники в кристаллах с центром инверсии; экспериментально этот эффект наблюдался в кальците. Полный перечень всех квадратичных членов для электрического диполя, магнитного диполя и электрического квадрупольного момента недавно был дан Адлером [13].

### § 5. Нелинейные восприимчивости, описывающие процессы типа комбинационного рассеяния<sup>1)</sup>

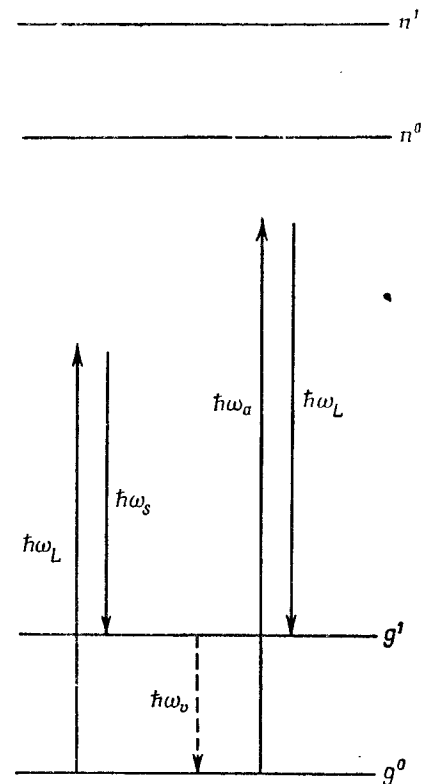
Плотность тока, пропорциональная третьей степени амплитуды поля, может быть получена в принципе аналогичным образом. Ввиду сложности выражения, а также ввиду того, что кубические члены имеют заметную величину лишь для электродипольных матричных элементов, эти члены высшего порядка малости рассматриваются далее только в дипольном приближении. Выражение для поляризации с частотой третьей гармоники уже было получено в гл. 2, § 3. Если на систему действует поле с двумя частотами, то возможно появление большого числа членов с комбинационными частотами; из них мы рассмотрим лишь те частоты, которые близки к резонансу. Обозначим через  $\omega_v$  колебательную резонансную частоту системы. Пусть к системе приложено бигармоническое поле с частотами  $\omega_L$  (например, излучение лазера) и  $\omega_s$ , близкой к  $\omega_L - \omega_v$  (индекс  $s$  соответствует стоксовой частоте). При вычислении восприимчивости оставим только члены, имеющие знаменатель вида

$$\Delta = \omega_L - \omega_s - \omega_v + i\Gamma_v^*$$

(предполагается, что все другие частоты  $\omega_L$ ,  $\omega_s$ ,  $\omega_L + \omega_s$  и т. д. далеки от резонансных частот системы). Эффекты типа комбинационного рассеяния в случае систем с двумя и тремя квантовыми уровнями рассчитаны в приложении III.

Здесь мы рассмотрим предложенную Шеном упрощенную модель, отражающую основные физические особенности молекулярного комбинационного рассеяния. Пусть  $|g\rangle$  основное и  $|n\rangle$  первое возбужденное электронные состояния. Колебания ядер разложим по нормальным типам колебаний. Будем рассматривать основное  $|0\rangle$  и первое возбужденное  $|1\rangle$  колебательные состояния только одного нормального типа. В га-

<sup>1)</sup> В литературе указанные восприимчивости называют также восприимчивостями рамановского типа, или рамановскими восприимчивостями. Далее в этой книге они также называются комбинационными восприимчивостями. — Прим. ред.



Фиг. 5. Переходы комбинационного типа в модели с двумя электронными и двумя ядерными колебательными уровнями.

милтониан взаимодействия входят когерентное возмущение за счет двух световых волн, действующих на электрон, и взаимодействие между орбитальным движением электрона и колебаниями ядер:

$$\mathcal{H} = -exE_L(\omega_L) - exE_s(\omega_s) + \mathcal{H}_{0,v}. \quad (2.56)$$

Четыре рассматриваемых уровня энергии показаны на фиг. 5. Из-за орбитально-колебательного взаимодействия частоты колебаний в состояниях  $|g\rangle$  и  $|n\rangle$  раз-



личны. Пусть отличны от нуля только следующие матричные элементы:

$$(g^0 | \mathcal{H}_{0,v} | g') \neq (n^0 | \mathcal{H}_{0,v} | n'),$$

$$(g^0 | x | n^0) = (g' | x | n').$$

Матричные элементы гамильтониана взаимодействия имеют следующие фурье-компоненты:

$$\mathcal{H}_{n'g'}^{(\omega_s)} = \mathcal{H}_{ng}^{(\omega_s)} = -ex_{ng}E_s,$$

$$\mathcal{H}_{n'g^0}^{(\omega_s)} = \frac{(-ex_{ng}) (\mathcal{H}_{0v}^{n'n^0} - \mathcal{H}_{0v}^{g'g^0})}{\hbar\omega_v} E_s \approx \eta (-ex_{ng}) E_s,$$

$$\mathcal{H}_{n^0g'}^{(\omega_s)} = \frac{(-ex_{ng}) (\mathcal{H}_{0v}^{n'n^0} - \mathcal{H}_{0v}^{g'g^0})}{-\hbar\omega_v} E_s \approx -\eta (-ex_{ng}) E_s,$$

(2.57)

аналогичные выражения имеют место и для частоты  $\omega_L$ . Эти равенства основаны на приближении Борна — Оппенгеймера и на том факте, что среднее расстояние между колебательными уровнями

$$\hbar\omega_v = \frac{1}{2} \hbar (\omega_{g'g^0} + \omega_{n'n^0})$$

много меньше расстояния между электронными уровнями  $\hbar\omega_{ng}$ . Равенства (2.57) означают, что дипольный момент, а следовательно и электронная поляризуемость зависят от ядерной колебательной координаты параметрически (это подробно показано Плачком [20]).

Если предположить, что первоначально молекула находилась в основном колебательном состоянии,  $\rho_{g^0g^0} = 1$ , то матрица плотности в первом, линейном приближении равна

$$\rho_{n^0g^0}^{(1)}(\omega_{L,s}) = \frac{\mathcal{H}_{n^0g^0}(\omega_{L,s})}{\hbar(\omega_{L,s} - \omega_{n^0g^0})},$$

$$\rho_{n'g^0}^{(1)}(\omega_{L,s}) = \frac{\mathcal{H}_{n'g^0}(\omega_{L,s})}{\hbar(\omega_{L,s} - \omega_{n'g^0})}.$$

(2.58)

Во втором приближении удерживаем только члены с резонансным знаменателем

$$\rho_{g'g^0}^{(2)}(\omega_L - \omega_s) = \frac{\hbar^{-2}}{\omega_L - \omega_s - \omega_{g'g^0} + i\Gamma_{g'g^0}} \left[ \frac{\mathcal{H}_{g'n^0}^{(-\omega_s)} \mathcal{H}_{n^0g^0}^{(\omega_L)}}{\omega_L - \omega_{n^0g^0}} + \frac{\mathcal{H}_{g'n'}^{(-\omega_s)} \mathcal{H}_{n'g^0}^{(\omega_L)}}{\omega_L - \omega_{n'g^0}} - \frac{\mathcal{H}_{g'n^0}^{(\omega_L)} \mathcal{H}_{n^0g^0}^{(-\omega_s)}}{\omega_s + \omega_{n^0g^0}} - \frac{\mathcal{H}_{g'n'}^{(\omega_L)} \mathcal{H}_{n'g^0}^{(-\omega_s)}}{\omega_s + \omega_{n'g^0}} \right].$$

(2.59)

Компонента  $\rho_{n'n^0}^{(2)}(\omega_L - \omega_s)$  или находится не в резонансе, или тождественно равна нулю. Из этого выражения можно в свою очередь определить фурье-компоненты  $\rho_{n'g^0}^{(3)}(-\omega_s)$ ,  $\rho_{n'g^0}^{(3)}(\omega_L)$ ,  $\rho_{n'g^0}^{(3)}(2\omega_L - \omega_s)$  и  $\rho_{n'g^0}^{(3)}(\omega_L - 2\omega_s)$ .

Имеем, например,

$$\rho_{n'g^0}^{(3)}(-\omega_s) = -\hbar^{-1} (+\omega_s + \omega_{n'g^0})^{-1} \mathcal{H}_{n'g'}^{(-\omega_L)} \rho_{g'g^0}^{(2)}(\omega_L - \omega_s),$$

$$\rho_{g'n'}^{(3)}(-\omega_s) = +\hbar^{-1} (\omega_L - \omega_{n'g^0})^{-1} \mathcal{H}_{g'n'}^{(-\omega_L)} \rho_{g'g^0}^{(2)}(\omega_L - \omega_s),$$

(2.60)

$$\rho_{n^0g^0}^{(3)}(-\omega_s) = -\hbar^{-1} (+\omega_s + \omega_{n^0g^0})^{-1} \mathcal{H}_{n^0g'}^{(-\omega_L)} \rho_{g'g^0}^{(2)}(\omega_L - \omega_s),$$

$$\rho_{g'n^0}^{(3)}(-\omega_s) = +\hbar^{-1} (\omega_L - \omega_{n^0g^0})^{-1} \mathcal{H}_{g'n^0}^{(-\omega_L)} \rho_{g'g^0}^{(2)}(\omega_L - \omega_s).$$

Наконец, находим спектральную компоненту нелинейной поляризации с частотой  $\omega_s$ :

$$\langle P^{NL}(\omega_s) \rangle = \langle P^{NL}(-\omega_s) \rangle^* = N \text{Sp} \{ (ex)^* \rho^{(3)}(-\omega_s) \} = \chi_s(\omega_s = \omega_L - \omega_L + \omega_s) |E_L|^2 E_s, \quad (2.61)$$

где «стоксова» восприимчивость равна

$$\chi_s = -\frac{Ne^4 \hbar^{-3} \eta^2}{\omega_L - \omega_s - \omega_{g'g^0} - i\Gamma_{g'g^0}} \times \left[ \frac{x_{ng} x_{gn}}{\omega_L - \omega_{n^0g^0}} - \frac{x_{ng} x_{gn}}{\omega_L - \omega_{n'g^0}} - \frac{x_{ng} x_{gn}}{\omega_s + \omega_{n^0g^0}} + \frac{x_{ng} x_{gn}}{\omega_s + \omega_{n'g^0}} \right]^2 \quad (2.62)$$

( $\eta$  определяется соотношением (2.57);  $N$  — число молекул в  $1 \text{ см}^3$ ). Заметим, что при точном резонансе,  $\omega_L = \omega_s = \omega_{g'g''} = 0$ ,  $\chi_s$  — чисто мнимая отрицательная величина, что соответствует отрицательному поглощению (т. е. усилению) на частоте  $\omega_s$ , пропорциональному интенсивности излучения с частотой  $\omega_L |E_L|^2$ . Аналогично находим поляризацию на частоте  $\omega_L$ :

$$P(\omega_L) = \chi_s^* E_L |E_s|^2. \quad (2.63)$$

На частоте  $\omega_L$  имеется положительное поглощение, пропорциональное интенсивности поля с частотой  $\omega_s$ . Если бы первоначальные населенности колебательных уровней были инвертированы ( $\rho_{g'g''}^{(0)} = 1$  вместо  $\rho_{g''g'}^{(0)} = 1$ ), то знак  $\chi_s$  был бы обратным. В этом случае положительное поглощение имело бы место на частоте  $\omega_s$ , а усиление — на частоте  $\omega_L$ . Однако в обычных условиях населенность возбужденного колебательного уровня незначительна.

Нелинейная поляризация с антистоксовой частотой  $\omega_a$ , вызванная полем с частотами  $\omega_s$  и  $\omega_L$ , равна

$$P(\omega_a) = \chi(\omega_a = 2\omega_L - \omega_s) E_L^2 E_s^*. \quad (2.64)$$

Теперь в гамильтониане (2.56) нужно учесть еще поле  $E_a$  с антистоксовой частотой. Можно рассчитать нелинейную поляризацию, обусловленную резонансными процессами типа комбинационного рассеяния на каждой из трех частот  $\omega_s$ ,  $\omega_L$  и  $\omega_a$  в присутствии трех полей  $E_s$ ,  $E_L$  и  $E_a$ . Обозначим через  $\chi_a^*$  «антистоксову» восприимчивость, получаемую из формулы (2.62) при замене  $\omega_L$  на  $\omega_a$  и  $\omega_s$  на  $\omega_L$ . Эта величина  $\chi_a^*$  будет отличаться от  $\chi_s$  только знаменателями слагаемых под знаком модуля в (2.62). Можно показать непосредственным расчетом, что восприимчивость в равенстве (2.64) можно выразить как  $(\chi_s^* \chi_a)^{1/2}$ . В тех случаях, когда дисперсией можно пренебречь,  $(\chi_s^* \chi_a)^{1/2} = \chi_s^*$ .

Следует упомянуть, что в нелинейных восприимчивостях рассматриваемого типа имеются и другие, нерезонансные слагаемые. Несмотря на отсутствие резонанса, они могут иметь заметную величину из-за того, что вхо-

дящие в них матричные элементы не обязательно связаны с энергетическими уровнями колебаний ядер, и поэтому не содержат фактора приведения  $\eta$ . Дисперсией этой нерезонансной части восприимчивости можно пренебречь, поскольку расстояние до возбужденных электронных уровней много больше чем  $\omega_a - \omega_s$ . Соответствующую часть поляризации можно характеризовать единственной нерезонансной действительной восприимчивостью  $\chi_{NR}$ .

Таким образом спектральные компоненты нелинейной поляризации можно представить следующими равенствами, которые проверяются непосредственным расчетом [аналогичным расчету, с помощью которого была получена формула (2.62)]:

$$P(\omega_s) = (\chi_s + \chi_{NR}) |E_L|^2 E_s + [(\chi_s^* \chi_a^*)^{1/2} + \chi_{NR}] E_L^2 E_a^*, \quad (2.65)$$

$$P(\omega_L) = (\chi_s^* + \chi_{NR}) E_L |E_s|^2 + (\chi_a^* + \chi_{NR}) E_L |E_a|^2 + [(\chi_s \chi_a^*)^{1/2} + (\chi_s^* \chi_a)^{1/2} + 2\chi_{NR}] E_L^* E_s E_a, \quad (2.66)$$

$$P(\omega_a) = (\chi_a + \chi_{NR}) |E_L|^2 E_a + [(\chi_s^* \chi_a)^{1/2} + \chi_{NR}] E_L^2 E_s^*. \quad (2.67)$$

Отсюда следует комплексное соотношение симметрии

$$(\chi_s \chi_a^*)^{1/2} = \chi(\omega_s = 2\omega_L - \omega_a) = \chi^*(\omega_a = 2\omega_L - \omega_s). \quad (2.68)$$

Последнее соотношение является иллюстрацией следующего правила, выполняющегося в случае, когда член, описывающий затухание, имеется только в одном знаменателе. Когда перестановка частот в аргументе нелинейной восприимчивости вызывает изменение знака комбинации частот, близкой к резонансной, следует брать комплексно сопряженное значение  $\chi$ . В аргументе  $\chi(\omega_s = 2\omega_L - \omega_a)$  к резонансной частоте близка частота  $\omega_L - \omega_a$ , а в  $\chi^*(\omega_a = 2\omega_L - \omega_s)$  — частота  $\omega_L - \omega_s = -(\omega_L - \omega_a)$ . Поэтому производится операция комплексного сопряжения. Подробное рассмотрение вопроса о том, как член затухания,  $i\Gamma_{n'n}$  соответствует резонансу  $\omega_L - \omega_s = \omega_{n'n}$ , подтверждает это правило. Можно предположить, что это соотношение справедливо и для не-

диагональных элементов тензоров четвертого ранга при одновременной перестановке индексов и частот:

$$\chi_{ijkl}(\omega_a = 2\omega_L - \omega_s) = \chi_{jikl}^*(\omega_s = 2\omega_L - \omega_a).$$

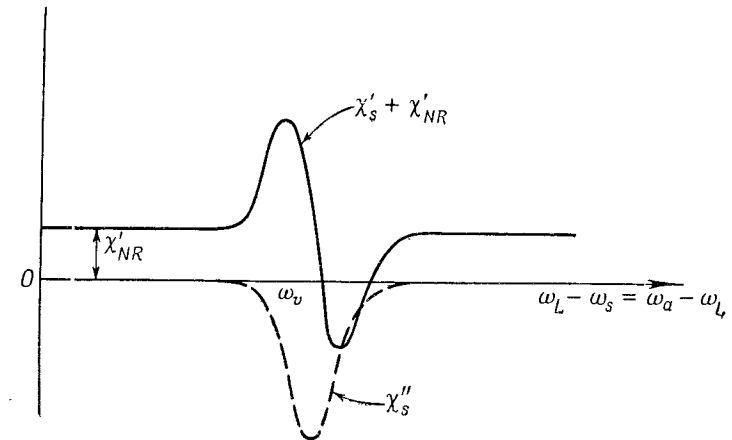
По существу это является применением соотношений Онзагера, которые можно обосновать, исходя из существования диссипативной функции, описывающей стационарные потери. Першан [21] рассмотрел этот вопрос; при этом он не устанавливал, однако, связи между запасенной свободной энергией и диссипативной функцией так, как это было сделано здесь с помощью действительной и мнимой частей одной и той же комплексной восприимчивости.

Фактически Першан, а также Батчер и Мак-Лин [22] ввели комплексные восприимчивости или проводимости для среды без потерь. Часть тензорной восприимчивости с нечетным числом индексов, относящихся к магнитному полю или намагниченности, чисто мнимая. Часть, которая умножается на четное число компонент магнитного поля, в случае отсутствия потерь действительна; последнее следует из рассмотрения симметрии по отношению к изменению знака времени.

Поэтому чисто электродипольные восприимчивости действительны при отсутствии потерь. Следовательно, соотношения симметрии, подобные (2.68), описывают связь между свободной энергией и диссипативной функцией. В линейном случае связь между действительной и мнимой частями восприимчивостей выражается в виде соотношений Крамерса — Кронига. Поскольку мы ограничиваемся рассмотрением только тех частей нелинейной восприимчивости, которые содержат лишь один комплексный знаменатель, они удовлетворяют соотношениям Крамерса — Кронига, справедливым в линейном случае (фиг. 6). Только для этих частей восприимчивости справедливы перестановочные соотношения симметрии (2.68). Восприимчивости, описывающие процессы типа комбинационного рассеяния, и относятся к этой категории.

Мнимые части членов с  $\chi_s$  и  $\chi_a$  в (2.67) описывают процессы комбинационного рассеяния, показанные на фиг. 5. Действительная часть  $\chi_s$  описывает параметрический процесс — одновременное рассеяние квантов с ча-

стотами  $\omega_L$  и  $\omega_s$ . Интерференция всех этих процессов рассеяния высшего порядка в однородной среде приводит к изменению показателя преломления на частоте  $\omega_s$ , пропорциональному  $|E_L|^2$ , а на частоте  $\omega_L$  — пропорциональному  $|E_s|^2$ .



Фиг. 6. Дисперсия комплексной комбинационной восприимчивости. Стоксова частота  $\omega_s = \omega_L - \omega_s$  увеличивается справа налево. Выполняются соотношения Крамерса — Кронига.

Действительные части членов, пропорциональных  $(\chi_s \chi_a)^{1/2}$ , соответствуют процессу рассеяния, при котором 2 кванта с частотой  $\omega_L$  превращаются в квант  $\omega_s$  и квант  $\omega_a$  (или обратному процессу). Интерференция всех процессов рассеяния приводит в однородной среде к генерации лазерным лучом частот  $\omega_s$  и  $\omega_a$  (или к обратному процессу). Интересна физическая интерпретация мнимых частей членов, содержащих  $(\chi_s \chi_a)^{1/2}$  и  $(\chi_s^* \chi_a^*)^{1/2}$ . Эти члены соответствуют интерференции двух показанных на фиг. 5 комбинационных процессов с одинаковыми начальными и одинаковыми конечными уровнями. Эти интерференционные члены могут или увеличить или уменьшить суммарную скорость перехода между колебательными уровнями. В первом случае интерференция приводит к увеличению усиления на частоте  $\omega_s$  и поглощения на  $\omega_a$ ,

во втором — к уменьшению усилия на  $\omega_s$  и поглощения на  $\omega_a$ . Какой именно вариант реализуется — зависит от относительных фаз  $E_L$ ,  $E_s$  и  $E_a$ . Существенная роль фазовых соотношений между взаимодействующими волнами показывает, что к квантовой интерпретации рассматриваемых процессов следует подходить с осторожностью. Если фазы заданы, число квантов определено неточно. В частности, было бы ошибкой полагать, что не может быть усиления на антистоксовой частоте. Корректное квантовое описание в этом случае возможно лишь с привлечением для осцилляторных состояний поля модели связанных волновых пакетов. Вместе с тем очень хорошим приближением является описание этих явлений классическим методом связанных волн. Этот метод будет рассматриваться в гл. 4.

### § 6. Резонансные эффекты высших порядков

В большинстве случаев метод разложения в ряд по возрастающим степеням амплитуд поля адекватен задачам, возникающим при изучении нелинейных эффектов в оптическом диапазоне. Но иногда следует удерживать все степени компонент поля, частоты которых близки к резонансу. Такое положение возникает обычно при исследовании магнитного резонанса на радиочастотах и СВЧ. Наиболее известным примером является эффект насыщения двухуровневой системы при резонансе

$$\rho_{22} - \rho_{11} = \frac{\rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}}{1 + \hbar^{-2} |\mathcal{H}_{12}(\omega_{12})|^2 \Gamma_{12}^{-1} \Gamma_{11}^{-1}}. \quad (2.69)$$

Здесь фурье-компонента с нулевой частотой диагонального матричного элемента выражена через все степени величины  $|\mathcal{H}_{12}(\omega_{12})|^2$ . При когерентном возмущении всегда можно удержать все степени одной фурье-компоненты с помощью перехода к вращающейся системе координат. Этот метод подробно изложен в книгах по магнитному резонансу.

Если из условий резонанса можно априори решить, какие фурье-компоненты матрицы плотности будут максималны, то всеми остальными фурье-компонентами в

уравнении движения (2.25) для матрицы плотности можно будет пренебречь.

После этого стационарный отклик опишется системой  $\mathfrak{N}$  линейных алгебраических уравнений относительно  $\mathfrak{N}$  оставшихся фурье-компонент. В случаях двух- и трехуровневых систем эта процедура иллюстрируется в приложении III, § 3 и 4, где компоненты матрицы плотности выражены через все степени возмущения.

### § 7. Соотношения Крамерса — Кронига

Дисперсионные соотношения, существующие для линейных восприимчивостей, имеют аналоги и в нелинейном случае. К сожалению, полезность их ограничивается, по-видимому, случаем генерации второй гармоники. Это было отмечено Прайсом [11]; мы в данном параграфе будем следовать изложению Каспера [23].

Нелинейный стационарный отклик низшего порядка системы, на которую действует возмущение, определится последним членом формулы (2.10), если верхние пределы интегрирования заменить в нем на бесконечности. Для возмущения, равного

$$-P \cdot (E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t}),$$

можно сразу найти стационарный отклик на суммарной частоте, если провести статистическое усреднение по ансамблю и по различным процессам затухания:

$$\begin{aligned} \chi_{kij}(\omega_3^+ = \omega_1 + \omega_2) = & -\frac{1}{2\hbar^2} \int_0^\infty dt \int_0^\infty d\tau e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} \times \\ & \times \{ e^{-i\omega_1 \tau} \text{Sp}[\rho_0, \mathcal{P}_i(-t - \tau)], \mathcal{P}_j(-t)] \mathcal{P}_k + \\ & + e^{-i\omega_2 \tau} \text{Sp}[\rho_0, \mathcal{P}_j(-t - \tau)], \mathcal{P}_i(-t)] \mathcal{P}_k \}. \quad (2.70) \end{aligned}$$

Если  $\omega_2 \geq \omega_1$ , то выражение для  $\omega_3^- = \omega_2 - \omega_1$  получается заменой  $\omega_1$  на  $-\omega_1$ . Рассмотрим  $\chi(\omega_3^\pm) = \chi(\omega_3)$  как одну функцию, определенную для положительных и отри-

цательных значений частоты  $\omega_1$ . Поскольку  $\chi(\omega_3)$  имеет вид

$$\int_0^{\infty} d\sigma e^{-\omega_1 \sigma} F(\sigma, \omega_2),$$

дисперсионные соотношения могут быть формально получены, исходя из следующего весьма общего условия:  $\chi$  должна быть аналитической функцией в нижней полуплоскости комплексной плоскости  $\omega_1$ :

$$\chi_{kij}(\omega_3) = \frac{i}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega'_1 \frac{\chi_{kij}(\omega'_1, \omega_2)}{\omega'_1 - \omega_1}, \text{ так как } \chi_{kij}(\infty, \omega_2) = 0 \quad (2.71)$$

(перечеркнутый знак интеграла означает, что интеграл берется в смысле главного значения).

Полезность аналогичного соотношения для действительной и мнимых частей линейной восприимчивости обусловлена тем, что его правую часть можно разделить на два интеграла с пределами 0,  $+\infty$ , а также тем, что действительная и мнимая части этих интегралов каждая в отдельности представляет интерес. В нелинейном случае это не так. Функцию  $\chi(\omega_3)$  следует разделить на части, имеющие физический смысл

$$\chi(\omega_3^+ = \omega_2 + \omega_1 > 0), \quad \chi(\omega_3^- = \omega_1 - \omega_2 > 0) \text{ и} \\ \chi(-\omega_3^- = \omega_2 - \omega_1 > 0).$$

Разбивая ось частот  $\omega'_1$  на три соответствующих участка, приходим к трем интегральным соотношениям

$$\chi(\omega_3^+) = \frac{i}{\pi} \left[ \int_0^{\infty} d\omega'_1 \frac{\chi(\omega_3^+)}{\omega'_1 - \omega_1} - \int_0^{\omega_2} d\omega'_1 \frac{\chi(-\omega_3^-)}{\omega'_1 + \omega_1} - \int_{\omega_2}^{\infty} d\omega'_1 \frac{\chi^*(\omega_3^-)}{\omega'_1 + \omega_1} \right], \quad (2.72)$$

$$\chi(\omega_3^-) = \frac{i}{\pi} \left[ \int_0^{\infty} d\omega'_1 \frac{\chi(\omega_3^-)}{\omega'_1 - \omega_1} + \int_0^{\omega_2} d\omega'_1 \frac{\chi^*(-\omega_3^- = \omega_2 - \omega'_1)}{\omega'_1 - \omega_1} - \int_0^{\infty} d\omega'_1 \frac{\chi^*(\omega_3^+ = \omega'_1 + \omega_2)}{\omega'_1 + \omega_1} \right]$$

[выражение для  $\chi(-\omega_3^-)$  получается из последнего соотношения при перемене местами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ ]. Эти равенства связывают действительную часть восприимчивости на суммарной частоте с мнимыми частями восприимчивостей на суммарной и разностной частотах. В случае фиксированного соотношения между  $\omega_1$  и  $\omega_2$  и в особенности при  $\omega'_1 = \omega_2$  формулы упрощаются. Действительная и мнимая части восприимчивости, описывающей генерацию второй гармоники, связаны следующим образом:

$$\chi'(2\omega) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{d\omega' \chi''(2\omega')}{\omega' - \omega}, \quad (2.73) \\ \chi''(2\omega) = -\frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{d\omega' \chi'(2\omega')}{\omega' - \omega}.$$

Эти соотношения не имеют, однако, такой ценности, как аналогичные соотношения для линейного случая, несмотря на их формальную идентичность. Мнимая часть соответствует здесь не поглощению, а просто компоненте второй гармоники, имеющей фазу  $2\phi_1 + \pi/2$ , где  $\phi_1$  — фаза волны основного излучения. Генерация второй гармоники осуществляется, как правило, лишь на нескольких фиксированных частотах, на которых имеются достаточно мощные лазерные генераторы основного излучения. Если бы измерения интенсивности второй гармоники, пропорциональной  $|\chi(2\omega)|^2$ , были проведены в широком диапазоне частот, то дисперсионные соотношения позволили бы определить относительные фазы первой и второй гармоники на каждой частоте. Следует отметить, однако, что эта информация не представляет большого интереса.

### § 8. Квантование полей

В предыдущем изложении восприимчивости были определены с помощью полуклассического подхода, при котором электромагнитные поля описываются классически. Амплитуда и фаза волны описываются при этом как  $c$ -числа. Этот подход очень полезен, так как позволяет рассматривать явления, в которых существенны относительные фазы взаимодействующих волн. Число квантов достаточно велико, так что фазы могут быть определены. Нас не интересует переход из одного состояния электромагнитного поля с заданным числом квантов в каждом осцилляторе поля в другое состояние, в котором число квантов в одном или более осцилляторах изменилось на 1, 2 или 3. Такие процессы можно описывать с помощью вероятностей перехода в единицу времени или сечений рассеяния и поглощения.

Основной интерес представляет квазистационарное состояние электромагнитных полей, которое образуется в результате интерференции большого числа процессов рассеяния. Обе ситуации, конечно, связаны, так как описываются с помощью одних и тех же матричных элементов гамильтониана взаимодействия между электромагнитным полем и средой. Данная проблема присуща не только нелинейной оптике. Она хорошо известна и в линейной оптике, где линейная восприимчивость (или показатель преломления) связана с сечениями релеевского рассеяния и поглощения. Этот вопрос кратко обсуждался Крамерсом [24] и Гайтлером [25]. Настоящий параграф посвящен этой же проблеме в нелинейном случае.

#### ПРОЦЕССЫ НЕЛИНЕЙНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ И РАССЕЯНИЯ

Вероятность перехода для процесса двухквантового поглощения была рассчитана Гепперт-Майер [17], а процесс рассеяния с участием трех квантов рассматривался Блэтоном [26] и Гуттингером [27]. Поле в вакууме представляется в виде линейной комбинации плоских моно-

хроматических бегущих волн:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\lambda} [q_{\lambda}(t) \mathbf{A}_{\lambda}(\mathbf{r}) + q_{\lambda}^*(t) \mathbf{A}_{\lambda}^*(\mathbf{r})], \quad (2.74)$$

где

$$\mathbf{A}_{\lambda}(\mathbf{r}) = \hat{\mathbf{a}}_{\lambda} \sqrt{4\pi c^2} e^{i\mathbf{k}_{\lambda} \cdot \mathbf{r}} V^{-1/2}, \quad (2.75)$$

а динамическая переменная равна

$$q_{\lambda}(t) = q_{\lambda} e^{-i\omega_{\lambda} t}. \quad (2.76)$$

Переменные  $q_{\lambda}$  и  $q_{\lambda}^*$  не эрмитовы и не сопряжены канонически, однако можно перейти к каноническим действительным переменным:

$$Q_{\lambda} = q_{\lambda} + q_{\lambda}^*, \quad (2.77)$$

$$P_{\lambda} = \dot{Q}_{\lambda} = -i\omega_{\lambda} (q_{\lambda} - q_{\lambda}^*).$$

Гамильтониан вакуумных осцилляторов равен

$$\mathcal{H}_{\lambda} = 2\omega_{\lambda}^2 q_{\lambda} q_{\lambda}^* = \frac{1}{2} (P_{\lambda}^2 + \omega_{\lambda}^2 Q_{\lambda}^2). \quad (2.78)$$

Волновые функции осцилляторов ортогональны:

$$\int \mathbf{A}_{\lambda} \cdot \mathbf{A}_{\mu}^* dV = \int \mathbf{A}_{\lambda}^* \cdot \mathbf{A}_{\mu} dV = 4\pi c^2 \delta_{\lambda\mu}. \quad (2.79)$$

Через  $q_{\lambda}$  и  $q_{\lambda}^*$  обозначены соответственно операторы рождения и уничтожения фотонов. Их единственные неравные нулю матричные элементы равны

$$q_{n_{\lambda}, n_{\lambda}+1} = \left[ \frac{\hbar(n_{\lambda}+1)}{2\omega_{\lambda}} \right]^{1/2} e^{-i\omega_{\lambda} t},$$

$$q_{n_{\lambda}+1, n_{\lambda}}^* = \left[ \frac{\hbar(n_{\lambda}+1)}{2\omega_{\lambda}} \right]^{1/2} e^{+i\omega_{\lambda} t} \quad (2.80)$$

и удовлетворяют соотношениям коммутации

$$q_{\lambda} q_{\mu}^* - q_{\mu}^* q_{\lambda} = \frac{\hbar}{2\omega_{\lambda}} \delta_{\mu\lambda}. \quad (2.81)$$

Пусть  $|a\rangle$  и  $|b\rangle$  представляют два невырожденных собственных состояния гамильтониана материальной системы. Гамильтониан взаимодействия между материал-

ной системой и полем (2.37) имеет следующие неравные нулю матричные элементы:

$$\mathcal{H}'(a, n_\lambda; b, n_\lambda + 1) = -\frac{e}{mc} \left( \frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_\lambda} \right)^{1/2} (n_\lambda + 1)^{1/2} \times \\ \times e^{-i\omega_\lambda t} V^{-1/2} \int \Psi_a^*(\mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{a}}_\lambda) e^{i\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r}} \Psi_b d\mathbf{r}, \quad (2.82)$$

$$\mathcal{H}'(a, n_\lambda + 1; b, n_\lambda) = -\frac{e}{mc} \left( \frac{2\pi\hbar c^2}{\omega_\lambda} \right)^{1/2} (n_\lambda + 1)^{1/2} \times \\ \times e^{+i\omega_\lambda t} V^{-1/2} \int \Psi_a^*(\mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{a}}_\lambda) e^{-i\mathbf{k}_\lambda \cdot \mathbf{r}} \Psi_b d\mathbf{r}.$$

Слагаемое в (2.37), содержащее  $A^2$ , где

$$A^2 = \sum_\lambda \sum_\mu (q_\lambda q_\mu \mathbf{A}_\lambda \cdot \mathbf{A}_\mu + q_\lambda q_\mu^* \mathbf{A}_\lambda \cdot \mathbf{A}_\mu^* + q_\lambda^* q_\mu \mathbf{A}_\lambda^* \cdot \mathbf{A}_\mu + \\ + q_\lambda^* q_\mu^* \mathbf{A}_\lambda^* \cdot \mathbf{A}_\mu^*), \quad (2.83)$$

имеет следующие матричные элементы:

$$\mathcal{H}''(a, n_\lambda + 1, n_\mu; b, n_\lambda, n_\mu + 1) = \frac{e^2}{m} (\hat{\mathbf{a}}_\lambda \cdot \hat{\mathbf{a}}_\mu) \frac{2\pi\hbar}{(\omega_\lambda \omega_\mu)^{1/2}} \times \\ \times (n_\lambda + 1)^{1/2} (n_\mu + 1)^{1/2} e^{+i\omega_\lambda t - i\omega_\mu t} \frac{1}{V} \int \Psi_a^* e^{-i(\mathbf{k}_\lambda - \mathbf{k}_\mu) \cdot \mathbf{r}} \Psi_b d\mathbf{r} \quad (2.84)$$

и аналогичные выражения для

$$\mathcal{H}''(a, n_\lambda + 1, n_\mu + 1; b, n_\lambda, n_\mu) \text{ и } \mathcal{H}''(a, n_\lambda, n_\mu; \\ b, n_\lambda + 1, n_\mu + 1).$$

Составной матричный элемент второго порядка, соответствующий переходу кванта от осциллятора  $\lambda$  к осциллятору  $\mu$  при одновременном переходе материальной системы из состояния  $|a\rangle$  в состояние  $|b\rangle$ , равен

$$\mathcal{H}_R = \sum_c \left[ \frac{\mathcal{H}'(b, n_\lambda, n_\mu + 1; c, n_\lambda, n_\mu) \mathcal{H}'(c, n_\lambda, n_\mu; a, n_\lambda + 1, n_\mu)}{-\hbar\omega_{ca} + \hbar\omega_\lambda} + \right. \\ \left. + \mathcal{H}'(b, n_\lambda, n_\mu + 1; c, n_\lambda + 1, n_\mu + 1) \times \right. \\ \left. \times \frac{\mathcal{H}'(c, n_\lambda + 1, n_\mu + 1; a, n_\lambda + 1, n_\mu)}{-\hbar\omega_{ca} - \hbar\omega_\mu} \right] + \mathcal{H}''. \quad (2.85)$$

Если произвести интегрирование по распределению конечных состояний материальной системы, то пропорциональная времени вероятность вынужденного комбинационного рассеяния определится с помощью «золотого правила»:

$$W_R = \hbar^{-2} |\mathcal{H}_R|^2 g(\nu_\lambda - \nu_\mu). \quad (2.86)$$

В силу затухания и из-за других случайных возмущений материальной системы форма линии определяется нормированной лоренцевой кривой:

$$g(\nu) = \frac{2\Gamma_{ab}}{(\omega_{ba} - \omega)^2 + \Gamma_{ab}^2}, \quad \nu = \frac{\omega}{2\pi}. \quad (2.87)$$

Будем считать для простоты, что обе волны поляризованы в направлении  $x$  и выполнено условие резонанса  $\omega_{ba} = \omega_\lambda - \omega_\mu$ . При резонансе отнесенная к единице времени вероятность вынужденного комбинационного рассеяния в дипольном приближении равна

$$W_R = \frac{8\pi^2 e^4 \omega_\lambda \omega_\mu}{\Gamma_{ab} \hbar^2} (n_\lambda + 1)(n_\mu + 1) \frac{1}{V^2} \left| \sum_c \left( \frac{x_{bc} x_{ca}}{\omega_\lambda - \omega_{ca}} + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{x_{bc} x_{ca}}{-\omega_\mu - \omega_{ca}} \right) \right|^2. \quad (2.88)$$

Сечение рассеяния можно определить следующим образом. Пусть число падающих квантов  $n_\lambda + 1$  заключено в объеме  $V$ . Число квантов падающих в 1 сек на 1 см<sup>2</sup> заключено в объеме  $V = c$ . Вероятность перехода под действием потока, равного одному кванту на 1 см<sup>2</sup> в 1 сек, есть сечение рассеяния:

$$\sigma_{\text{ког}}^{\text{комб}}(\omega_\lambda) = \frac{8\pi^2 e^4 \omega_\lambda \omega_\mu \tilde{n}_\mu}{\hbar^2 \Gamma_{ab} c^2} \left| \sum_c \right|^2, \quad (2.89)$$

где  $\tilde{n}_\mu$  — поток квантов со стоксовой частотой  $\omega_\mu$ , падающих на 1 см<sup>2</sup> в 1 сек.

Сечение рассеяния непосредственно связано с ослаблением интенсивности на единицу длины, которое в свою очередь можно связать с мнимой частью восприимчивости. Рассмотрим разреженную среду с  $N_0$  молекул в 1 см<sup>3</sup>

и показателем преломления, близким к единице (рассмотрение легко обобщить и на плотные среды). Сечение линейного поглощения  $\sigma_{\text{полг}}$  связано с ослаблением интенсивности соотношением

$$I(z) = I(0) e^{-N_0 \sigma_{\text{полг}} z} = I(0) e^{-4\pi(\omega/c)\chi_1'' z}.$$

Аналогично ослабление луча с частотой  $\omega_\lambda$  (мы считаем ее частотой лазера), обусловленное вынужденным комбинационным рассеянием, связано с активной частью нелинейной поляризации,

$$N_0 \sigma_{\text{ког}}^{\text{комб}} = 4\pi \frac{\omega_\lambda}{c} (-\chi_s'') |E_\mu|^2. \quad (2.90)$$

Поток мощности на стоксовой частоте  $\omega_\mu$  при числе квантов  $n_\mu$  равен

$$\frac{c}{2\pi} |E_\mu|^2 = n_\mu \hbar \omega_\mu. \quad (2.91)$$

Выражение для вектора Пойнтинга содержит множитель  $1/2\pi$ , а не  $1/8\pi$  в силу нашего определения комплексных амплитуд. Комбинируя (2.89) — (2.91), получаем, наконец, выражение для мнимой части комбинационной восприимчивости при резонансе

$$-\chi_s'' = \frac{N_0 e^4}{\Gamma_{ab} \hbar^3} \left| \sum_c \right|^2. \quad (2.92)$$

Это выражение согласуется с формулой (2.62), если суммирование по  $c$  проводить только по двум уровням  $n^0$  и  $n'$  (см. фиг. 5) и если в знаменателе (2.62) учесть условие резонанса  $\omega_L - \omega_s = \omega_g' g^0$ , которое идентично условию  $\omega_\lambda - \omega_\mu = \omega_{ba}$ . Предполагается, что уровни  $c$  не находятся в резонансе ни с одной из рассматриваемых частот. Это требование необходимо для справедливости соотношений (2.62), (2.85), а следовательно и (2.92). Итак, между сечением когерентного комбинационного рассеяния и мнимой частью комбинационной восприимчивости имеется такое же соответствие, как и между сечением однофотонного когерентного поглощения и мнимой частью линейной восприимчивости.

Аналогичным образом можно рассмотреть случай двухфотонного поглощения. В этом случае вместо (2.88) получаем почти идентичное выражение, в котором  $-\omega_\mu$  заменено на  $+\omega_\mu$ . Условие резонанса теперь имеет вид:  $\omega_\lambda + \omega_\mu = \omega_{ba}$ . Если  $\tilde{n}_\mu$  в (2.89) опять равно потоку квантов на частоте  $\omega_\mu$ , то  $n_\mu + 1$  в (2.88) следует заменить на  $n_\mu$ . Сечение двухфотонного поглощения связано, конечно, с мнимой частью восприимчивости, определяемой из соотношений

$$P^{\text{NL}}(\omega_\lambda) = i\chi''(\omega_\lambda = \omega_\lambda + \omega_\mu - \omega_\mu) E_\lambda |E_\mu|^2, \\ P^{\text{NL}}(\omega_\mu) = i\chi''(\omega_\mu = \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\lambda) E_\mu |E_\lambda|^2.$$

Заметим, что мнимые части, получаемые из обоих соотношений, равны, поскольку имеется одновременное поглощение на обеих частотах. Так как резонансная частота  $\omega_\lambda + \omega_\mu$  имеет одинаковый знак для обеих восприимчивостей, это согласуется с правилом, сформулированным в § 5.

Читатель должен был заметить, что при переходе от (2.88) к (2.89) единица в  $(n_\mu + 1)$  была опущена. Она соответствует, конечно, спонтанному комбинационному излучению при числе начальных стоксовых квантов  $n_\mu$  равном нулю. Это излучение происходит во все типы колебаний  $\mu$  с частотами  $\omega_\mu$ , близкими к  $\omega_\lambda - \omega_{ba}$ . В этом случае плотность конечных состояний определяется не  $g(\nu)$ , а плотностью осцилляторов поля. Заменяя  $g(\nu_\lambda - \nu_\mu)$  в формуле (2.86) на  $Vc^{-3}\nu_\mu^2 d\Omega$  — плотность типов колебаний, имеющих одинаковые поляризации, получаем выражение для дифференциального сечения спонтанного комбинационного рассеяния  $d\sigma/d\Omega$ , отнесенного к единичному телесному углу, к единице объема среды и к одной поляризации излучения<sup>1)</sup>.

$$\frac{d\sigma_{\text{аб спонт}}^{\text{комб}}}{d\Omega} = \frac{N_0 e^4 \omega_\lambda \omega_\mu^3}{\hbar^2 c^4} \left| \sum_c \right|^2. \quad (2.93)$$

<sup>1)</sup> Нормировка в этих расчетах представляет следующую трудность. Сечение рассеяния можно нормировать к одной молекуле. Волновая функция молекулы, входящая в соотношения (2.82), нормирована к единице. Если в единице объема имеется  $N_0$  молекул,



Сравнение (2.92) и (2.89) с (2.93) приводит к соотношению между сечением вынужденного рассеяния и сечением некогерентного спонтанного рассеяния.

### СЕЧЕНИЯ РАССЕЯНИЯ И НЕЛИНЕЙНЫЕ ВОСПРИИМЧИВОСТИ

Связь между действительными частями нелинейных восприимчивостей и сечением рассеяния сложнее. Сущность проблемы можно уяснить, рассматривая, например, восприимчивость, определяемую соотношением

$$P(\omega_3) = \chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_1 E_2,$$

или любую другую восприимчивость, являющуюся тензором нечетного ранга. Вероятность перехода (или сечение рассеяния) всегда содержит квадраты абсолютных величин и поэтому всегда приводит к тензорам восприимчивостей четного ранга. Возникающая трудность связана, очевидно, с тем, что полная определенность чисел квантов в начальном и конечном состояниях поля предполагает полную неопределенность фаз.

Эта проблема возникает уже при определении действительной части линейной восприимчивости в случае, когда поле квантуется. Обычно делается попытка связать линейную дисперсию с сечением релеевского рассеяния. Это сечение получается из выражения для сечения комбинационного рассеяния заменой  $\omega_c$  на  $\omega_c = \omega_l$  и  $k_c$  на  $k_c \neq k_l$ . Конечное состояние материальной системы

то сечение некогерентного рассеяния, отнесенное к единице объема, в  $N_0$  раз больше. Однако волновая функция потока первичных фотонов нормирована к объему  $V = c$ , так как нас интересует число фотонов, проходящих через  $1 \text{ см}^2$  в  $1 \text{ сек}$ . Этот объем  $V$  и входит в (2.82) и (2.88).

В электродипольном приближении сечение рассеяния проще всего найти, конечно, исходя непосредственно из эквивалентного гамильтониана (2.54). Можно также преобразовать обычно приводимое в учебниках выражение, содержащее оператор  $\mathbf{p}, \mathbf{k}$  виду (2.88), если учесть правила коммутации  $\mathbf{p}$  и  $\mathbf{g}$ . Подробности этого преобразования даны Крамерсом.

Предполагалось, что рассеяние происходит в плоскости, перпендикулярной к направлению поляризации электрических полей. Формулу (2.88) нетрудно обобщить и на случай, когда векторы электрических полей до и после рассеяния не параллельны.

совпадает теперь с исходным и должно обозначаться через  $g$ , а не через  $a$ . Промежуточные состояния будем обозначать через  $n$ . Предполагается, что первоначальное число квантов осциллятора поля  $k_\lambda$  равно нулю. Дифференциальное сечение релеевского рассеяния, отнесенное к одной молекуле в состоянии  $g$  и к единичному телесному углу при одной поляризации, согласно (2.93), равно

$$\frac{d\sigma_{\text{спонт}}^{\text{рел}}}{d\Omega} = \frac{e^4 \omega_\lambda^4}{\hbar^2 c^4} \left| \sum_n \left[ \frac{-(\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{a}}_\lambda)_{gn} (\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{a}}_\lambda^*)_{ng}}{\omega_\lambda - \omega_{ng}} + \frac{(\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{a}}_\lambda^*)_{gn} (\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{a}}_\lambda)_{ng}}{\omega_\lambda + \omega_{ng}} \right] \right|^2. \quad (2.94)$$

Отсюда обычно делается заключение, что рассеянное излучение соответствует полю излучения дипольного момента, индуцированного в молекуле исходным полем с волновым вектором  $k_\lambda$  и поляризацией  $\hat{\mathbf{a}}_\lambda$ . Поэтому этот дипольный момент пропорционален сумме, стоящей в (2.94) под знаком модуля. Этот вывод, конечно, верен, но он не позволяет определить фазу дипольного момента.

Имеется также другая причина, не позволяющая связать непосредственно линейную дисперсию с сечением релеевского рассеяния. Рассмотрим сперва систему из  $N_0$  молекул в единице объема, положение которых определяется векторами  $\mathbf{R}_i$ . Хотя фазы типов колебаний с заданным числом квантов неопределенны, относительные фазы в различных точках пространства определяются формой соответствующих типов колебаний в (2.75). Таким образом, сечение релеевского рассеяния этим единичным объемом равно

$$\sigma^{\text{рел}} = \frac{e^4 \omega_\lambda^4}{\hbar^2 c^4} \left| \sum_{i=1}^{N_0} e^{i(\mathbf{k}_\lambda - \mathbf{k}_{\lambda'}) \cdot \mathbf{R}_i} \sum_n \left[ \right] \right|^2, \quad (2.95)$$

где в квадратных скобках должно стоять то же выражение, что и в (2.94). Если  $N_0$  молекул распределены равномерно в кристалле, то сумма по  $i$  в пределе большого объема равна нулю для всех направлений вторичного излучения, кроме тех, для которых удовлетворяется условие отражения Брэгга. На оптических частотах в случае

плотной среды это условие не может быть выполнено, поскольку длина световых волн много больше расстояний между молекулами. В однородных кристаллах и жидкостях релеевское рассеяние отсутствует; оно возможно лишь при наличии флуктуаций плотности относительно среднего распределения, периодического или равномерного.

Может иметь место, конечно, эффективная интерференция излучения различных индуцированных диполей в прямом направлении, для которого  $k_{\lambda} = k_{\lambda'}$ . Однако именно для этого направления формула рассеяния световых квантов (2.95) неприменима. В этом случае конечное состояние системы, состоящей из атомов и поля, идентично исходному состоянию, так что вероятность перехода теряет смысл. Именно интерференция рассеянных вперед волн с падающей волной определяет показатель преломления среды, а тем самым и пути световых лучей.

Эта же трудность возникает и при рассмотрении нелинейных восприимчивостей. Нелинейный дипольный момент системы без центра инверсии, определяемый соотношением

$$P(\omega_3) = \chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_1(\omega_1) E_2(\omega_2),$$

можно связать с сечением рассеяния процесса, в котором участвуют три кванта и три типа колебаний вакуумного поля  $k_1$ ,  $k_2$  и  $k_3$ . Начальное число квантов в этих трех типах колебаний равно  $n_{k_1} + 1$ ,  $n_{k_2} + 1$ , 0. Можно рассчитать вероятность перехода в конечное состояние, в котором числа квантов равны  $n_{k_1}$ ,  $n_{k_2}$ ,  $n_{k_3} = 1$ . Далее, излучение с частотой  $\omega_3$  можно отождествить с излучением дипольного момента, имеющего частоту  $\omega_3$ . Рассматривая элемент объема кристалла, содержащий большое число элементарных ячеек, можно даже показать, что суммарный матричный элемент рассеяния содержит [аналогично (2.95)] сумму вида

$$\sum_l e^{i(k_1 + k_2 - k_3) \cdot R_l}.$$

При достаточно большом объеме эта сумма не равна нулю лишь при  $k_3 = k_1 + k_2$ . Последнее соотношение яв-

ляется условием сохранения импульса при столкновении трех квантов. Решетка кристалла может поглотить только импульс, пропорциональный вектору обратной решетки, который соответствует по порядку величины импульсу рентгеновских квантов. Итак, поскольку решетка в отличие от изолированного атома не может сбалансировать импульсы квантов видимого света, то в случае достаточно больших кристаллов импульс этих квантов должен сохраняться.

Если первоначально имеется также поле  $E_3$  с частотой  $\omega_3$ , то, как следует из полуклассического рассмотрения, чрезвычайно важным является соотношение между фазой поля  $E_3$  и фазой нелинейной поляризации  $P(\omega_3)$ , определяемой фазами полей  $E_1$  и  $E_2$ . От этого соотношения зависит, будет ли волна  $E_3$  расти, совершая отрицательную работу над средой, или будет затухать, совершая положительную работу. Этот эффект, чувствительный к относительным фазам падающих волн, не может быть описан с помощью квантового рассмотрения, в котором числа квантов фиксированы.

Хотя рассмотрение процессов рассеяния, сечения которых содержат степени амплитуд полей, вдвое превышающие ранги искомым тензоров восприимчивостей, может дать большое количество информации, некоторые явления, зависящие от фазовых соотношений между полями, при этом безвозвратно теряются. Из полуклассического же рассмотрения тонкое соотношение между действительными и мнимыми частями комплексных нелинейных или нелинейных восприимчивостей следует совершенно естественно. Возникает вопрос, как можно получить такую информацию из теории, в которой поле квантуется?

#### КОГЕРЕНТНЫЕ КВАНТОВЫЕ СОСТОЯНИЯ. ПРЕДЕЛЫ ПРИМЕНИМОСТИ ПОЛУКЛАССИЧЕСКОГО ПОДХОДА

Для этого необходимо, очевидно, включить фазовую информацию относительно начальных состояний вакуумного поля в квантовое описание, которое должно возможно ближе следовать классическому описанию волн. Это можно сделать, вводя волновые пакеты с минималь-

ной неопределенностью в смысле Эренфеста, являющиеся подходящей суперпозицией состояний с заданными числами квантов. Этот метод позволяет получить наилучшее возможное в квантовой механике одновременное определение амплитуды и фазы. Можно показать, что для состояния, являющегося суперпозицией состояний с различными  $n$ , распределенных по закону Пуассона, выполняются следующие соотношения:

$$\Psi_{\text{ког}} = \sum_{n=0}^{\infty} c_n e^{-i\omega t(n+1/2)} |n\rangle,$$

$$c_n = \left[ \frac{e^{-\bar{n}} (\bar{n})^n e^{-2in\phi}}{n!} \right]^{1/2}, \quad \bar{n} = \sum_{n=0}^{\infty} |c_n|^2 n, \quad (2.96)$$

$$\langle \varphi^2 - \langle \varphi \rangle^2 \rangle^{1/2} \langle n^2 - \langle n \rangle^2 \rangle^{1/2} = \frac{1}{2}.$$

Эти когерентные состояния, введенные еще Шредингером, недавно были подробно исследованы Глаубером [28] и многими другими авторами. Мы не будем здесь обсуждать связь восприимчивостей с этими состояниями. Согласно принципу соответствия, в предельном случае больших  $n$  получаемые с помощью (2.96) результаты должны совпадать с результатами полуклассической теории. Следует иметь в виду, что почти все нелинейные оптические явления наблюдаются при больших  $n$ . Типичный импульс лазера с модулируемой добротностью содержит около  $10^{18}$  световых квантов, распределенных примерно по  $10^2$ — $10^4$  типам колебаний. Информация о фазе может быть утрачена при прохождении луча лазера через среду с потерями. По мере затухания волны волновой пакет с минимальной неопределенностью, описываемый соотношением (2.96), будет переходить в другие когерентные состояния с меньшими значениями  $n$ . После того, как луч ослабится до значений  $n$ , меньших 10 или 5, значение фазы перестает быть точно определенным.

В задаче о генерации гармоник квантовые флуктуации надо учитывать лишь на начальной стадии процесса,

Нарастание интенсивности второй гармоники должно начинаться с уровня нулевых колебаний. Вначале фаза не определена, но, согласно принципу соответствия, любой волновой пакет с частотой  $2\omega$  и заметным значением  $\langle n(2\omega) \rangle$  будет иметь фазу  $\langle \varphi(2\omega) \rangle$ , близкую к  $2\langle \varphi(\omega) \rangle - \pi/2$ . При этом значении фазы отрицательная работа, совершаемая полем над средой, имеющей нелинейную поляризацию с фазой  $2\langle \varphi(\omega) \rangle$ , будет максимальна и будет происходить наиболее быстрое нарастание волны гармоники. Далее, вследствие дисперсии согласование волновых пакетов будет нарушаться.

Все эти результаты, легко получаемые из полуклассической теории, должны следовать и из квантового описания, использующего когерентные состояния. Строгое описание свойств квантовых шумов в нелинейных устройствах и лазерах должно основываться на этих когерентных состояниях. Большая работа в указанном направлении выполнена Люиселлом [29], а также Гордоном и др. [30, 31].

Полуклассическая теория, используемая в настоящей монографии, правильно и гораздо проще описывает нелинейные оптические эффекты; исключением являются случаи, соответствующие настолько низким уровням интенсивности, что становятся существенными квантовые шумы. В этих случаях в полуклассической теории необходимо дополнительно учесть процессы спонтанного излучения, описанные выше в этом параграфе. При этом к когерентным полям добавляются поля со случайными фазами и с амплитудами, характерными для спонтанного излучения. Эти поля и являются «шумовыми источниками», которые добавляются к классическим полям. Установление классического поля в лазере начинается с уровня этого шума. Фаза поля в лазерном типе колебаний априори неизвестна. По мере того как волна, распространяясь по образцу, нарастает и многократно возвращается обратно за счет отражения от зеркал, устанавливается определенная (но заранее неизвестная) фаза. По той же причине априори неизвестна и фаза поля со стоковой частотой в лазере, использующем вынужденное комбинационное рассеяние.

Можно полагать, что введение в полуклассическую теорию некогерентных шумовых источников даст удовлетворительное (хотя и не строгое) описание всех явлений, имеющих практическое значение.

### КВАНТОВАЯ ТЕОРИЯ ЗАТУХАНИЯ

В заключение рассмотрим в общих чертах теорию релаксации матрицы плотности при взаимодействиях системы с квантованными случайными полями. Однородное уширение оптических линий часто обусловлено спонтанным излучением фотонов или фононов. Фононное поле можно проквантовать таким же образом, как и электромагнитное поле. Для упрощения вычислений рассмотрим только два энергетических уровня  $|a\rangle$  и  $|b\rangle$  гамильтониана  $\mathcal{H}_0$  материальной системы. Гамильтониан поля (электромагнитного или колебательного) обозначим через  $\mathcal{H}_f$ . Предположим, что взаимодействие между материальной системой и полем можно представить в виде произведения оператора  $O$ , действующего на материальную систему, и оператора  $F$ , действующего на полевые переменные. Стохастическое возмущение, зависящее от времени, равно

$$\mathcal{H}_{\text{вз}}(t) = OF(t) = e^{+i\hbar^{-1}\mathcal{H}_f t} F e^{-i\hbar^{-1}\mathcal{H}_f t} O. \quad (2.97)$$

Случайная функция  $F(t)$  является теперь квантовым оператором, действующим на полевые переменные. Если в момент времени  $t=0$  система находилась в состоянии  $|b\rangle$ , а поле в состоянии  $|f\rangle$ , то, согласно (2.17), вероятность обнаружить в момент времени  $t$  систему в состоянии  $|a\rangle$  и поле в состоянии  $|f'\rangle$  равна

$$W_{af',bf}(t) = \hbar^{-2} \int_0^t dt' \int_0^t dt'' \langle b, f | \mathcal{H}_{\text{вз}}(t') | a, f' \rangle \times \\ \times \langle a, f' | \mathcal{H}_{\text{вз}}(t'') | b, f \rangle = |O_{ab}|^2 \hbar^{-2} \int_0^t dt \int_0^{\infty} d\tau \langle f | F(t) | f' \rangle \times \\ \times \langle f' | F(t-\tau) | f \rangle e^{-i\omega_{ba}\tau}.$$

Отсюда, проводя статистическое усреднение по начальным состояниям поля  $f$  и суммируя по конечным состоя-

ниям  $f'$ , получаем вероятность перехода, пропорциональную времени

$$\omega_{b \rightarrow a} = \hbar^{-2} |O_{ab}|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{-i\omega_{ab}\tau} \sum_{f,f'} p(f) \langle f | F(t) | f' \rangle \times \\ \times \langle f' | F(t-\tau) | f \rangle. \quad (2.98)$$

Вероятность найти систему первоначально в состоянии  $f$  равна

$$p(f) = \frac{e^{-E_f/kT}}{\sum_e e^{-E_e/kT}} = \frac{e^{-\mathcal{H}_f/kT}}{\text{Sp } e^{-\mathcal{H}_f/kT}}. \quad (2.99)$$

Можно ввести квантовомеханический аналог функции корреляции

$$g(\tau) = \text{Sp} [F(t) p(\mathcal{H}_f) F(t+\tau)], \quad (2.100)$$

не зависящий от представления  $\mathcal{H}_f$ . Рассматривая соответствующую спектральную плотность

$$J(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} g(\tau) e^{-i\omega\tau} d\tau, \quad (2.101)$$

вероятность перехода можно представить в виде

$$\omega_{b \rightarrow a} = \hbar^{-2} |O_{ab}|^2 J(\omega_{ba}). \quad (2.102)$$

Для обратного перехода имеем

$$\omega_{a \rightarrow b} = \hbar^{-2} |O_{ab}|^2 J(\omega_{ab}). \quad (2.103)$$

Эти два выражения не равны, что легко показать, оценивая  $J(\omega)$  в представлении, в котором гамильтониан  $\mathcal{H}_f$  диагонален

$$(\text{Sp } e^{-E_f/kT}) J(\omega_{ab}) = \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{f,f'} |\langle f | F | f' \rangle|^2 e^{-E_f/kT} \times \\ \times e^{i(\omega_{f'f} - \omega_{ab})\tau} d\tau. \quad (2.104)$$

Поскольку распределение состояний резервуара является однородным, интеграл по  $\tau$  по существу представляет

собой  $\delta$ -функцию:

$$\begin{aligned} \left(\sum e^{-E_f/kT}\right) J(\omega_{ab}) &= \sum_f |\langle f|F|f-\omega_{ab}\rangle|^2 e^{-E_f/kT}, \\ \left(\sum e^{-E_f/kT}\right) J(-\omega_{ab}) &= \sum_f |\langle f|F|f+\omega_{ab}\rangle|^2 e^{-E_f/kT} = \\ &= \sum_f |\langle f-\omega_{ab}|F|f\rangle|^2 e^{-E_f/kT} e^{+\hbar\omega_{ab}/kT}. \end{aligned}$$

Отсюда

$$\omega_{a\rightarrow b} = \omega_{b\rightarrow a} e^{+\hbar\omega_{ab}/kT}. \quad (2.105)$$

Таким образом, априорная вероятность того, что материальная система совершит переход вниз (с уменьшением ее энергии), больше вероятности перехода вверх — в точном соответствии с равенством (2.20), которое было постулировано на основании принципа детального равновесия. Происхождение этого неравенства, конечно, весьма просто. Переход материальной системы в состоянии с меньшей энергией требует соответствующего возрастания энергии поля, которое служит тепловым резервуаром. Поскольку состояния резервуара с меньшими энергиями имеют априори большую вероятность быть занятыми, то переход вверх для данной пары уровней резервуара более вероятен.

В оптическом диапазоне  $\hbar\omega \gg kT$ , и температуру резервуара можно считать равной нулю. Все оптические осцилляторы вакуума находятся в основном состоянии. Материальная система не совершает переходов вверх. Переходы вниз соответствуют спонтанному излучению. Равенство (2.104) можно записать в виде

$$J(+\omega_{ab}) = \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{\lambda} |\langle n_{\lambda}=0|F|n_{\lambda}=1\rangle|^2 e^{i(\omega_{\lambda}-\omega_{ab})\tau} d\tau, \quad (2.106)$$

где суммирование по  $\lambda$  проводится по всем вакуумным осцилляторам. Интегрирование по  $\tau$  дает плотность осцилляторов на резонансной частоте, равную  $c^{-3}V\nu_{ab}^2 d\nu d\Omega$ . Если подставить в (2.103) соответствующее выражение для матричного элемента  $O_{ab}$ , то с помощью (2.106)

обычным образом получаем вероятность спонтанного излучения. Все рассуждения § 2 настоящей главы можно применить теперь к затуханию, обусловленному спонтанным излучением. Если учесть конечность температуры теплового поля излучения, то из (2.104) и (2.106) получаем выражение для вероятности перехода вниз

$$\omega_{a\rightarrow b} = (\bar{n} + 1) \omega_{a\rightarrow b}^{\text{спонт}} \quad (2.107)$$

и для вероятности перехода вверх

$$\omega_{b\rightarrow a} = \bar{n} \omega_{a\rightarrow b}^{\text{спонт}}, \quad (2.108)$$

где

$$\bar{n} = (e^{\hbar\omega_{ab}/kT} - 1)^{-1}$$

— функция Планка для среднего числа возбужденных фотонов при тепловом равновесии.

Поперечная релаксация двухуровневой системы описывается константой  $\Gamma_{ab}$ . Если диагональные элементы гамилтониана взаимодействия, дающие адиабатические вклады, равны нулю, то поперечное затухание равно

$$\Gamma_{ab} = \frac{1}{2} (\Gamma_{aa} + \Gamma_{bb}) = \frac{1}{2} (2\bar{n} + 1) \omega_{a\rightarrow b}^{\text{спонт}}. \quad (2.109)$$

Согласно результатам § 2 настоящей главы, частотная зависимость отклика на гармонический сигнал имеет лоренцеву форму, которая при низких температурах ( $\bar{n} \ll 1$ ) имеет вид

$$g(\nu) = \frac{\omega_{a\rightarrow b}^{\text{спонт}}}{(\omega - \omega_{ab})^2 + \frac{1}{4} (\omega_{a\rightarrow b}^{\text{спонт}})^2}, \quad \nu = \frac{\omega}{2\pi}. \quad (2.110)$$

Эта функция формы линии описывает также форму самой линии спонтанного излучения. Спонтанное излучение имеет такую форму для всех направлений излучения и для любой поляризации. Это можно показать с помощью следующих рассуждений. Выделим один вакуумный осциллятор частоты  $\omega$  с заданными направлением и поляризацией. Все остальные осцилляторы обуславливают практически такое же случайное возмущение, как и раньше, следовательно, затухание и форма

линии  $g(\nu)$  остаются неизменными. Ясно, что такое рассмотрение спонтанного излучения основано на большой плотности вакуумных осцилляторов. Поле излучения действительно может служить тепловым резервуаром. В случае, когда материальная система заключена в объемный резонатор, имеющий только один или несколько типов колебаний в интересующем нас диапазоне частот, картина будет совершенно иной. Джейнс [32] дал изящное квантовомеханическое рассмотрение взаимодействия между двухуровневой материальной системой и одним осциллятором поля. В оптическом диапазоне с такими случаями не приходится иметь дела.

На этом мы заканчиваем главу, посвященную квантовомеханическому рассмотрению нелинейных восприимчивостей. В ней было показано, как с помощью метода матрицы плотности и полуклассического приближения можно рассчитать средние значения фурье-компонент поляризации в виде ряда по возрастающим степеням амплитуд приложенных полей. Феноменологические релаксационные члены были выражены через случайные возмущения, включая затухание за счет спонтанного излучения. При дальнейшем развитии теории, средние значения нелинейной поляризации, определяемые заданными полями, должны в свою очередь рассматриваться как дополнительные источники этих полей. Этот следующий шаг будет сделан в гл. 3. Поскольку фурье-компоненты были рассчитаны с помощью полуклассического метода, поля со случайными фазами, обусловленные спонтанным излучением, должны добавляться к классическим полям.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Tolman R. C., Principles of Statistical Mechanics, New York, 1938.
2. Abragam A., Principles of Nuclear Magnetism, New York, 1961. (Имеется перевод: А. Абрагам, Ядерный магнетизм, ИЛ, 1964.)
3. Slichter C. P., Principles of Magnetic Resonance, New York, 1962.
4. Bloembergen N., Shen Y. R., Phys. Rev., **133**, A37 (1964) (См. приложение III к настоящей книге.)
5. Файн В. М., Яшин Э. Г., ЖЭТФ, **46**, 695 (1964).

6. Van Vleck J. H., Weisskopf V. F., Rev. Mod. Phys., **17**, 227 (1945).
7. Armstrong J. A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S., Phys. Rev., **127**, 1918 (1962). (См. приложение I к настоящей книге.)
8. Butcher P. N., McLean T. P., Proc. Phys. Soc., **81**, 219 (1963).
9. Loudon R., Proc. Phys. Soc., **80**, 952 (1962).
10. Kelley P. L., Journ. Chem. Phys. Sol., **24**, 607 (1963).
11. Price P. J., Phys. Rev., **130**, 1792 (1963).
12. Cheng H., Miller P. B., Phys. Rev., **134**, A683 (1964).
13. Adler E., Phys. Rev., **134**, A728 (1964).
14. Nozieres P., Pines D., Phys. Rev., **109**, 762 (1958).
15. Adler S., Phys. Rev. **126**, 413 (1962).
16. Ducuing J., Thèse, Université de Paris, 1964.
17. Goepfert-Mayer M., Ann. Phys., **9**, 273 (1931).
18. Fiutak J., Canad. Journ. Phys., **41**, 12 (1963).
19. Power E. A., Zienau S., Phil. Trans. Roy. Soc., **251A**, 54 (1959).
20. Placzek G., Marx Handbuch der Radiologie, 2 Aufl., Bd VI, Pt. II (1934). (Имеется перевод: Г. Плачек, Релевское рассеяние и раман-эффект, Харьков, 1935.)
21. Pershan P. S., Phys. Rev., **130**, 919 (1963).
22. Butcher P. N., McLean T. P., Proc. Phys. Soc., **83**, 579 (1964).
23. Caspers W. J., Phys. Rev., **133A**, 1249 (1964).
24. Kramers H. A., Quantum Mechanics, Amsterdam, 1957, p. 482.
25. Heitler W., Quantum Theory of Radiation, 3 ed., New York, 1954. (Имеется перевод: В. Гайтлер, Квантовая теория излучения, ИЛ, 1956.)
26. Blaton J., Zs. Phys., **69**, 835 (1931).
27. Guttinger P., Helv. Phys. Acta, **5**, 237 (1932).
28. Glauber R. J., Phys. Rev., **130**, 2529 (1963); **131**, 2766 (1963).
29. Louisell W. H., Yariv A., Siegman A. E., Phys. Rev., **124**, 1646 (1961).
30. Gordon J. P., Louisell W. H., Walker L. R., Phys. Rev., **129**, 481 (1963).
31. Gordon J. P., Walker L. R., Louisell W. H., Phys. Rev., **130**, 806 (1963).
32. Jaynes E. T., Cummings F. W., Proc. IEEE, **51**, 89 (1963).
- 33\*. Блохинцев Д. И., Основы квантовой механики, М., 1963, стр. 167.
- 34\* Файн В. М., Ханин Я. И., Квантовая радиофизика, М., 1965, стр. 18.

## УРАВНЕНИЯ МАКСВЕЛЛА В НЕЛИНЕЙНОЙ СРЕДЕ

В гл. 1 и 2 нелинейная поляризация или нелинейная плотность тока были выражены через поля; в свою очередь эти величины сами служат источниками полей. Обсуждение связанных с этим обстоятельств является предметом настоящей главы. Нелинейная плотность тока, вычисленная в гл. 1 классическими методами, а в гл. 2 — как среднее значение квантовомеханического оператора, теперь должна быть введена в уравнения Максвелла.

Исходными являются, как известно, микроскопические уравнения Максвелла, записанные для полей в вакууме и точечных зарядов. Они имеют вид (приняты стандартные обозначения)

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{b} &= \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{j}, & \nabla \cdot \mathbf{e} &= 4\pi\rho, \\ \nabla \times \mathbf{e} &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{b}}{\partial t}, & \nabla \cdot \mathbf{b} &= 0. \end{aligned} \quad (3.1)$$

Здесь  $\mathbf{j}$  — микроскопическая плотность тока, включающая в соответствии с уравнением (2.38) линейную и нелинейную части и спиновую плотность тока. Макроскопические уравнения Максвелла получаются усреднением уравнений (3.1) по объему, много большему характерных атомных размеров, но малому по сравнению с длиной волны [1]. Для очень коротких волн (например, для рентгеновских лучей) такой способ, очевидно, неприменим. На оптических частотах такое усреднение дает известные преимущества и подробно описано в литературе. В результате усреднения приходим к уравнениям

для макроскопических полей

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{B} &= \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}, \\ \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Усредненную по объему плотность тока обычно разлагают в ряд по мультиполям, предварительно выделив плотность тока проводимости:

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}_{\text{пров}} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + c \nabla \times \mathbf{M} - \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \cdot \mathbf{Q}) + \dots \quad (3.3)$$

Такое разложение, вообще говоря, не является однозначным. Электрический дипольный момент определен однозначно лишь в случае, когда единичный элемент объема в целом является нейтральным. Вектор  $\mathbf{M}$  определен неоднозначно, если производная  $\partial \mathbf{P} / \partial t$  отлична от нуля, а квадрупольный момент определен неоднозначно, если вектор  $\mathbf{P}$  отличен от нуля. Тем не менее подобное разложение оказывается полезным, если рассматриваемый объем можно разделить на единичные ячейки, для которых указанные моменты могут быть вычислены как последовательные приближения для величины  $\mathbf{J}$ . Все они могут содержать, помимо линейных, и нелинейные члены.

### § 1. Энергетические соотношения

Из уравнений Максвелла обычным образом (см., например, [2]), нетрудно получить закон сохранения энергии (см. [3]):

$$\frac{c}{4\pi} \nabla \cdot \mathbf{E} \times \mathbf{B} + \frac{1}{4\pi} \mathbf{B} \cdot \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} + \frac{1}{4\pi} \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mathbf{E} \cdot \mathbf{J} = 0. \quad (3.4)$$

Запишем материальные уравнения

$$\mathbf{H} = \mathbf{B} - 4\pi\mathbf{M} \quad \text{и} \quad \mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P}.$$

Последнее определение предполагает, что

$$\nabla \cdot \mathbf{D} - 4\pi \nabla \cdot \mathbf{Q} = 4\pi\rho.$$

Подставляя (3.3) в уравнение (3.4), получаем

$$\frac{c}{4\pi} \nabla \cdot \left( \mathbf{E} \times \mathbf{H} - \frac{4\pi}{c} \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial t} \right) + \frac{1}{4\pi} \mathbf{H} \cdot \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} + \frac{1}{4\pi} \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \nabla \mathbf{E} : \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial t} = 0. \quad (3.5)$$

Отметим, что наличие в (3.5) квадрупольного момента, зависящего от времени, приводит к необходимости дать новое определение вектора Пойнтинга; в этом случае он определяется величиной, стоящей в скобках в уравнении (3.5). Из (3.5) следует, что сумма потока энергии из элемента объема и работы, совершенной полем над единицей объема материальной среды, равна уменьшению плотности энергии, запасенной электромагнитным полем,

$$-\frac{\partial}{\partial t} \left( \frac{H^2}{8\pi} + \frac{E^2}{8\pi} \right).$$

Для среды без потерь работа, произведенная над единицей объема, равна величине, на которую возрастает плотность электромагнитной части внутренней энергии среды  $U$ :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \mathbf{H} \cdot \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} + \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \nabla \mathbf{E} : \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial t}. \quad (3.6)$$

Введем потенциальную функцию  $F$  (свободную энергию) с помощью соотношения

$$F = U - \mathbf{H} \cdot \mathbf{M} - \mathbf{E} \cdot \mathbf{P} - \nabla \mathbf{E} : \mathbf{Q}. \quad (3.7)$$

Эта энергия связана с работой, проделанной генераторами для создания полей в среде; она имеет полный дифференциал

$$dF = -\mathbf{P} \cdot d\mathbf{E} - \mathbf{M} \cdot d\mathbf{H} - \mathbf{Q} : d\nabla \mathbf{E}. \quad (3.8)$$

Если функция  $F$  выражена через напряженности полей, то соответствующие поляризации могут быть получены путем ее дифференцирования.

До сих пор рассмотрение носило общий характер. Теперь мы ограничимся случаем слабо нелинейной среды, находящейся в квазистационарном состоянии. Представляя поля в виде гармонических сигналов с ампли-

тудами, медленно изменяющимися во времени, для медленно меняющихся амплитуд можно записать

$$E(\omega, t) = \frac{1}{2T} \int_{t-T}^{t+T} E(t) e^{-i\omega t} dt = E^*(\omega, t). \quad (3.9)$$

Время  $T$  выбирается, с одной стороны, таким, чтобы выполнялось условие  $\omega T \gg 1$ , но вместе с тем таким, чтобы величина  $E(\omega, t)$  не зависела от  $T$ . При значительной нелинейности одновременное выполнение указанных условий невозможно; к счастью, оптические нелинейности можно всегда рассматривать как малые возмущения, так что поля хорошо описываются с помощью конечного числа фурье-компонент<sup>1)</sup>. Рассматривая спектральные компоненты поляризации и полей, определенные согласно (3.9) на  $\mathfrak{R}$  частотах, для усредненного по времени полного дифференциала  $F$  имеем (в комплексной записи)

$$\langle dF \rangle = -2\text{Re} \sum_{i=1}^{\mathfrak{N}} [\mathbf{P}(\omega_i) \cdot d\mathbf{E}^*(-\omega_i) + \mathbf{M}(\omega_i) \cdot d\mathbf{H}^*(-\omega_i) + \mathbf{Q}(\omega_i) : \nabla \mathbf{E}^*(-\omega_i)] \quad (3.10)$$

[быстро флуктуирующие члены в (3.8) отброшены]. Для того чтобы в вакууме перейти от стационарного состояния, описываемого амплитудами Фурье  $E^*(-\omega_i)$  и т. д., к новому стационарному состоянию с амплитудами Фурье  $E^*(-\omega_i) + dE^*(-\omega_i)$ , генераторы должны произвести определенную работу. При наличии среды с заданными фурье-компонентами поляризации работа, которая должна быть проделана внешними генераторами, оказывается меньшей на величину  $\langle dF \rangle$ . Фурье-ком-

<sup>1)</sup> Представление (3.9) соответствует полю, «недоразложенному» в интеграл Фурье, и связано с возможностью выделения зависимости поля от «быстрого» и «медленного» времени. Для поля в нелинейной недиссипативной среде введение таких двух различных временных масштабов возможно, если время, в течение которого спектральное распределение поля существенно меняется за счет нелинейного взаимодействия, значительно превышает период колебаний. — Прим. ред.



поненты поляризации получаются из  $F$  дифференцированием:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\omega_i) &= -\frac{\partial F}{\partial \mathbf{E}^*(-\omega_i)}, \\ \mathbf{M}(\omega_i) &= -\frac{\partial F}{\partial \mathbf{H}^*(-\omega_i)}, \\ \mathbf{Q}(\omega_i) &= -\frac{\partial F}{\partial \nabla \mathbf{E}^*(-\omega_i)}. \end{aligned}$$

Для линейного случая эти соотношения хорошо известны; в линейной среде  $F$  является квадратичной функцией амплитуд полей. Например, для электрического диполя

$$F^L = -\sum \mathbf{E}^*(-\omega_i) \cdot \chi(\omega_i) \cdot \mathbf{E}(\omega_i).$$

Если же изменение свободной энергии в непоглощающей среде выразить рядом по степеням амплитуд полей, то можно будет вычислить фурье-компоненты нелинейной поляризации различного порядка. Нелинейная часть усредненной по времени свободной энергии может быть связана с нелинейной восприимчивостью. В гл. 1 было показано, как пространственно-частотные перестановочные соотношения для нелинейной восприимчивости следуют из того физического факта, что работа, затраченная при достижении стационарного состояния, не зависит от способа его достижения. При этом изменения считаются медленными в смысле соотношения (3.9), так что сохраняется смысл понятия «частота». Итак в общем случае функцию  $F$  следует записать в виде ряда по величинам  $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{H}$  и  $\nabla \mathbf{E}$ . Можно вывести таким образом компоненты электрической поляризации, пропорциональные амплитуде магнитного поля, и т. д. В среде с центром инверсии младшие нелинейные члены в разложении свободной энергии  $F$  по полю имеют вид

$$\begin{aligned} \langle F_{\text{симм}}^{\text{NL}} \rangle &= -\chi_1 \mathbf{E} \mathbf{E} \mathbf{E}^* - \chi_2 \mathbf{E} \mathbf{E}^* \mathbf{H} - \chi_3 \mathbf{E} \mathbf{E} \nabla \mathbf{E}^* - \chi_4 \mathbf{E} \mathbf{E}^* \nabla \mathbf{E} - \\ &- \chi_5 \mathbf{E} \mathbf{E} \mathbf{E} \mathbf{E}^* - \chi_6 \mathbf{E} \mathbf{E} \mathbf{E}^* \mathbf{E}^* + \text{Компл. сопр.} \quad (3.11) \end{aligned}$$

Сумма отрицательных частот, соответствующих величинам со звездочкой, и положительных частот, соответствующих членам без звездочек, равна нулю.

Следует отметить, что при наличии дисперсии вычисление средней внутренней энергии среды  $U^{(1)}$  представляет определенные трудности. Поскольку в чисто монохроматическом поле систематического изменения энергии не происходит, мы рассмотрим квазимонохроматическое поле вида

$$\mathbf{E}(t) = \int_{\omega_i - \delta}^{\omega_i + \delta} \mathbf{E}(\eta) e^{-i(\omega_i + \eta)t} d\eta.$$

Отсюда

$$\frac{\partial \mathbf{E}(t)}{\partial t} = -i\omega_i \mathbf{E}(t) - i \int \eta \mathbf{E}(\eta) e^{-i(\omega_i + \eta)t} d\eta.$$

Рассмотрим линейную диспергирующую среду, для которой поляризация имеет вид

$$\mathbf{P}(t) = \int \chi(\omega_i + \eta) \mathbf{E}(\eta) e^{-i(\omega_i + \eta)t} d\eta.$$

Разложим линейную восприимчивость в ряд вблизи  $\omega_i$  и, поскольку величина  $\mathbf{E}(\omega_i)$  меняется достаточно медленно, удержим только члены первой степени по  $\eta$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(t) &= \chi(\omega_i) \mathbf{E}(t) + \left( \frac{\partial \chi}{\partial \omega} \right)_{\omega_i} \int \eta \mathbf{E}(\eta) e^{-i(\omega_i + \eta)t} d\eta = \\ &= \chi(\omega_i) \mathbf{E}(t) - \omega_i \left( \frac{\partial \chi}{\partial \omega} \right)_{\omega_i} \mathbf{E}(t) + i \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \left( \frac{\partial \chi}{\partial \omega} \right)_{\omega_i}. \end{aligned}$$

Среднее значение электромагнитной части внутренней энергии среды равно

$$\begin{aligned} \langle U \rangle &= 2\text{Re} \int_0^{E(\omega_i)} \mathbf{E}^* \cdot d\mathbf{P} = 2\text{Re} \mathbf{E}^*(\omega_i) \cdot \mathbf{P}(\omega_i) - \\ &- 2\text{Re} \int_0^{E(\omega_i)} \mathbf{P}(t) \cdot d\mathbf{E}^*(t) = 2\text{Re} \left[ \mathbf{E}^*(\omega_i) \cdot \mathbf{P}(\omega_i) - \right. \\ &\left. - \frac{1}{2} \mathbf{E}^*(\omega_i) \cdot \chi(\omega_i) \cdot \mathbf{E}(\omega_i) + \frac{1}{2} \omega_i \mathbf{E}^*(\omega_i) \cdot \left( \frac{\partial \chi}{\partial \omega} \right)_{\omega_i} \cdot \mathbf{E}(\omega_i) \right]. \end{aligned}$$

<sup>1)</sup> Детальное обсуждение вопроса об энергии поля в диспергирующих линейных средах можно найти в [5\*]. — Прим. ред.

Опустим индекс  $i$  у частот в фурье-компонентах. Исключая множитель 4, обусловленный нашим определением амплитуд (см. гл. 1), получаем обычный результат

$$\langle U \rangle = \mathbf{E}^*(\omega) \cdot \frac{\partial(\omega\mathbf{X})}{\partial\omega} \cdot \mathbf{E}(\omega). \quad (3.12)$$

Можно убедиться, что это выражение действительно равно сумме кинетической и потенциальной энергии находящегося под внешним воздействием гармонического осциллятора, который моделирует процессы в линейной диспергирующей среде.

При наличии дисперсии переход от формулы (3.8) к усредненному по времени соотношению (3.10) нуждается в некоторых уточнениях. Дифференцируя функцию  $F^L$  по  $E_j^*$ , получаем

$$-\frac{\partial F^L}{\partial E_j^*} = \sum_i \left[ \chi_{ji}(\omega) + \omega \frac{\partial \chi_{ji}}{\partial \omega} \right] E_j.$$

Дифференцируя  $F^L$  также и по  $E_j$ , получаем следующее соотношение:

$$\chi_{ij}(\omega) + \omega \frac{\partial \chi_{ij}}{\partial \omega} = \chi_{ji}(\omega) + \omega \frac{\partial \chi_{ji}}{\partial \omega}.$$

Отсюда сразу следует соотношение симметрии для тензора линейной восприимчивости,  $\chi_{ij}(\omega) = \chi_{ji}(\omega)$ .

Полученные соотношения могут быть распространены на случай нелинейной диспергирующей среды. Если амплитуда поля с частотой  $\omega_1$  медленно возрастает, в то время как амплитуды полей с частотами  $\omega_2$  и  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  остаются постоянными, то количество работы, переданной над средой и обусловленной нелинейностью, равно

$$2\text{Re} \left[ \int_0^{E(\omega_1)} \mathbf{E}_3^* \cdot d\mathbf{P}^{NL}(\omega_1 + \omega_2, t) + \int_0^{E(\omega_1)} \mathbf{E}_2 \cdot d\mathbf{P}^{NL}(\omega_1 - \omega_3, t) \right].$$

Изменение амплитуды  $E(\omega_1)$  является достаточно медленным; подынтегральные величины  $\mathbf{E}_3^*$  и  $\mathbf{E}_2$  не зависят от  $E(\omega_1, t)$ . Обусловленный нелинейностью прирост усредненной по времени внутренней энергии среды равен

$$\langle U^{NL} \rangle = 2\text{Re} [\mathbf{E}_3^* \cdot \mathbf{P}^{NL}(\omega_1 + \omega_2) + \mathbf{E}_2 \cdot \mathbf{P}^{NL}(\omega_1 - \omega_3)].$$

Для соответствующего изменения свободной энергии  $F$  получаем

$$\langle F^{NL} \rangle = -2\text{Re} \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{P}^{*NL}(\omega_2 - \omega_3) = -2\text{Re} [\chi^{NL} \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 \mathbf{E}_3^*].$$

В случае, когда все частоты различны, наличие дисперсии не приводит к необходимости внесения каких-либо поправок в эти формулы. При равенстве же двух частот следует добавить производные нелинейной восприимчивости по этим частотам, аналогично тому, как это было сделано для линейной среды. Пространственно-частотные соотношения симметрии остаются справедливыми и в этом случае. Более важное приложение пространственно-частотные соотношения симметрии находят в случае, когда дисперсия в непосредственной окрестности частот  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$  и т. д. очень слаба, однако имеются области сильного поглощения и дисперсии в интервалах между этими частотами. В этом случае тонкий анализ энергетических соотношений при наличии дисперсии малоинтересен.

В областях сильной дисперсии всегда существенны потери. Для поглощающей среды оказывается возможным выразить поглощение или скорость изменения энтропии в стационарном состоянии через диссипативную функцию. Этот вопрос был рассмотрен Першаном [3], который обратил внимание на связь в линейном случае с соотношениями Онзагера. Поскольку наиболее полезные свойства симметрии для той части нелинейной восприимчивости, которая соответствует потерям, были уже выведены в гл. 2, обсуждение этого вопроса заканчивается. Некоторые свойства нелинейных членов в выражении для свободной энергии (3.11) обсуждаются в гл. 5.

## § 2. Действующие поля в оптически плотной среде

В гл. 1 и 2 дипольный момент молекулы (или группы молекул) был выражен через действующее на нее электрическое поле. Это действующее (или локальное) поле совпадает с макроскопическим полем, фигурирующим в уравнениях Максвелла, только в разреженных газах.

В конденсированной же среде следует принять во внимание влияние соседних диполей. Однако различием среднего действующего и макроскопического полей для случая валентных электронов в полупроводниках и металлах можно пренебречь. Для локализованных ионов или групп молекул различие между действующим и макроскопическим полями может быть рассчитано методом Лоренца.

Рассмотрим для простоты ион в среде с кубической симметрией. Действующее поле равно

$$\mathbf{E}_{\text{loc}} = \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P} = \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}^L + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}^{\text{NL}}. \quad (3.13)$$

Здесь в поляризацию включены и линейное и нелинейное слагающие. Обозначим линейную поляризуемость через  $\alpha$ , нелинейную поляризуемость через  $\chi_{ijk}^{\text{ат}}$  ( $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ). Пусть в  $1 \text{ см}^3$  содержится  $N$  ионов; тогда для линейной поляризации имеем

$$\mathbf{P}^L = N\alpha \mathbf{E}_{\text{loc}}. \quad (3.14)$$

Нелинейная поляризация равна

$$\mathbf{P}^{\text{NL}} = N\chi^{\text{ат}} \mathbf{E}_{1,\text{loc}} \cdot \mathbf{E}_{2,\text{loc}}. \quad (3.15)$$

Для вектора электрической индукции имеем

$$\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}^L + 4\pi \mathbf{P}^{\text{NL}}. \quad (3.16)$$

Комбинируя выражения (3.13) и (3.14), получаем

$$\mathbf{P}^L = \frac{N\alpha}{1 - \frac{4\pi}{3} N\alpha} \left( \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}^{\text{NL}} \right) = \frac{\varepsilon - 1}{4\pi} \left( \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}^{\text{NL}} \right).$$

Подставляя последнее выражение в (3.16), находим

$$\mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E} + 4\pi \frac{\varepsilon + 2}{3} \mathbf{P}^{\text{NL}} = \varepsilon \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}^{\text{NLS}}. \quad (3.17)$$

Отсюда следует, что в плотной среде величина нелинейной поляризации, которая должна быть подставлена в уравнения Максвелла, «нелинейный источник», в  $(\varepsilon + 2)/3$  раз больше индуцированного нелинейного ди-

польного момента, умноженного на число ионов в  $1 \text{ см}^3$ . Комбинируя выражения (3.15)—(3.17), находим связь между макроскопической нелинейной восприимчивостью и нелинейной поляризуемостью изолированной молекулы или атома:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_3) &= \frac{\varepsilon(\omega_1) + 2}{3} \frac{\varepsilon(\omega_2) + 2}{3} \frac{\varepsilon(\omega_3) + 2}{3} \times \\ &\times N\chi^{\text{ат}}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) = \\ &= \chi^{\text{макр}}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2). \end{aligned} \quad (3.18)$$

Так как поправочный коэффициент, стоящий перед  $\chi^{\text{ат}}$  (в 3.18), симметричен относительно перестановки частот,  $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ , перестановочные соотношения, выведенные ранее для  $\chi^{\text{ат}}$ , остаются справедливыми для макроскопической нелинейной восприимчивости  $\chi^{\text{макр}}$ . Приведенные формулы приложимы, по-видимому, лишь к кристаллам типа  $\text{CuCl}$  (т.е. ионным класса  $\bar{4}3m$ ). Это тетраэдральные кубические кристаллы без центра инверсии. Учет выведенных выше поправочных коэффициентов, разумеется, весьма существен для сред с большими диэлектрическими проницаемостями. При выводе соотношения (3.18) предполагалось, что валентный электрон локализован вблизи узла решетки с кубической симметрией. Очевидно, что это предположение совершенно не соответствует условиям, в которых находятся валентные электроны в полупроводниках типа  $\text{GaAs}$ ; в этом случае поправочный коэффициент, учитывающий отличие действующего поля от макроскопического, следует положить, по-видимому, равным единице. Сомнительно, чтобы и для  $\text{CuCl}$  соотношение (3.18) являлось вполне точным.

Соотношение (3.17) остается справедливым для нелинейностей более высокого порядка. Так, в выражении для макроскопической восприимчивости, описывающей генерацию третьей гармоники в щелочно-галогидных кристаллах, необходимо учесть поправочный коэффициент

$$\frac{[\varepsilon(3\omega) + 2][\varepsilon(\omega) + 2]^2}{81}.$$

Аналогичный поправочный коэффициент необходим и в случае жидкости. При расчете комбинационной восприимчивости молекулярных неассоциированных жидкостей величину  $\chi^{\text{ат}}(\omega_a = 2\omega_L - \omega_s)$  следует умножить на поправочный коэффициент

$$\frac{[\varepsilon(\omega_L) + 2]^2 [\varepsilon(\omega_s) + 2] [\varepsilon(\omega_a) + 2]}{81}$$

Для сред, не обладающих кубической симметрией, фактор действующего поля Лоренца в отличие от (3.13) имеет, вообще говоря, тензорную структуру. Перестановочные соотношения остаются справедливыми и здесь, как это следует из общего энергетического рассмотрения, проведенного в § 1. Более детальное рассмотрение вопроса об учете отличия действующего поля от макроскопического в анизотропной среде проведено в приложении I.

Корректное же определение поправочных коэффициентов в анизотропных средах (как, например, в кристалле  $\text{KN}_2\text{PO}_4$ ) оказывается затруднительным. Поскольку этими поправками ни в коем случае нельзя пренебречь, они вносят значительную неопределенность в количественные результаты теории.

### § 3. Уравнения связанных волн в нелинейной среде

После того как в принципе уточнено понятие макроскопической нелинейной восприимчивости, обратимся вновь к уравнениям Максвелла. Полезно записать эти уравнения для каждой фурье-компоненты, выделяя при этом нелинейные члены. При таком способе записи четко выявляются свойства «нелинейного источника» (nonlinear source — NLS). Для простоты будем рассматривать немагнитную среду,  $\mu^L = 1$ .

$$\nabla \times \mathbf{E}(\omega_i) = +i \left( \frac{\omega_i}{c} \right) \mathbf{H}(\omega_i). \quad (3.19)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\omega_i) = -i \left( \frac{\omega_i}{c} \right) \varepsilon(\omega_i) \cdot \mathbf{E}(\omega_i) + \left( \frac{4\pi}{c} \right) \mathbf{J}^{\text{NLS}}(\omega_i).$$

Комбинируя эти уравнения, приходим к нелинейному волновому уравнению

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\omega_i) - \left( \frac{\omega_i}{c} \right)^2 \varepsilon(\omega_i) \cdot \mathbf{E}(\omega_i) = 4\pi i \left( \frac{\omega_i}{c^2} \right) \mathbf{J}^{\text{NLS}}(\omega_i). \quad (3.20)$$

Если величину  $\mathbf{J}^{\text{NLS}}(\omega_j)$  выразить через фурье-компоненты поля с другими частотами, получим систему связанных волновых уравнений. Естественно, что с ростом числа учитываемых фурье-компонент трудности решения этой системы быстро возрастают. Весьма важно из физических соображений выбрать такое число фурье-компонент, которое необходимо для получения приближенного решения.

В электродипольном приближении уравнения Максвелла для каждой фурье-компоненты могут быть записаны следующим образом:

$$\nabla \times \mathbf{E}(\omega_i) = +i \left( \frac{\omega_i}{c} \right) \mathbf{H}(\omega_i), \quad (3.21)$$

$$\nabla \times \mathbf{H}(\omega_i) = -i \left( \frac{\omega_i}{c} \right) \varepsilon(\omega_i) \cdot \mathbf{E}(\omega_i) - 4\pi i \left( \frac{\omega_i}{c} \right) \mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_i).$$

Волновое уравнение имеет вид

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\omega_i) - \left( \frac{\omega_i}{c} \right)^2 \varepsilon(\omega_i) \cdot \mathbf{E}(\omega_i) = 4\pi \left( \frac{\omega_i}{c} \right)^2 \mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_i). \quad (3.22)$$

Для определенности рассмотрим случай нелинейности самого низкого порядка, приводящей к взаимодействию трех волн с частотами  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ,  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . В этом случае получаем систему трех нелинейных векторных волновых уравнений

$$\begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_1(\omega_1) - \left( \frac{\omega_1}{c} \right)^2 \varepsilon(\omega_1) \cdot \mathbf{E}_1(\omega_1) = \\ = 4\pi \left( \frac{\omega_1}{c} \right)^2 \chi(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) \mathbf{E}_3(\omega_3) \mathbf{E}_2^*(-\omega_2), \end{aligned}$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_2(\omega_2) - \left( \frac{\omega_2}{c} \right)^2 \varepsilon(\omega_2) \cdot \mathbf{E}_2(\omega_2) =$$

$$= 4\pi \left( \frac{\omega_2}{c} \right)^2 \chi(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) \mathbf{E}_3(\omega_3) \mathbf{E}_1^*(-\omega_1), \quad (3.23)$$

$$\begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_3(\omega_3) - \left( \frac{\omega_3}{c} \right)^2 \varepsilon(\omega_3) \cdot \mathbf{E}_3(\omega_3) = \\ = 4\pi \left( \frac{\omega_3}{c} \right)^2 \chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \mathbf{E}_1(\omega_1) \mathbf{E}_2(\omega_2). \end{aligned}$$

Эти уравнения справедливы и для диссипативной среды. В этом случае величины  $\varepsilon$  и  $\chi$  являются комплексными. Для слабо диссипативной среды величины  $\varepsilon(\omega_1)$ ,  $(\omega_2)$  и  $\varepsilon(\omega_3)$  следует рассматривать как комплексные, а мнимыми частями нелинейных восприимчивостей можно пренебречь. Нелинейная восприимчивость подчиняется в этом случае перестановочным соотношениям симметрии (1.28). Если имеется сильное затухание только вблизи одной из частот, например, вблизи  $\omega_1$ , то можно записать

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) = \chi_{kji}^*(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) = \\ = \chi_{jik}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2). \end{aligned}$$

В более общих случаях простых соотношений симметрии не существует.

Волновые уравнения типа уравнений (3.23) должны решаться с учетом соответствующих граничных условий. Тангенциальные компоненты векторов  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  должны быть непрерывны на границе для каждой фурье-компоненты в отделимости, поскольку общие граничные условия должны удовлетворяться в любой момент времени. Точно так же должны быть непрерывны на границе нормальные компоненты векторов  $\mathbf{D}$  и  $\mathbf{B}$  для каждой фурье-компоненты.

В принципе задачу нельзя ограничить тремя фурье-компонентами, поскольку в силу нелинейности в среде генерируются высшие комбинационные частоты

$$\pm l_1 \omega_1 \pm l_2 \omega_2 \pm l_3 \omega_3.$$

Практически можно исключить большую часть комбинаций частот, так как амплитуды соответствующих волн будут пренебрежимо малы. Однако существует по

крайней мере одна задача, а именно задача о вынужденном комбинационном рассеянии, где необходимо учитывать значительное число волн. Получение аналитических решений в таких случаях обычно затруднительно. В следующей главе мы обсудим целый ряд физически интересных случаев. Используя физически обоснованные приближения, можно получать решения с различной степенью точности и сложности. Фундаментальной основой для получения таких решений остается, естественно, малая величина нелинейности оптических свойств среды.

#### § 4. Частное решение уравнений Максвелла для недиспергирующей среды с нелинейностью произвольного вида

Решение этой задачи было дано Броером [4]. Он рассматривал электромагнитную волну с произвольной зависимостью ее амплитуды от времени, падающую из вакуума нормально к границе недиспергирующей среды с нелинейностью произвольного вида. Здесь мы приведем решение, полученное Броером для отраженной волны; это позволяет выявить особенности случая, когда нелинейность нельзя считать малой.

Рассмотрим немагнитную среду ( $B = H$ ), заполняющую пространство  $z > 0$  и характеризуемую произвольной функциональной связью между  $D$  (или  $P_{NLS}$ ) и  $E$ . Уравнения Максвелла поля с  $E_y \neq 0$  и  $B_x \neq 0$  имеют вид

$$\frac{\partial E_y}{\partial z} - \frac{1}{c} \frac{\partial B_x}{\partial t} = 0, \quad \frac{\partial B_x}{\partial z} = \frac{1}{c} \frac{\partial D_y}{\partial t}. \quad (3.24)$$

Опустим индексы  $x$  и  $y$  и введем функцию

$$v^{-2}(E) = \frac{\partial D}{\partial E} c^{-2}.$$

Тогда уравнения запишутся в виде

$$\frac{\partial B}{\partial t} = c \frac{\partial E}{\partial z}, \quad \frac{\partial B}{\partial z} = v^{-2}(E) c \frac{\partial E}{\partial t}. \quad (3.25)$$

Решение может быть записано в дифференциальной форме

$$dE = \frac{v}{c} dB \quad \text{для} \quad \frac{dz}{dt} = v, \quad (3.26)$$

$$dE = -\frac{v}{c} dB \quad \text{для} \quad \frac{dz}{dt} = -v.$$

В нелинейной среде существуют решения, соответствующие волнам, бегущим от границы. Если изменение во времени поля на границе описывается уравнением

$$E_y(z=0) = G(t),$$

то решение в среде имеет вид

$$E = G\left[t - \frac{z}{v(E)}\right]. \quad (3.27)^1$$

Естественно, что функция  $G(t)$  в свою очередь определяется падающей и отраженной волнами в вакууме,  $z < 0$ . Обозначим падающую волну через  $f_{\text{пад}}(t - z/c)$ , а отраженную через  $f_{\text{отр}}(t + z/c)$ . Тогда для полей в вакууме получим

$$E_{\text{вак}}(z < 0) = f_{\text{пад}}\left(t - \frac{z}{c}\right) + f_{\text{отр}}\left(t + \frac{z}{c}\right), \quad (3.28)$$

$$B_{\text{вак}}(z < 0) = -f_{\text{пад}}\left(t - \frac{z}{c}\right) + f_{\text{отр}}\left(t + \frac{z}{c}\right).$$

Последнее решение при  $z = 0$  должно быть согласовано с магнитным полем внутри среды. Интегрируя уравнение (3.26), получаем

$$B(z=0, t) = -\int_0^{G(t)} \frac{c}{v} dE = -\int_0^{G(t)} \left(\frac{dD}{dE}\right)^{\frac{1}{2}} dE. \quad (3.29)$$

<sup>1)</sup> Таким образом уравнение (3.27) описывает волну, каждая точка профиля которой движется со скоростью, зависящей от напряженности поля. Решения типа (3.27) детально обсуждались в работах Гапонова и Фрейдмана [6\*, 7\*] в связи с теорией ударных электромагнитных волн. — Прим. ред.

Приравнивая тангенциальные компоненты при  $z = 0$ , находим соотношение между падающей и отраженной волнами:

$$f_{\text{пад}} - f_{\text{отр}} = \int_0^{f_{\text{пад}} - f_{\text{отр}}} \left(\frac{dD}{dE}\right)^{\frac{1}{2}} dE. \quad (3.30)$$

В гл. 4 для волны, отраженной от нелинейной среды, мы получим ряд Фурье, содержащий гармоники и комбинационные тона падающей квазимонохроматической волны. Для малой нелинейности это решение быстро сходится к точному решению (3.30). Такое приближенное решение удобно сравнивать с результатами экспериментов, в которых проводится спектральный анализ отраженного света; оно легко может быть распространено на случай наклонного падения, нелинейной анизотропной среды и т. д. Точное решение (3.30) должно напоминать о существовании приближений, сделанных в теории, в которой рассматривается конечное число фурье-компонент.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Rosenfeld L., Theory of Electrons, Amsterdam, 1949.
2. Born M., Wolf E., Principles of Optics, London, 1959, Ch. 1.
3. Pershan P. S., Phys. Rev., 130, 919 (1963).
4. Broer L. J. F., Phys. Lett., 4, 65 (1963).
- 5\*. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М., Электродинамика сплошных сред, М., 1957.
- 6\*. Гапонов А. В., Фрейдман Г. И., ЖЭТФ, 36, 3, 957 (1959).
- 7\*. Гапонов А. В., Фрейдман Г. И., Изв. ВУЗ'ов, Радиофизика, 3, № 1, 79 (1960).

#### ДОПОЛНИТЕЛЬНАЯ ЛИТЕРАТУРА

- 8\*. Коган Ш. М., ЖЭТФ, 43, 7, 304 (1962).  
К электродинамике слабонелинейных сред.
- 9\*. Терхьюн Р., Зарубежная радиоэлектроника, № 6, М., 1964.

## РАСПРОСТРАНЕНИЕ ВОЛН В НЕЛИНЕЙНОЙ СРЕДЕ

### § 1. Генерация волн на комбинационных частотах заданными электромагнитными полями; граничные условия на поверхности нелинейной среды

В этом параграфе мы проанализируем процесс генерации в нелинейной среде волн с комбинационными частотами под действием заданных гармонических полей. Рассмотрим нелинейную среду, в которой распространяются волны с частотами  $\omega_1, \dots, \omega_i, \dots$ , волновыми векторами

$k_1, \dots, k_i, \dots$  и векторами поляризации  $\hat{e}_1, \dots, \hat{e}_i, \dots$ . Эти волны возбуждают волну нелинейной поляризации  $\mathbf{P}^{\text{NLS}}$  с комбинационной частотой  $\omega_s = \sum_i l_i \omega_i$ , а последняя в свою

очередь излучает волну той же частоты  $\omega_s$ . На начальных стадиях процесса амплитуда волны с частотой  $\omega_s$  весьма мала, так что обратной реакции ее на основные волны можно пренебречь; вследствие этого амплитуды полей исходных волн можно в этом случае рассматривать как заданные функции. В таком приближении<sup>1)</sup> достаточно рассмотреть только одно волновое уравнение, или, точнее, два уравнения для двух направлений поляризации.

Волну нелинейной поляризации запишем в виде

$$\mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_s, \mathbf{r}) = \mathbf{P}_0^{\text{NLS}} e^{i(k_s \cdot \mathbf{r} - i\omega_s t)}, \quad (4.1)$$

где

$$\omega_s = \sum_i l_i \omega_i, \quad k_s = \sum_i l_i k_i,$$

$$\mathbf{P}_0^{\text{NLS}} = \chi^{\text{NL}} \prod_i (\hat{e}_i A_i)^{|l_i|},$$

$\chi^{\text{NL}}$  — тензор нелинейной восприимчивости ранга  $\sum_i |l_i| + 1$ . Для отрицательных индексов  $l_i$  величины  $\hat{e}_i A_i$  должны быть заменены на комплексно сопряженные. (Здесь  $A_i$  — комплексные амплитуды волн,  $\hat{e}_i$  — единичные векторы вдоль направления поляризации.) Знак произведения употреблен в целях сокращения записи для повторяющихся векторов. Практическое значение имеют, конечно, лишь случаи малого числа частот, т. е. случаи малых  $l_i$ . В частности, задаче о генерации второй гармоники соответствуют индексы  $i = 1$  и  $l = 2$ .

Волновое уравнение для поля с комбинационной частотой  $\omega_s$  запишем в виде

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\omega_s) - \frac{\varepsilon(\omega_s) \omega_s^2}{c^2} \mathbf{E}_s = \frac{4\pi \omega_s^2}{c^2} \mathbf{P}_0^{\text{NLS}} e^{i k_s \cdot \mathbf{r} - i \omega_s t}. \quad (4.2)$$

Общее решение уравнения (4.2) состоит из частного решения неоднородного уравнения и общего решения однородного уравнения. Последнее является линейной комбинацией всех плоских (или каких-либо других ортогональных) волн, которые могут распространяться в линейной среде на частоте  $\omega_s$ . Граничные условия определяют, какая именно линейная комбинация должна быть рассмотрена [1].

Пусть граница нелинейной среды расположена в плоскости  $z = 0$ , а падающие волны являются бесконечно протяженными плоскими волнами (учет конечного поперечного сечения светового луча будет произведен в следующей главе). Такая модель соответствует большинству экспериментов в нелинейной оптике. Направления падающих лучей непосредственно определяют тангенциальные компоненты волнового вектора  $k_x^s$ ,  $k_y^s$  волны нелинейной поляризации. При отражении и преломлении поперечные компоненты этих векторов сохраняются, поскольку граничные условия должны удовлетворяться везде на плоскости  $z = 0$ . Отсюда сразу получаем

$$k_x^s = \sum_i l_i k_{ix}, \quad k_y^s = \sum_i l_i k_{iy}.$$

В этих уравнениях величины  $k_{ix}$  и  $k_{iy}$  — тангенциальные компоненты волнового вектора падающей волны частоты  $\omega_i$ ; их значения сохраняются и после ее прелом-

<sup>1)</sup> В литературе его называют также «приближением заданного поля»; далее этот термин употребляется и в настоящей книге. — *Прим. ред.*

ления. Тангенциальные компоненты волнового вектора, равные  $k_x^s$ ,  $k_y^s$ , имеют и электромагнитные волны частоты  $\omega_s$ , которые удовлетворяют граничным условиям. Направление распространения волны нелинейной поляризации определяется  $z$ -компонентами волновых векторов

$$k_z^s = \sum l_i k_{iz}^T$$

(здесь  $k_{iz}^T$  есть  $z$ -компонента волнового вектора преломленной волны частоты  $\omega_i$ ).

Целый ряд характерных особенностей процесса генерации волн комбинационных частот может быть выяснен при рассмотрении оптически изотропной среды (кубический кристалл или изотропная жидкость). Не ограничивая общности, выберем направление оси  $y$  так, чтобы  $k_y^s = 0$ . Как и в линейной задаче о преломлении, здесь можно по отдельности рассмотреть электромагнитную волну с частотой  $\omega_s$ , поляризованную нормально к плоскости падения и возбуждаемую компонентой  $P_{\perp}^{\text{NLS}} = P_{\perp}^{\text{NLS}}$ , и волну с электрическим вектором в плоскости  $xz$ , возбуждаемую компонентой нелинейной поляризации  $P_{\parallel}^{\text{NLS}}$ , параллельной этой же плоскости.

Для первого случая общее решение уравнения (4.2) с учетом граничных условий имеет вид

$$E_{\perp} = A_{\perp}^T e^{ik^T \cdot r} + \frac{4\pi (\omega_s/c)^2 P_{\perp}^{\text{NLS}}}{|k^s|^2 - |k^T|^2} e^{ik_s \cdot r}, \quad (4.3)$$

где  $k^T$  — волновой вектор прошедшей волны, являющейся решением однородного уравнения. Его модуль равен  $|k^T| = \omega_s \epsilon_T^{1/2}/c$ , тангенциальная компонента  $k_x^T$  равна  $k_x^s$ . Второй член в (4.3) соответствует частному решению неоднородного уравнения<sup>1)</sup>. Амплитуда решения однородного уравнения  $A_{\perp}^T$  должна быть определена из условия непрерывности тангенциальных компонент векторов  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$ . Эти два условия требуют также присутствия

<sup>1)</sup> В дальнейшем автор называет их также однородной и неоднородной волнами. — Прим. ред.

«отраженной» волны с частотой  $\omega_s$ , распространяющейся от границы обратно в линейную среду

$$E_{\perp}^R = A_{\perp}^R e^{ik^R \cdot r}, \quad (4.4)$$

где

$$k_x^R = k_x^T = k_x^s, \quad |k^R| = \frac{\omega_s \epsilon_R^{1/2}}{c}.$$

Факт присутствия в линейной среде поля с частотой  $\omega_s$  нетрудно понять из следующих соображений. Из уравнений Максвелла (3.2) следует, что магнитное поле пропорционально величине  $\partial P^{\text{NLS}}/\partial t$ . Поскольку имеется магнитное поле в нелинейной среде при  $z > 0$ , то должно быть магнитное поле с той же частотой  $\omega_s$  и в линейной среде при  $z < 0$ . Условие непрерывности компоненты  $E_y$  при  $z = 0$  имеет вид

$$A_{\perp}^T + \frac{4\pi (\omega_s/c)^2 P_{\perp}^{\text{NLS}}}{|k^s|^2 - |k^T|^2} = A_{\perp}^R, \quad (4.5)$$

а условие непрерывности компоненты  $H_x$  при  $z = 0$

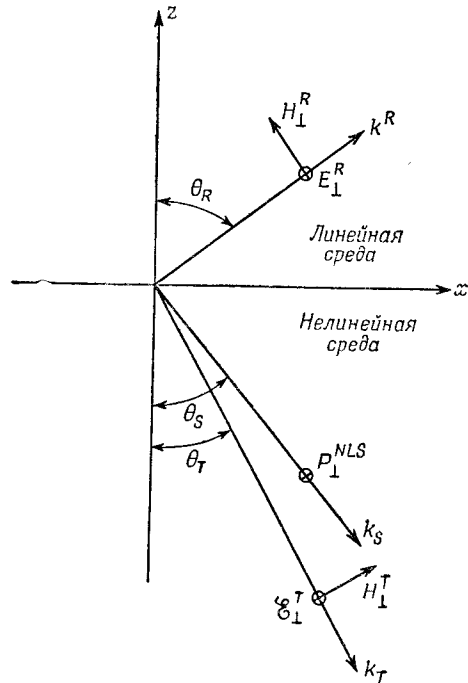
$$\begin{aligned} \frac{\omega_s}{c} \epsilon_T^{1/2} A_{\perp}^T \cos \theta_T + \frac{|k^s| 4\pi (\omega_s/c)^2 P_{\perp}^{\text{NLS}}}{|k^s|^2 - |k^T|^2} \cos \theta_s = \\ = - \left( \frac{\omega_s}{c} \right) \epsilon_R^{1/2} A_{\perp}^R \cos \theta_R. \end{aligned} \quad (4.6)$$

Здесь введены показанные на фиг. 7 угол отражения  $\theta_R$  и углы преломления:  $\theta_T$  для электромагнитной волны с частотой  $\omega$  и  $\theta_s$  для волны нелинейной поляризации. Их можно найти из уравнений

$$\begin{aligned} \epsilon_T^{1/2} \omega c^{-1} \sin \theta_T = \epsilon_R^{1/2} \omega c^{-1} \sin \theta_R = |k_s| \sin \theta_s = \sum_i l_i k_{ix}, \\ 0 = \sum_i l_i k_{iy}. \end{aligned} \quad (4.7)$$

Направления распространения всех волн с комбинационными частотами определяются углами падения и плоскостями падения исходных волн; этот факт иллюстри-





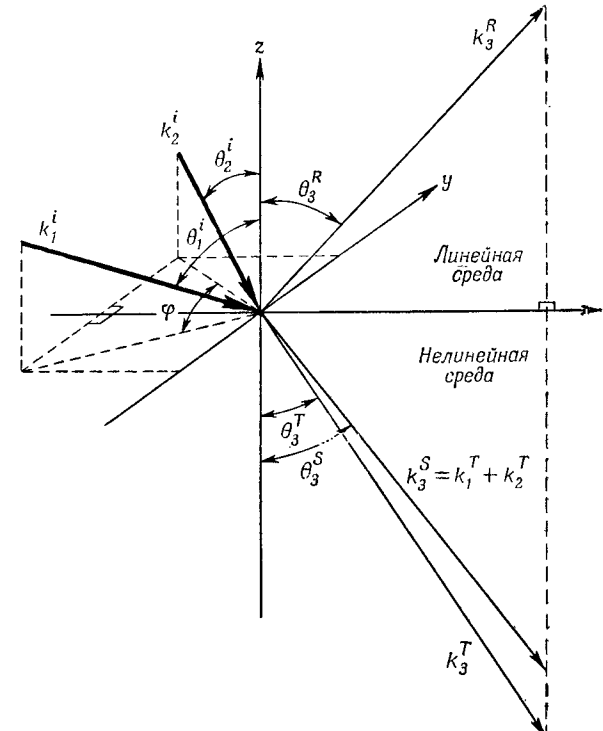
Фиг. 7. Направления волновых векторов волны нелинейной поляризации, а также «преломленной» и «отраженной» волн, генерируемых этой поляризацией, для случая, когда электрический вектор нормален к плоскости отражения.

Показаны также и поляризации этих волн.

руется фиг. 8, построенной для случая сложения частот двух волн. Уравнения (4.5) и (4.6) можно разрешить относительно  $A_{\perp}^R$  и  $A_{\perp}^T$ . Вводя обозначение  $\epsilon_s^{1/2} = c|k_s|\omega_s^{-1}$ , для амплитуды «отраженной» волны получаем

$$A_{\perp}^R = -4\pi P_{\perp}^{\text{NLS}} [(\epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T + \epsilon_R^{1/2} \cos \theta_R) \times (\epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T + \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S)]^{-1}. \quad (4.8)$$

Впервые вторая гармоника в поле излучения, отраженно-го от нелинейного кристалла, наблюдалась Дюкуэнгом и

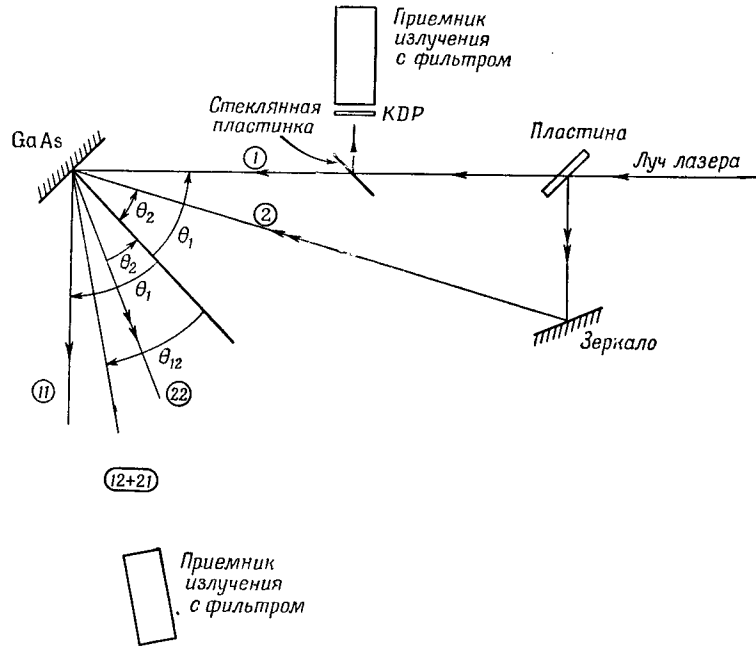


Фиг. 8. Геометрические соотношения между волновыми векторами двух плоских волн, падающих на плоскую границу нелинейной среды, и отраженной и прошедшей волн суммарной частоты.

Бломбергенom [2]. Они использовали кристалл GaAs, принадлежащий к классу  $43m$ . Поскольку кристаллы этого класса оптически изотропны, приведенная здесь теория непосредственно описывает этот эксперимент. На фиг. 9 изображена схема эксперимента. Здесь два луча основной частоты (использовался рубиновый лазер) падают на нелинейный кристалл под разными углами падения

$$\sin \theta_1 = \frac{k_{1x}}{k}, \quad \sin \theta_2 = \frac{k_{2x}}{k}.$$

В кристалле эти лучи образуют три волны нелинейной поляризации с частотами второй гармоники; благодаря



Фиг. 9. Схема эксперимента по наблюдению генерации второй гармоники при отражении.

Луч лазера расщепляется на два луча с частотой  $\omega$ , которые при отражении от кристалла GaAs создают три луча с частотой  $2\omega$ .

этому в поле отраженного излучения появляются три волны второй гармоники

$$\sin \theta_{11}^R(2\omega) = \frac{2k_{1x}(\omega)}{k(2\omega)},$$

$$\sin \theta_{12}^R(2\omega) = \frac{k_{1x}(\omega) + k_{2x}(\omega)}{k(2\omega)},$$

$$\sin \theta_{22}^R(2\omega) = \frac{2k_{2x}(\omega)}{k(2\omega)}.$$

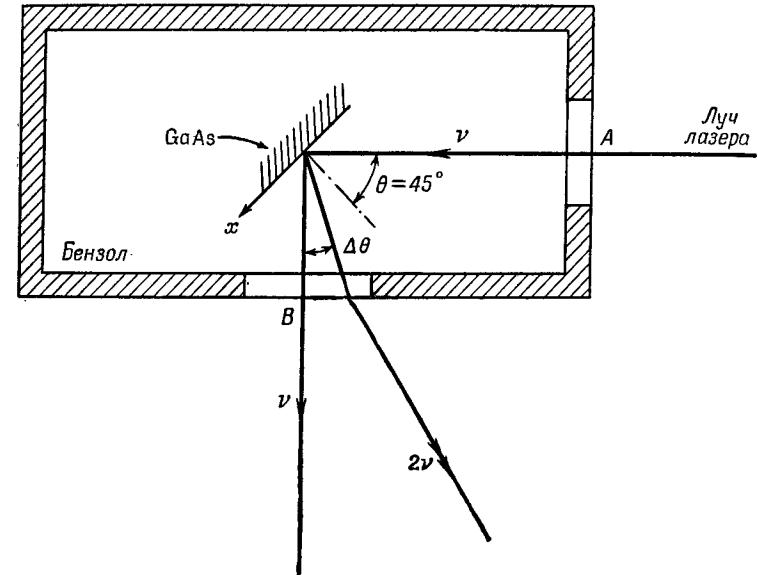
Эти соотношения были проверены экспериментально. Если поместить зеркало из GaAs в диспергирующую линейную среду, например в бензол, отраженная волна

второй гармоники распространяется в другом направлении, нежели отраженная волна основной частоты, как это показано на фиг. 10. Имеем

$$\sin \theta^i(\omega) = \sin \theta^R(\omega) = \frac{k_{1x}(\omega)}{|k(\omega)|},$$

$$\sin \theta^R(2\omega) = \frac{2k_{1x}(\omega)}{|k(2\omega)|} = \frac{\epsilon_R^{1/2}(\omega)}{\epsilon_R^{1/2}(2\omega)} \sin \theta^R(\omega).$$

Эти выражения были также экспериментально проверены Дюкуэнгом [3].



Фиг. 10. Схема эксперимента по наблюдению отражения света от нелинейного зеркала, помещенного в линейную диспергирующую среду.

Кристалл GaAs обладает сильным поглощением как на частоте рубинового лазера, так и на частоте его второй гармоники. В связи с этим следует отметить, что все записанные выше уравнения остаются справедливыми

и для комплексных значений  $\epsilon_R$ ,  $\epsilon_T$  и  $\epsilon_s$ . В сильно поглощающей среде нелинейные эффекты легче наблюдать в поле отраженных лучей. При этом следует иметь в виду, что в этом случае нелинейная восприимчивость возрастает, что обусловлено резонансными эффектами (см. гл. 1 и 2). Эффективный поверхностный слой, дающий существенный вклад в «отраженный» луч второй гармоники, имеет толщину порядка меньшей из длин затухания для волн с частотами  $\omega$  и  $2\omega$ . Это отражено в формуле (4.8), где в знаменателе присутствуют величины  $\epsilon_s$  и  $\epsilon_T$ . Интенсивность «отраженной» волны второй гармоники пропорциональна квадрату нелинейной восприимчивости  $|\chi^{NL}|^2$ . В гл. 5 мы более подробно обсудим методику измерения нелинейной восприимчивости среды по интенсивности «отраженной» гармоники, там же обсуждаются и факторы, определяющие ее поляризацию. Амплитуда  $A_{\parallel}^R$  отраженной волны, поляризованной в плоскости отражения, может быть найдена аналогичным образом; она определяется компонентой нелинейного источника в этой плоскости  $P_{\parallel}^{NLS}$  [см. формулу (4.12) приложения II]. Здесь для «отражения» гармоники имеет место аналог угла Брюстера: при определенном направлении волнового вектора амплитуда  $A_{\parallel}^R$  обращается в нуль. Более подробное исследование проведено в приложении II.

Прошедшая волна с поляризацией, перпендикулярной плоскости падения, описывается формулами (4.3), (4.5) и (4.8). Используя соотношения (4.7), для амплитуды  $A_{\perp}^T$  прошедшей волны находим

$$A_{\perp}^T = \frac{4\pi P_{\perp}^{NLS}}{\epsilon_T - \epsilon_s} \frac{\epsilon_s^{1/2} \cos \theta_s + \epsilon_R^{1/2} \cos \theta_R}{\epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T + \epsilon_R^{1/2} \cos \theta_R}. \quad (4.9)$$

Из рассмотрения фиг. 7 следует, что

$$(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_T) \cdot \mathbf{r} = \omega c^{-1} (\epsilon_s^{1/2} \cos \theta_s - \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T) z.$$

Прошедшую волну можно представить как волну, фаза которой изменяется по закону  $\exp i(\mathbf{k}^T \cdot \mathbf{r} - \omega_s t)$ , а ампли-

туда зависит от расстояния  $z$  (отсчет от границы). Из формул (4.3) и (4.5) для прошедшей волны получаем

$$E_{\perp}^T = \left\{ A_{\perp}^R + 4\pi P_{\perp}^{NLS} \frac{\exp [i \omega c^{-1} (\epsilon_s^{1/2} \cos \theta_s - \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T) z] - 1}{\epsilon_s - \epsilon_T} \right\} \times e^{i\mathbf{k}^T \cdot \mathbf{r} - i\omega t}. \quad (4.10)$$

Для значений  $z$ , удовлетворяющих условию

$$\omega c^{-1} z (\epsilon_s^{1/2} \cos \theta_s - \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T) \ll 1, \quad (4.11)$$

прошедшая волна описывается выражением

$$E_{\perp}^T = [A_{\perp}^R + 4\pi i P_{\perp}^{NLS} (\omega c^{-1} z) (\epsilon_s^{1/2} \cos \theta_s + \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T)^{-1}] e^{i\mathbf{k}^T \cdot \mathbf{r} - i\omega t}. \quad (4.12)$$

Таким образом, начальная амплитуда прошедшей волны равна амплитуде отраженной волны; компонента, сдвинутая по фазе относительно  $P^{NLS}$  на  $90^\circ$ , возрастает пропорционально расстоянию от границы. Волна совершает отрицательную работу над нелинейной поляризацией. Интенсивность растет как  $z^2$ , пока сохраняются постоянные фазовые соотношения между  $P^{NLS}$  и электромагнитной волной. Последнее имеет место для любых  $z$ , если нормальные к границе компоненты фазовых скоростей согласованы, т. е.

$$\epsilon_s^{1/2} \cos \theta_s = \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T.$$

Компоненты фазовых скоростей, параллельные границе, согласованы всегда в силу граничных условий. Учитывая определение  $\epsilon_s$ , убеждаемся, что согласование возможно, если только  $\epsilon_s = \epsilon_T$ ,  $\theta_s = \theta_T$  и, следовательно,  $\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_T$ . Вследствие частотной дисперсии света в кубических кристаллах эти соотношения<sup>1)</sup> не могут быть удовлетворены. Однако в анизотропных кристаллах согласование фазовых скоростей основной волны и гармоники (или, в об-

<sup>1)</sup> Их называют также «условиями пространственного синхронизма» или сокращенно «условиями синхронизма». Направление в нелинейной среде, в котором выполняется указанное условие, называют направлением синхронизма. — *Прим. ред.*

щем случае, волны с комбинационной частотой) оказывается возможным за счет компенсации дисперсии света с помощью явления двойного лучепреломления. В этом случае в приближении заданного поля интенсивность волны гармоники неограниченно возрастает с ростом  $z$ . Однако в действительности, когда интенсивность гармоники становится сравнимой с интенсивностью основной волны, приближение заданного поля перестает быть справедливым. Проблема обратной реакции волны гармоники на основную волну будет обсуждаться в § 2 настоящей главы.

Если условие согласования фазовых скоростей не выполнено, интенсивность волны с частотой  $\omega_s$  будет изменяться с расстоянием  $z$  по синусоидальному закону. Расстояние между двумя соседними максимумами дается выражением

$$\omega_s c^{-1} (\epsilon_s^{1/2} \cos \theta_s - \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T) z = 2\pi.$$

Вообще говоря, прошедшая волна является неоднородной плоской волной. Плоскости постоянной амплитуды (ими, очевидно, являются плоскости  $z = \text{const}$ ) не совпадают с плоскостями постоянной фазы. Исключение составляет случай распространения волн нормально к границе. В этом случае интенсивность волны определяется уравнением (4.10) (малый член  $A_{\perp}^R$  опущен)

$$|A_{\perp}^T|^2 = 16\pi^2 |P_{\perp}^{\text{NLS}}|^2 \frac{4 \sin^2 \frac{1}{2} \omega_s c^{-1} (\epsilon_s^{1/2} - \epsilon_T^{1/2}) z}{(\epsilon_s - \epsilon_T)^2}. \quad (4.13)$$

Сравнение формул (4.13) и (4.8) показывает, что максимальная интенсивность прошедшей волны примерно в  $4\epsilon_T^2 / (\epsilon_s - \epsilon_T)^2$  раз больше, чем интенсивность отраженной волны. Для обычного рассогласования фазовых скоростей, обусловленного частотной дисперсией, эта величина имеет порядок  $10^4 - 10^5$ . Тем самым пренебрежение величиной  $A_{\perp}^R$  в проходящей волне оправдано.

Периодическое изменение интенсивности второй гармоники при изменении оптической толщины нелинейной среды впервые было продемонстрировано Мейкером и Терхьюном; результаты их опытов представлены на

фиг. 2. По максимумам интенсивности гармоники из таких кривых определяется величина нелинейной восприимчивости, в то же время расстояние между максимумами определяет когерентную длину или величину, обратную величине рассогласования фазовых скоростей  $(\epsilon_s^{1/2} - \epsilon_T^{1/2})^{-1}$ . Введя показатели преломления  $n_s$  и  $n_T$  и длину волны в вакууме  $\lambda_0$ , можно определить понятие когерентной длины

$$l_{\text{ког}} = 2\pi \frac{c}{\omega} (\epsilon_s^{1/2} - \epsilon_T^{1/2})^{-1} = \lambda_0 (n_s - n_T)^{-1}. \quad (4.14)$$

Когерентная длина — это расстояние, на котором волна нелинейной поляризации и электромагнитная волна, соответствующая решению однородного уравнения, идут в фазе. Интенсивность отраженной волны оказывается много слабее, так как вклад в эту волну дает лишь слой атомов толщиной  $\sim \lambda/2n_T$ .

В экспериментах нелинейная среда представляет собой обычно плоскопараллельную пластину. В этом случае изложенные выше аналитические результаты можно непосредственно сравнить с экспериментальными данными, если задняя сторона пластины не отражает ни основную волну, ни волну гармоники. Полный анализ случая плоскопараллельной пластины дается в приложении II, где произведен учет граничных условий как на передней, так и на задней границах. При малых френелевских коэффициентах отражения соответствующая поправка для прошедшей волны гармоники обычно оказывается малой<sup>1)</sup>. Вместе с тем даже малых отражений от задней границы оказывается достаточно для того, чтобы сильно изменить значение амплитуды  $E_{\perp}^R$ ; влияние задней границы на поведение нелинейных отраженных волн с частотой  $\omega_s$  можно не учитывать только в том случае, когда среда сильно поглощает на частоте  $\omega_s$ . Заметим, что в этом случае существует и прошедшая волна с частотой  $\omega_s$ , выхо-

<sup>1)</sup> Вместе с тем следует иметь в виду, что определенный интерес могут представить и случаи, когда отражения от границ нелинейного слоя значительны. В частности, такая ситуация имеет место, когда нелинейная среда помещена в резонатор типа Фабри—Перо (см., например, [31\*, 32\*]). — Прим. ред.

дящая из кристалла, если только основные волны не затухают (этот случай соответствует комплексному  $\mathbf{k}_T$  и действительному  $\mathbf{k}_s$ ). Волна с частотой  $\omega_s$  излучается источником нелинейной поляризации, помещенным в среду. Из уравнения (4.3) непосредственно находим интенсивность прошедшей волны для случая, когда волна частоты  $\omega_s$  в среде затухает

$$|A_{\perp}^T|^2 = 16\pi^2 |P_{\perp}^{\text{NLS}}|^2 |\varepsilon_T - \varepsilon_s|^{-2}. \quad (4.15)$$

В приложении II дается полное обсуждение случая другой поляризации; анализируются также явления полного отражения и полного прохождения в нелинейном случае. Даже если  $\varepsilon_R$  и  $\varepsilon_T$  являются действительными величинами, углы падения могут быть выбраны таким образом, что один или более векторов  $\mathbf{k}_R$ ,  $\mathbf{k}_s$  и  $\mathbf{k}_T$  окажутся комплексными.

Особый случай «отражения» второй гармоники, поляризованной в плоскости отражения, от свободных электронов проанализировали Крониг и Боукема [4] (нелинейность этого типа обсуждалась также в гл. 1, § 2).

#### АНИЗОТРОПНАЯ СРЕДА

Подобные же, хотя и алгебраически более сложные, расчеты можно провести для одноосных и двухосных кристаллов. Такие кристаллы представляют большой интерес, поскольку в ряде случаев они допускают согласование фазовых скоростей основной волны и волны гармоники; этот случай обсуждался Клейнманом [33\*]. В общем случае анизотропной среды падающая волна образует две преломленные волны; они, вообще говоря, не подчиняются закону преломления Снеллиуса, однако тангенциальные компоненты волновых векторов непрерывны на границе. Преломленные волны возбуждают волны нелинейной поляризации. Рассмотрим одну из них с волновым

вектором  $\mathbf{k}_s$ , направлением поляризации  $\hat{\mathbf{p}}$  и амплитудой  $|P^{\text{NLS}}|$ . В общем случае возникают две электромагнитные волны, волновые векторы которых  $\mathbf{k}_\nu$ ,  $\nu = 1, 2$ , имеют такие же, как и у  $\mathbf{k}_s$ , тангенциальные компоненты. Допустим, что эти компоненты исчезающе малы. Тогда векто-

ры  $\mathbf{k}_1$ ,  $\mathbf{k}_2$  и  $\mathbf{k}_s$  направлены по нормали  $\hat{\mathbf{n}}^s$ . Векторы, характеризующие направление поляризации волн, обозначим через  $\hat{\mathbf{e}}_1$  и  $\hat{\mathbf{e}}_2$ . Однородное волновое уравнение имеет вид

$$\left(\frac{c}{\omega}\right)^2 |k_\nu|^2 [\hat{\mathbf{e}}_\nu - \hat{\mathbf{n}}^s (\hat{\mathbf{e}}_\nu \cdot \hat{\mathbf{n}}^s)] - \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_\nu = 0, \quad \nu = 1, 2. \quad (4.16)$$

Можно ввести также три единичных вектора  $\hat{\mathbf{d}}_1$ ,  $\hat{\mathbf{d}}_2$  и  $\hat{\mathbf{d}}_3$ , таких, что векторы  $\hat{\mathbf{d}}_1$  и  $\varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_1$  так же, как и векторы  $\mathbf{d}_2$  и  $\varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_2$ , параллельны, а вектор  $\hat{\mathbf{d}}_3$  ортогонален векторам  $\hat{\mathbf{d}}_1$  и  $\hat{\mathbf{d}}_2$  ( $\hat{\mathbf{d}}_3 = \hat{\mathbf{e}}_3 = \hat{\mathbf{n}}^s$ ). Легко видеть, что

$$\hat{\mathbf{d}}_1 \cdot \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 = \hat{\mathbf{d}}_2 \cdot \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_1 = \hat{\mathbf{d}}_3 \cdot \varepsilon_1 \cdot \hat{\mathbf{e}}_1 = \hat{\mathbf{d}}_3 \cdot \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 = 0.$$

Введя

$$\mathbf{A} = \hat{\mathbf{e}}_1 \mathbf{A}_1 + \hat{\mathbf{e}}_2 \mathbf{A}_2 + \hat{\mathbf{e}}_3 \mathbf{A}_3, \quad (4.17)$$

запишем уравнение (4.2) в виде

$$\sum_{\nu=1}^2 \left\{ \left(\frac{c}{\omega}\right)^2 |k^s|^2 [\hat{\mathbf{e}}_\nu - \hat{\mathbf{n}}^s (\hat{\mathbf{n}}^s \cdot \hat{\mathbf{e}}_\nu)] - \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_\nu \right\} A_\nu - \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_3 A_3 = 4\pi \hat{\mathbf{p}} P_0$$

или, принимая во внимание (4.16),

$$\sum_{\nu=1}^2 \left\{ \left(\frac{c}{\omega}\right)^2 [ |k^s|^2 - |k_\nu|^2 ] [\hat{\mathbf{e}}_\nu - \hat{\mathbf{n}}^s (\hat{\mathbf{n}}^s \cdot \hat{\mathbf{e}}_\nu)] \right\} \times \\ \times A_\nu - \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{e}}_3 A_3 = 4\pi \hat{\mathbf{p}} P_0. \quad (4.18)$$

Поскольку  $\hat{\mathbf{d}}_3 = \hat{\mathbf{n}}^s = \hat{\mathbf{e}}_3$ , произведение в скобках с  $\hat{\mathbf{n}}^s$  определяет величину  $A_3$ :

$$A_3 = - \frac{4\pi (\hat{\mathbf{n}}_3 \cdot \hat{\mathbf{p}}) P_0}{\hat{\mathbf{n}}_3 \cdot \varepsilon \cdot \hat{\mathbf{n}}_3}. \quad (4.19)$$

Исключая  $A_3$  из выражения (4.19), получаем

$$\sum_{v=1}^2 \left\{ \left( \frac{c}{\omega} \right)^2 [ |k^s|^2 - |k_v|^2 ] [\hat{\mathbf{e}}_v - \hat{\mathbf{n}}^s (\hat{\mathbf{n}}^s \cdot \hat{\mathbf{e}}_v)] \right\} A_v =$$

$$= 4\pi P_0 \left[ \hat{\mathbf{p}} - \frac{\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \hat{\mathbf{n}}^s (\hat{\mathbf{n}}^s \cdot \hat{\mathbf{p}})}{\hat{\mathbf{n}}^s \cdot \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \hat{\mathbf{n}}^s} \right]. \quad (4.20)$$

Далее, вводя в (4.20) векторы  $\hat{\mathbf{d}}_1$  и  $\hat{\mathbf{d}}_2$  [см. уравнение (4.16) для  $v = 1$  или 2], получаем

$$A_v = \frac{4\pi P_0 (\omega/c)^2 [ (\hat{\mathbf{d}}_v \cdot \hat{\mathbf{p}}) - (\hat{\mathbf{d}}_v \cdot \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \hat{\mathbf{n}}^s) (\hat{\mathbf{n}}^s \cdot \hat{\mathbf{p}}) / (\hat{\mathbf{n}}^s \cdot \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \hat{\mathbf{n}}^s) ]}{[ |k^s|^2 - |k_v|^2 ] (\hat{\mathbf{d}}_v \cdot \hat{\mathbf{e}}_v)}. \quad (4.21)$$

Общее решение составляется из решения неоднородного уравнения и двух волн, являющихся решениями однородного уравнения; их волновые векторы и векторы поляризации определяются линейными свойствами среды. Амплитуды этих волн, так же как амплитуда и поляризация нормально отраженной волны, должны быть определены из условий непрерывности для  $E_x, E_y, H_x, H_y$  при  $z = 0$ .

## § 2. Взаимодействие двух связанных волн. Генерация второй гармоники

Как уже указывалось, условие согласования фазовых скоростей основной волны и волны гармоники может быть выполнено в анизотропном кристалле; оно может быть также выполнено в изотропных средах, когда в небольших частотных интервалах, попадающих в рабочий диапазон частот, существуют области аномальной дисперсии. Это условие может быть выполнено в изотропных средах с нормальной дисперсией, если число взаимодействующих волн более трех. Наконец, оно может быть выполнено при взаимодействии оптической и акустической волн. Для всех этих случаев важно проанализировать решение нелинейных волновых уравнений с учетом обратной реакции волн гармоник и комбинационных частот на порождающие их волны, т. е. выйти за рамки приближения заданного поля.

Рассмотрим наиболее простой, но важный случай генерации второй гармоники. Обозначим частоты через  $\omega_1 = \omega$  и  $\omega_2 = 2\omega$ , векторы поляризации через  $\hat{\mathbf{e}}_1$  и  $\hat{\mathbf{e}}_2$  и волновые векторы однородных волн через  $\mathbf{k}_1$  и  $\mathbf{k}_2$ . Пусть вновь плоскость  $z = 0$  является границей нелинейной среды. Для тангенциальных компонент выполняются условия  $k_{2x} = 2k_{1x}$ ,  $k_{2y} = 2k_{1y}$ , однако вследствие дисперсии  $k_{2z} - 2k_{1z} = \Delta k$ . Для общности допустим, что  $\Delta k \neq 0$ , поскольку случаи неточного согласования фазовых скоростей также представляют интерес. Ранее мы учитывали зависимость от координаты только для амплитуды гармоники. Однако если амплитуда гармоники  $A_2(z)$  становится сравнимой по величине с амплитудой основной волны  $A_1$ , то из энергетических соображений следует ожидать, что амплитуда  $A_1$  будет уменьшаться, и ее уже нельзя будет рассматривать как заданную функцию. Далее волнами на всех других частотах, кроме  $\omega$  и  $2\omega$ , мы пренебрежем, так как им соответствуют большие рассогласования фазовых скоростей, согласно (4.13), они быстро осциллируют и амплитуды их невелики. Таким образом, рассмотрим только два волновых уравнения типа (3.23):

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_2 - |k_2|^2 \mathbf{E}_2 = 4\pi \left( \frac{2\omega}{c} \right)^2 \mathbf{P}^{\text{NLS}}(2\omega), \quad (4.22)$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_1 - |k_1|^2 \mathbf{E}_1 = 4\pi \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega).$$

Ищем решения в виде

$$\mathbf{E}_1(\omega) = \hat{\mathbf{e}}_1 A_1(z) e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}},$$

$$\mathbf{E}_2(2\omega) = \hat{\mathbf{e}}_2 A_2(z) e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}}. \quad (4.23)$$

Подстановка дает два дифференциальных уравнения второго порядка для  $A_1$  и  $A_2$ . Если изменение амплитуды на расстояниях порядка длины волны мало,  $|\partial^2 A / \partial z^2| \ll \ll k |\partial A / \partial z|$ , то производными второго порядка можно

пренебречь; в результате получаем уравнения первого порядка для комплексных амплитуд связанных волн

$$\begin{aligned} & -2ik_1 \cos \alpha_1 \cdot \cos(\alpha_1 - \beta_1) \frac{\partial A_1}{\partial z} = \\ & = \frac{4\pi\omega^2}{c^2} \hat{e}_1 \cdot \chi(\omega = 2\omega - \omega) : \hat{e}_2 \hat{e}_1 A_2 A_1^* e^{i\Delta k z}, \end{aligned} \quad (4.24)$$

$$\begin{aligned} & -2ik_2 \cos \alpha_2 \cos(\alpha_2 - \beta_2) \frac{\partial A_2}{\partial z} = \\ & = \frac{4\pi(2\omega)^2}{c^2} \hat{e}_2 \cdot \chi(2\omega = \omega + \omega) : \hat{e}_1 \hat{e}_1 A_1^2 e^{-i\Delta k z}. \end{aligned} \quad (4.25)$$

Здесь  $\alpha$  — угол между векторами  $\mathbf{D}$  и  $\mathbf{E}$  в анизотропной среде (он равен углу между волновым вектором  $\mathbf{k}$  и вектором Пойнтинга), а  $\beta$  — угол между волновым вектором и нормалью к границе  $\hat{z}$  (см. фиг. 11). Нелинейные восприимчивости определяются из свободной энергии

$$F = 2\text{Re}(\chi E_1^2 E_2^*) \quad (4.26)$$

и удовлетворяют соотношениям симметрии

$$2\chi_{lij}(2\omega = \omega + \omega) = \chi_{lji}(\omega = 2\omega - \omega).$$

Нетрудно получить первый интеграл уравнений (4.24) и (4.25). Умножим уравнение (4.25) на  $A_2^* c^2 / 8\pi\omega^2$ , а уравнение, комплексно-сопряженное (4.24), на  $-A_1 c^2 / 4\pi\omega^2$  и сложим. В силу соотношений симметрии правые части уравнений взаимно уничтожаются

$$\begin{aligned} & k_1 \cos \alpha_1 \cos(\alpha_1 - \beta_1) A_1 \frac{\partial A_1^*}{\partial z} + \frac{1}{2} k_2 \cos \alpha_2 \times \\ & \times \cos(\alpha_2 - \beta_2) A_2^* \frac{\partial A_2}{\partial z} = 0. \end{aligned} \quad (4.27)$$

Вектор Пойнтинга для волны в анизотропной среде имеет величину

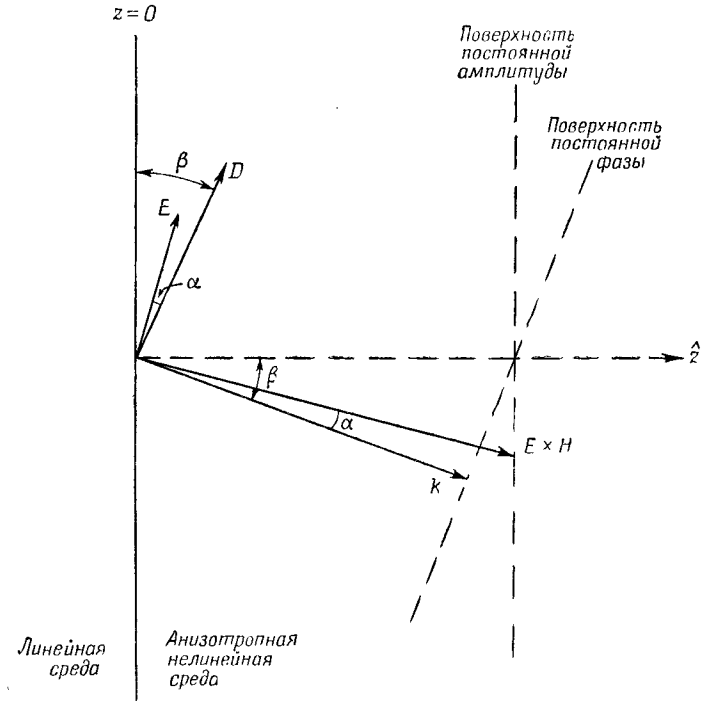
$$|\mathbf{S}| = \frac{c}{4\pi} |\mathbf{E} \times \mathbf{H}| = \frac{kc^2 \cos \alpha AA^*}{2\pi\omega}. \quad (4.28)$$

Следовательно, для первого интеграла уравнений имеем

$$\frac{|S_1| \cos(\alpha_1 - \beta_1)}{\omega} + \frac{2|S_2| \cos(\alpha_2 - \beta_2)}{2\omega} = \frac{W}{\omega}. \quad (4.29)$$

Величина  $W$  есть полная мощность, протекающая через единицу площади в направлении оси  $z$  нормально к границе. Для непоглощающей среды эта величина является,

188



Фиг. 11. Диаграмма, показывающая направления векторов в анизотропной среде.

Показаны углы между волновым вектором, вектором Пойнтинга и нормалью к границе. Построение выполнено для положительного одноосного кристалла ( $\alpha > 0$ ). В отрицательном одноосном кристалле ( $\alpha < 0$ ), например в KDP, вектор  $\mathbf{E}$  лежит между векторами  $\mathbf{D}$  и  $\mathbf{k}$ .

конечно, постоянной. Уравнение (4.29) записано в форме, аналогичной известным соотношениям Мэнли — Роу, широко используемым в теории колебаний систем с со-

средоточенными параметрами. Из (4.29) следует, что если число квантов, проходящих через  $1 \text{ см}^2$  в  $1 \text{ сек}$  в направлении оси  $z$  на частоте  $2\omega$ , возрастает на единицу, то число квантов на основной частоте уменьшается на два. Следовательно, классическая теория сохраняет характерные черты процесса трехквантового рассеяния, которое обсуждалось в гл. 2. Интегральные соотношения Мэнли — Роу остаются справедливыми и для взаимодействий трех или более волн; соответствующие примеры приведены в приложении I. Соотношения Мэнли — Роу в этих случаях несут даже больше информации, поскольку они не идентичны условию постоянства полного потока мощности.

Общее решение системы дифференциальных уравнений (4.24) — (4.26) может быть получено только при переходе к действительным переменным. В приложении I дано такое общее решение системы уравнений двух (§ 5) и трех (§ 6) связанных волн. Здесь мы рассмотрим только частное решение для случая точного согласования фазовых скоростей основной волны и волны гармоники.

Исследование уравнений (4.24) и (4.25) показывает, что для случая  $\Delta k = 0$  можно выбрать величину  $A_1 = \rho_1$  действительной, а величину  $A_2 = i\rho_2$  чисто мнимой. Действительные амплитуды при  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ ,  $\beta_1 = \beta_2 = 0$ ,  $k_2 = 2k_1$  удовлетворяют дифференциальным уравнениям

$$\frac{d\rho_1}{dz} = -C\rho_1\rho_2, \quad \frac{d\rho_2}{dz} = C\rho_1^2, \quad (4.30)$$

где

$$C = \frac{2\pi\omega^2 [\hat{\mathbf{e}}_1 \cdot \chi(\omega) \hat{\mathbf{e}}_2 \hat{\mathbf{e}}_1]}{k_1 c^2}. \quad (4.31)$$

Пусть при  $z = 0$   $\rho_1 = \rho_1(0)$  и  $\rho_2 = 0$ . В действительности, как следует из уравнения (4.10), граничные условия для волны гармоники с амплитудой  $\rho_2(0)$  оказываются несколько иными; однако начальная амплитуда  $\rho_2$  настолько мала, что процесс генерации второй гармоники хорошо соответствует условию  $\rho_2(0) = 0$ . Первый интеграл имеет вид

$$\rho_1^2 + \rho_2^2 = \rho_1^2(0).$$

Подстановка этого соотношения в последнее из уравнений (4.30) дает

$$\frac{d\rho_2}{dz} = C [\rho_1^2(0) - \rho_2^2]. \quad (4.32)$$

Производя элементарное интегрирование, получаем

$$\rho_2 = \rho_1(0) \operatorname{th} [C\rho_1(0)z]. \quad (4.33)$$

Поскольку интенсивность второй гармоники растет, мощность на основной частоте падает:

$$\rho_1 = \rho_1(0) \operatorname{sch} [C\rho_1(0)z]. \quad (4.34)$$

Характеристическая длина нелинейного взаимодействия может быть определена с помощью соотношения

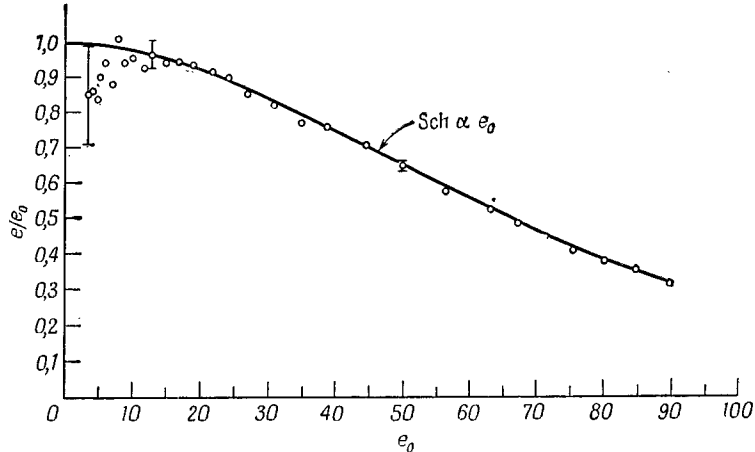
$$l = C^{-1}\rho_1^{-1}(0) = [2\pi\epsilon^{-1}k\chi(\omega)\rho_1(0)]^{-1} = \frac{n\lambda}{8\pi^2\chi(2\omega)\rho_1(0)}. \quad (4.35)$$

На этой длине около 60% мощности преобразуется в мощность второй гармоники (здесь  $n$  — показатель преломления,  $\lambda$  — длина волны в вакууме). При расчете численных значений следует помнить, что по нашему определению амплитуд величина  $\chi(2\omega)$  вдвое больше значения, обычно употребляемого в литературе, а амплитуда  $\rho_1(0)$  для данного уровня мощности — вдвое меньше. На величину когерентной длины это, конечно, не влияет. При нашем определении  $\chi(2\omega) = 6 \cdot 10^{-9}$  ед. CGSE для кристалла  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  (сокращенно KDP). Для амплитуды  $2\rho_1(0) = 2,7 \cdot 10^5$  в/см, соответствующей потоку плотности мощности  $n c \rho_1^2 / 2\pi = 100$  Мвт/см<sup>2</sup>, находим  $l = 0,5$  см при  $\lambda = 6943 \text{ \AA}$ .

Терхьюн и др. [5] получили 20%-ное преобразование мощности излучения рубинового лазера в излучение второй гармоники. Луч был слегка сфокусирован и распространялся точно вдоль направления синхронизма в KDP. Тот факт, что не вся мощность может быть преобразована во вторую гармонику, связан, по-видимому, с присутствием в лазерном пучке набора лучей, для которых условия синхронизма не могут быть выполнены одновременно. Существует довольно распространенное мн-



ние, что из-за необходимости «термодинамического равновесия» во вторую гармонику может быть преобразовано не более 50% мощности основной волны. Однако оно основано на недоразумении; если фаза исходной волны полностью определена, ее энтропия равна нулю; в когерентных процессах без флуктуаций это остается справедливым. Термодинамика здесь к делу не относится.



Фиг. 12. Экспериментальная зависимость относительной амплитуды акустической волны частоты  $9,1 \cdot 10^9$  гц в кристалле MgO от амплитуды на входной грани кристалла  $e_0$  (по данным Ширена).

Уменьшение амплитуды основной волны происходит вследствие перекачки ее энергии во вторую гармонику. Сплошная кривая построена по формуле (4.34).

Наиболее существенный вывод, следующий из (4.33), состоит в том, что в среде без потерь возможно полное преобразование мощности основного излучения во вторую гармонику. Хотя в опытах по генерации световых гармоник такое преобразование и не было достигнуто, тем не менее оно было получено Ширеном [6] для акустических волн. На фиг. 12 произведено сравнение полученных Ширеном экспериментальных результатов с теоретической кривой [формула (4.34)], описывающей уменьшение амплитуды основной волны в некотором сечении нелинейной среды в функции амплитуды падающей волны на границе нелинейной среды. В следующем параграфе

показано, что развитая теория действительно пригодна для описания нелинейных взаимодействий акустических волн.

### § 3. Взаимодействия электромагнитных волн с акустическими волнами

#### АКУСТИЧЕСКИЕ НЕЛИНЕЙНОСТИ

Нелинейные свойства твердых тел, описываемые ангармоническими членами в уравнениях теории упругости, известны достаточно давно. Ниже мы убедимся, что теория нелинейных взаимодействий акустических волн может быть развита точно так же, как это было сделано ранее для электромагнитных волн. Вместе с тем следует отметить, что, поскольку для заданного направления распространения возможны три типа акустических волн, а соотношения между деформацией и напряжением уже для линейного случая описываются тензором четвертого ранга, теория нелинейных взаимодействий акустических волн оказывается более сложной, нежели соответствующая теория для электромагнитных волн.

Мы не будем здесь, однако, подробно рассматривать акустические нелинейные эффекты, а проследим лишь аналогию их с нелинейными электромагнитными взаимодействиями. Для этой цели достаточно рассмотреть случай чисто продольных акустических волн; пусть они распространяются в направлении оси  $z$ . В области гиперзвуковых частот акустические и оптические длины волн оказываются сравнимыми. Частотная дисперсия для акустических волн весьма мала, так что нетрудно осуществить точное согласование фазовых скоростей на расстояниях порядка 1 см. Кроме того, затухание акустических волн может быть весьма малым; в чистых кристаллах при температуре жидкого гелия акустическая волна затухает в  $e$  раз на расстояниях порядка 10 см и более. Не представляет труда возбудить акустические волны с интенсивностями, при которых начинают проявляться нелинейные свойства среды. В теории нелинейных взаимодействий акустических волн роль использованных нами ранее соотношений для векторов  $\mathbf{P}$  и  $\mathbf{E}$  должны иг-

рять соотношения между величинами напряжения  $\sigma$  и деформации  $S$ . Обозначим линейный модуль упругости через  $C$ , а самый младший нелинейный модуль упругости через  $A$ . Запишем общее тензорное соотношение в виде

$$\sigma_{ij} = C_{ik}^{jl} S_{kl} + A_{ikm}^{jln} S_{kl} S_{mn} + \dots \quad (4.36)$$

Для рассматриваемого случая продольных волн, распространяющихся вдоль оси  $z$ , имеем

$$\sigma_{zz} = CS_{zz} + C^{NL} S_{zz}^2, \quad (4.37)$$

где  $C^{NL}$  означает  $A_{zzz}^{zzz}$ , а  $C = C_{zz}^{zz}$ . В общем случае коэффициенты  $C$  и  $C^{NL}$  удовлетворяют неравенству

$$3C < C^{NL} < 16C.$$

Уравнение для продольной волны, распространяющейся в направлении оси  $z$ , выводится при рассмотрении уравнения движения единицы объема с удельной плотностью  $\rho$ . Учитывая, что  $S_{zz} = \partial u / \partial z$  (где  $u$  — смещение), запишем линейное волновое уравнение в виде

$$\rho \ddot{u} = \frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} = C \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \quad (4.38)$$

или для безразмерной величины деформации

$$\ddot{S} - \left( \frac{C}{\rho} \right) \frac{\partial^2 S}{\partial z^2} = 0. \quad (4.39)$$

Данные по дисперсии величины  $C(\omega)$  можно найти в книгах [7, 8]; заметим, что  $C(\omega)$  изменяется менее чем на  $10^{-6}$  в диапазоне частот от 0 до  $10^{10}$  гц. Решения линейного волнового уравнения могут быть записаны в виде бегущих волн  $2\text{Re}\{S_1 \exp(iq_1 z - i\omega_1 t)\}$  с фазовой скоростью  $\omega_1/q_1 = (C/\rho)^{1/2}$ . Нелинейное волновое уравнение имеет вид

$$\ddot{S} - \left( \frac{C}{\rho} \right) \frac{\partial^2 S}{\partial z^2} = \frac{C^{NL}}{\rho} \frac{\partial^2 S^2}{\partial z^2}. \quad (4.40)$$

Для деформаций  $S < 10^{-2}$  нелинейный член [правая часть (4.40)] можно рассматривать как малое возмущение. Наличие в уравнении (4.40)  $S^2$  показывает, что акустическая волна  $S_1$  частоты  $\omega_1$  будет генерировать волну вто-

рой гармоники  $S_2$ . Закон нарастания величины  $S_2(z)$  описывается уравнениями связанных волн. Принимая во внимание, что

$$\left| \frac{\partial^2 S}{\partial z^2} \right| \ll q \left| \frac{\partial S}{\partial z} \right| \ll q^2 |S|,$$

эти уравнения можно записать в виде

$$-\left( \frac{C}{\rho} \right) (2iq_1) \frac{\partial S_1}{\partial z} = \frac{C^{NL}}{\rho} (-2q_1^2) S_2 S_1^*. \quad (4.41)$$

$$-\left( \frac{C}{\rho} \right) (2iq_2) \frac{\partial S_2}{\partial z} = \frac{C^{NL}}{\rho} (-4q_1^2) S_1^2. \quad (4.42)$$

Эти уравнения по форме точно совпадают с уравнениями (4.24) и (4.25) для связанных электромагнитных волн в случае идеального согласования фазовых скоростей. Вместе с тем имеется, конечно, и существенное различие. В акустическом случае нельзя ограничиться двумя волнами, поскольку в силу слабой дисперсии волна третьей гармоники, вообще говоря, тоже сильно взаимодействует с волнами на частотах  $\omega_1$  и  $2\omega_1$ . Это приводит к сильному усложнению задачи. Недостаточно просто добавить к (4.41) и (4.42) уравнение для третьей гармоники:

$$-\left( \frac{C}{\rho} \right) (2iq_3) \frac{\partial S_3}{\partial z} = \frac{C^{NL}}{\rho} (-9q_1^2) S_1 S_2. \quad (4.43)$$

Необходимо еще включить в уравнение (4.41) член, пропорциональный  $S_3 S_2^*$ , а в уравнение (4.42) — член, пропорциональный  $S_3 S_1^*$ . Как только интенсивность волны третьей гармоники достигнет заметной величины, начнется генерация четвертой гармоники и т. д. К счастью, оказывается возможным изменить постоянную распространения ультразвуковой волны путем использования ее взаимодействия с парамагнитными ионами. Спиновые уровни последних могут быть «настроены» на акустическую частоту с помощью внешнего магнитного поля; такая «настройка» приводит к появлению поглощения и аномальной дисперсии для ультразвуковых волн. Соответствующие эксперименты были выполнены Ширеном в кристалле MgO с присадкой ионов  $Ni^{2+}$  или  $Fe^{2+}$ ; этим мето-

дом ему удалось подавить третью гармонику. Математически влияние парамагнитных ионов может быть описано добавлением к модулям упругости в волновом уравнении комплексной величины  $\Delta C_{\text{магн}}$ . В упрощенных уравнениях первого порядка магнитное возмущение учитывается добавлением к правой части уравнения (4.43) члена  $\Delta C_{\text{магн}} \rho^{-1} q_3^2 S_3$ . Действительная часть величины  $\Delta C_{\text{магн}}$  вызывает рассогласование фазовых скоростей, а мнимая часть — поглощение волн  $S_3$ . Вблизи магнитного резонанса обе части дают вклад в подавление волн третьей гармоники  $S_3$ . Поэтому уравнения (4.41) и (4.42) оказываются для этого случая хорошим приближением. Описанным методом Ширен [6] получил экспериментальные точки (см. фиг. 12), удивительно хорошо совпадающие с теоретической кривой, рассчитанной для случая взаимодействия только двух волн. В случае когда третья гармоника не подавлена, амплитуда основной волны как функция начальной амплитуды спадает более медленно. В этом случае, характеризуемом отсутствием дисперсии, генерируются все гармоники, и решение дается формулами типа (3.27) и (3.29).

#### РАССЕЯНИЕ МАНДЕЛЬШТАМА — БРИЛЛЮЭНА

Теперь мы рассмотрим взаимодействие акустических и оптических волн. При упругих деформациях среды меняется ее коэффициент преломления. Это явление хорошо известно и используется для анализа напряжений оптическими методами. Давно известно и явление изменения показателя преломления с изменением плотности при гидростатическом сжатии. Распространение световых волн в среде при наличии периодических упругих деформаций систематически исследовалось Бриллюэном<sup>1)</sup>.

<sup>1)</sup> Напомним, что особый интерес эти исследования представляли в связи с выяснением природы тонкой структуры релеевского рассеяния. В исследованиях, проведенных Бриллюэном и Мандельштамом, было установлено, что тонкая структура связана с рассеянием света на тепловых акустических волнах, существующих в рассеивающей среде. Компоненты тонкой структуры со смещениями, описываемыми формулой (4.44), носят название дублета Мандельштама — Бриллюэна, а рассеяние света на акустических волнах — рассеяния Мандельштама — Бриллюэна. В опытах по рассеянию с

Влияние акустических волн на распространение света можно трактовать как дифракцию световой волны на решетке с переменным коэффициентом преломления, образованной акустическими колебаниями; можно сказать также, что световая волна с волновым вектором  $\mathbf{k}_1$  и частотой  $\omega_1$ , рассеиваясь на акустической волне с волновым вектором  $\mathbf{q}_2$  и частотой  $\omega_2$ , образует световую волну с волновым вектором  $\mathbf{k}_3$  и частотой  $\omega_3$ . Законы сохранения энергии и квазиимпульса требуют выполнения соотношений

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad \text{и} \quad \mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{q}_2.$$

Для акустических фононов с частотой ниже  $10^{10}$  гц эти условия всегда могут быть выполнены. Хотя импульс  $q_2$  может быть по порядку величины сравним с  $k_1$  и  $k_2$  (поскольку фазовая скорость звука значительно ниже скорости света), акустическая частота  $\omega_2 \ll \omega_1, \omega_3$ . Поэтому треугольники для импульсов, изображенные на фиг. 13, можно рассматривать как равнобедренные, со сторонами  $|\mathbf{k}_1| \approx |\mathbf{k}_3|$ . Отсюда сразу же следует соотношение для угла рассеяния света

$$2k \sin \frac{\theta}{2} = q$$

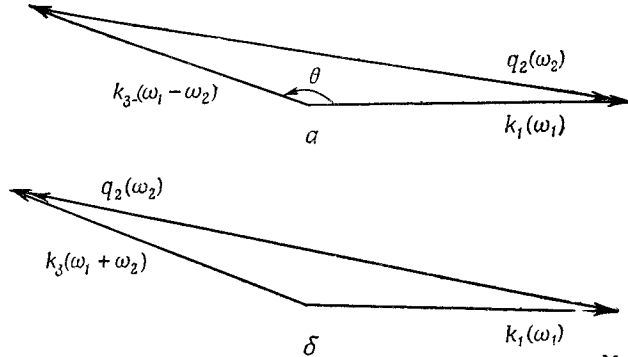
или для частоты акустической волны, обуславливающей рассеяние,

$$\omega_2 = 2\omega_1 n_1 \left( \frac{v}{c} \right) \sin \frac{\theta}{2}, \quad (4.44)$$

где  $v$  — фазовая скорость звука в среде, а  $n_1$  — показатель преломления на частоте  $\omega_1$ . Максимальная частота

использованием обычных источников света воздействием световых волн на акустические волны можно пренебречь. При этом наблюдается так называемое спонтанное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна на тепловых акустических волнах. Подробное изложение соответствующих теоретических и экспериментальных данных можно найти в [34\*, 35\*]. В настоящей же книге основное внимание уделено взаимодействию световых волн с когерентными акустическими волнами, и в особенности когерентными акустическими волнами, вызываемыми светом за счет эффекта электрострикции. Последний эффект носит название вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна. — Прим. ред.

звука, участвующего в рассеянии Мандельштама — Бриллюэна, соответствует рассеянию света в обратном направлении,  $\theta = \pi$ . Интенсивность рассеянного света для рассматриваемого случая можно вычислить таким же способом, как и интенсивность волны суммарной частоты, генерируемой двумя световыми волнами.



Фиг. 13. Направление волновых векторов при рассеянии Мандельштама — Бриллюэна.

*a* — в элементарном акте рассеяния акустический фотон излучается; рассеянный свет имеет частоту, меньшую, чем падающий свет частоты  $\omega_1$  (стоксово рассеяние).  
*b* — в элементарном акте фотон поглощается; рассеянный свет имеет частоту, большую, чем падающий свет частоты  $\omega_1$  (антистоксово рассеяние).

Для усредненной по времени нелинейной части энергии в среде в присутствии двух световых и одной акустической волн имеем

$$\langle F \rangle = 2\text{Re} p E_1 S_2 E_3^* \quad (4.45)$$

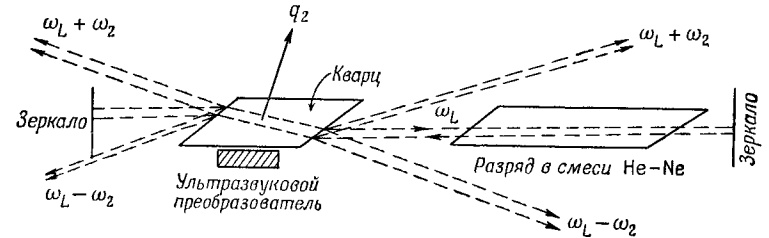
Если частота звука  $\omega_2 = 0$  и амплитуда  $E_3^*$  заменена на  $E_1^*$ , то это соотношение описывает энергию фотоупругой связи. Постоянная фотоупругости  $p$  является тензором четвертого ранга, который связывает тензор деформаций с векторами двух электрических полей. Фотоупругие постоянные измерены для целого ряда материалов и имеют обычно величину  $\sim 1$ , например 0,5.

Из соотношения (4.45) непосредственно получаем выражение для волны поляризации с частотой  $\omega_3$ :

$$P(\omega_3) = p E_1 S_2 e^{i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{r} - i(\omega_1 + \omega_2)t} \quad (4.46)$$

Процесс генерации световой волны с частотой  $\omega_3$  описывается формулой (4.12), которая в случае полного согласования фазовых скоростей остается справедливой до тех пор, пока интенсивность волны с частотой  $\omega_3$  не возрастет настолько, что станет заметной уменьшение интенсивности одной или обеих волн с частотами  $\omega_1, \omega_2$ .

Интересно, что недавно предложено применить рассеяние света на ультразвуковых волнах для модуляций излучения лазера. Кристалл кварца помещается внутри



Фиг. 14. Схема установки для ультразвуковой модуляции излучения газового лазера с полностью отражающими зеркалами. Отражение от внутренних граней кристалла отсутствует в силу условия Брюстера (по данным работы [30]).

Ультразвуковая бегущая волна с волновым вектором  $q_2$  после прохождения через кристалл кварца поглощается.

резонатора газового лазера, как это показано на фиг. 14. Зеркала являются полностью отражающими, и если кварц не возбужден, излучение лазера из резонатора не выходит. Если же в кварце возбуждена бегущая в поперечном направлении ультразвуковая волна с частотой, удовлетворяющей условию (4.44), то из резонатора будет выходить свет со смещенной частотой. Величину связи можно регулировать изменением амплитуды ультразвуковой волны.

Наличие связи между световыми и акустическими волнами (4.45) может приводить к возбуждению света и на разностной частоте,  $\omega_{3-} = \omega_1 - \omega_2$ . Соответствующая волна поляризации с частотой  $\omega_{3-}$  имеет вид

$$P(\omega_{3-}) = p E_1 S_2^* e^{i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{q}_2) \cdot \mathbf{r} - i(\omega_1 - \omega_2)t} \quad (4.47)$$

В этом случае закон сохранения импульса запишется в виде

$$\mathbf{k}_{3-} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{q}_2.$$

Если это соотношение выполнено, интенсивности акустической ( $\omega_2$ ) и рассеянной световой ( $\omega_{3-}$ ) волн будут возрастать с расстоянием, а интенсивность исходной световой волны ( $\omega_1$ ) — уменьшаться.

Если световая или акустическая волны являются стоячими волнами, необходимо рассмотреть все возможные комбинации прямой и обратной волн.

Пользуясь выражением для усредненной по времени свободной энергии (4.45), можно рассмотреть также задачу о генерации акустической волны, возникающей в результате смешения двух световых волн. Дифференцируя (4.45) по  $S_2$ , для фурье-компоненты тензора напряжений с частотой  $\omega_2 = \omega_1 - \omega_3$ , имеем

$$\sigma_{\text{фото}}^{(\omega_2)} = \rho E_1 E_{3-}^* e^{i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r} - i\omega_2 t}. \quad (4.48)$$

При  $\omega_1 = \omega_3$  получаем постоянное напряжение (электрострикция в переменном поле). Периодически изменяющееся напряжение частоты  $\omega_2$  служит источником акустических волн, в полном соответствии с неоднородным волновым уравнением [ср. с уравнением (4.40)]:

$$\rho \ddot{S} - C \frac{d^2 S}{dz^2} = \frac{d\sigma_{\text{фото}}}{dz^2} = -|\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3|^2 \rho E_1 E_{3-}^* e^{i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r} - i\omega_2 t}. \quad (4.49)$$

Нетрудно видеть, что световая волна с частотой  $\omega_{3-}$  будет возрастать одновременно с акустической волной частоты  $\omega_2$ . В связи с этим возникает интересный вопрос, что будет, если начальная амплитуда  $E_{3-}$  выбирается весьма малой. Очевидно, что волны с частотами  $\omega_2$  и  $\omega_{3-}$  будут нарастать за счет энергии световой волны с большей частотой  $\omega_1$ . Наконец, величину  $E_{3-}$  можно положить равной нулю. Могут ли волны с частотами  $\omega_{3-}$  и  $\omega_2$  нарастать от уровня шумов? Эта задача сводится к задаче о параметрической генерации и преобразовании частоты вниз; она будет рассмотрена в следующем параграфе. Следует иметь в виду, что такие эффекты могут иметь

место не только при взаимодействии световых и акустических волн, но и при взаимодействии только световых волн.

#### § 4. Параметрическое преобразование частоты вниз и параметрическое возбуждение автоколебаний

Обратимся к уравнениям (4.33) и (4.34), описывающим процесс генерации второй гармоники света в случае полного согласования фазовых скоростей. Допустим, что с помощью слоя диспергирующего материала фаза волны второй гармоники в какой-то точке сдвинута на  $180^\circ$  относительно фазы основной волны, и после этого фазовые скорости волн вновь согласованы. После этой операции производные амплитуд изменяют знак: теперь вторая гармоника подавляется, в то время как основная волна (субгармоника) регенерируется.

Процесс генерации субгармоники соответствует граничным условиям  $A_1(\omega) = 0$ ,  $A_2(2\omega) = A_2(0)$ . Однако при таких граничных условиях, как следует из уравнений при  $z = 0$ ,  $dA_1/dz = dA_2/dz = 0$ , и, следовательно, волны не взаимодействуют. В действительности  $A_1(0) \neq 0$ , что связано с неизбежным наличием шумов в среде. Поэтому можно записать  $A_1(0) = A_{\text{ш}}(\omega)$ , где величина  $A_{\text{ш}}(\omega)$  определяется спектральной компонентой шума на частоте  $\omega$ . Ниже мы увидим, что при определенных условиях нелинейная среда, возбуждаемая интенсивной волной с частотой  $2\omega$ , способна к усилению волн частоты  $\omega$ . Следовательно, шум будет усилен и при введении соответствующей обратной связи могут возбудиться автоколебания. Это обстоятельство было отмечено Кингстоном [9]. Кролль [10] более подробно исследовал процесс параметрического преобразования энергии световой волны с частотой  $\omega_1$  вниз по частоте в энергию двух световых волн с частотами  $\omega_2$  и  $\omega_{3-} = \omega_1 - \omega_2$ .

Обратимся к анализу этого последнего случая <sup>1)</sup>. Све-

<sup>1)</sup> Таким образом, энергия интенсивной волны частоты  $\omega_1$  (ее называют также волной накачки) может передаваться либо волне субгармоники частоты  $\omega_1/2$  (такой режим называют режимом «вырожденного параметрического усиления»), либо в более общем слу-

товое поле с частотой  $\omega_1$ , которое можно назвать накачкой (обычно источником накачки является лазер с частотой  $\omega_L$ ), будем считать заданным. Два связанных волновых уравнения, описывающих поля с частотами  $\omega_2$  (далее, это поле будем называть также полем сигнала  $\omega_2 = \omega_s$  и  $\omega_3$  (так называемая холостая частота  $\omega_3 = \omega_i$ ), имеют вид

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_s - \frac{\varepsilon(k_s) \omega_s^2}{c^2} \mathbf{E}_s = \frac{4\pi \omega_s^2}{c^2} \chi(\omega_s = \omega_L - \omega_i) \mathbf{E}_L \mathbf{E}_i^*, \quad (4.50)$$

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_i^* - \frac{\varepsilon^*(k_i) \omega_i^2}{c^2} \mathbf{E}_i^* = \frac{4\pi \omega_i^2}{c^2} \chi^* (-\omega_i = -\omega_L + \omega_s) \mathbf{E}_L^* \mathbf{E}_s \quad (4.51)$$

(индекс  $L$  относится к волне накачки,  $\omega_L = \omega_s + \omega_i$ ). Ищем решение в виде

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_s &= \hat{\mathbf{e}}_s A_s e^{i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r} - i\omega_s t}, \\ \mathbf{E}_i^* &= \hat{\mathbf{e}}_i A_i^* e^{i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}_L) \cdot \mathbf{r} + i\omega_i t}, \end{aligned} \quad (4.52)$$

(здесь  $A_s$  и  $A_i$  считаются постоянными). Подстановка этих выражений в уравнения (4.50) и (4.51) приводит к двум однородным алгебраическим соотношениям для амплитуд  $A_s$  и  $A_i^*$ . Ненулевые решения имеют место в случае, когда определитель системы равен нулю. Если граничные условия поставлены при  $z = 0$ , амплитуды волн могут изменяться только вдоль оси  $z$ . Поэтому проекции волнового вектора  $k_{xs}$  и  $k_{ys}$  являются действительными, а проекция  $k_{zs}$  — комплексной. Приравнивая нулю определитель системы, получаем

$$\begin{aligned} [k_{zs}^2 + (k_{xs}^2 + k_{ys}^2) - (k_s^0)^2] [(k_{zs} - k_{zL})^2 + (k_{xs} - k_{xL})^2 + \\ + (k_{ys} - k_{yL})^2 - (k_i^0)^2] = \left( \frac{4\pi \omega_i \omega_s}{c^2} \right)^2 \chi^2 |E_L|^2, \end{aligned} \quad (4.53)$$

чае — двум волнам с частотами  $\omega_2, \omega_3$ , удовлетворяющим условию  $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$  («невыврожденное параметрическое усиление»). Оба эти режима усиления световых волн наблюдались недавно экспериментально [36\*, 37\*]. Изложение теории вырожденного параметрического усиления бегущих волн можно найти, например, в [38\*]. — Прим. ред.

где для сокращения записи введено обозначение  $\chi = \hat{\mathbf{e}}_s \chi(\omega_s) : \hat{\mathbf{e}}_L \hat{\mathbf{e}}_i$ . Это — уравнение четвертой степени относительно  $k_{sz}$  при заданном значении тангенциальной компоненты волнового вектора  $(k_{xs}^2 + k_{ys}^2)^{1/2}$ . Корни уравнения, имеющие отрицательные мнимые части, соответствуют экспоненциально нарастающим связанным волнам. Величины  $k_s^0$  и  $k_i^0$  в (4.53) — постоянные распространения собственных волн среды с частотами  $\omega_s$  и  $\omega_i$ , являющихся решениями однородного уравнения (в отсутствие накачки  $E_L = 0$ ). Если среда обладает потерями на частоте  $\omega_s$  или  $\omega_i$ , эти постоянные распространения являются комплексными; при этом величину  $(k_s^0)^2$  для волны  $E_s$  следует заменить на  $(k_s^0)^2 (1 + i\varepsilon_s''/\varepsilon_s')$ , а величину  $(k_i^0)^2$  для волны  $E_i^*$  — на  $(k_i^0)^2 (1 - i\varepsilon_i''/\varepsilon_i')$ .

Введем обозначения для  $z$ -компонент постоянных распространения собственных волн:

$$\begin{aligned} k_{zs}^m &= [(k_s^0)^2 - (k_{xs}^2 + k_{ys}^2)]^{1/2}, \\ k_{zi}^m &= [(k_i^0)^2 - (k_{xi}^2 + k_{yi}^2)]^{1/2}, \end{aligned}$$

и величины рассогласования фазовых скоростей в направлении оси  $z$ :  $\Delta k = k_{zs}^m - k_{zL} + k_{zi}^m$ , причем рассматривать будем только те значения тангенциальных компонент, для которых  $\Delta k \ll k_{sz}^0$ . Корни уравнения (4.53) отличаются от  $k_{sz}^m$  на малую величину  $\Delta k$ . Уравнение четвертой степени для среды без потерь принимает вид

$$\begin{aligned} [+2k_{sz}^m \Delta k + (\Delta k)^2] [-2k_{zi}^m (\Delta k + \Delta k) + (\Delta k + \Delta k)^2] = \\ = \left( \frac{4\pi \omega_i \omega_s}{c^2} \right)^2 |\chi|^2 |E_L|^2. \end{aligned} \quad (4.54)$$

Это уравнение имеет 2 корня  $\Delta k$ , величины которых малы, и два корня  $\Delta k$  вблизи значения  $-2k_{sz}^0$ . Последние два решения соответствуют обратным волнам, бегущим в направлении, противоположном направлению распространения волны накачки. Первые два корня можно вычислить с достаточной точностью, если в уравнении (4.54) опустить члены  $(\Delta k)^2$  и  $(\Delta k + \Delta k)^2$ , стоящие в

квадратных скобках. Тогда остается квадратное уравнение с двумя корнями:

$$\Delta k = -\frac{1}{2} \Delta k \pm \left[ \frac{1}{4} (\Delta k)^2 - \left( \frac{4\pi\omega_i\omega_s}{c^2} \right)^2 \times \right. \\ \left. \times \frac{1}{4k_{zs}^m k_{zi}^m} |\chi|^2 |E_L|^2 \right]^{1/2}. \quad (4.55)$$

Легко видеть, что один из корней будет иметь отрицательную мнимую часть (т. е. будет возможно усиление) в случае выполнения условия

$$|\Delta k| < \frac{4\pi\omega_i\omega_s}{c^2 (k_{zs}^m k_{zi}^m)^{1/2}} |\chi E_L|.$$

Усиление максимально при  $\Delta k = 0$ . Возрастающая волна представляет собой линейную комбинацию волны сигнала и волны с холостой частотой. Отношение их амплитуд равно значению собственного вектора, соответствующего собственному значению  $\Delta k$ . Если усиление превышает неизбежные потери, возникающие вследствие рассеяния или потерь при отражении от зеркал, используемых для создания обратной связи, в рассматриваемой среде возникают колебания (параметрическая генерация). Следует подчеркнуть, что требование согласования фазовых скоростей является весьма жестким; необходимо поэтому, чтобы в эксперименте расходимость волны накачки была минимальной и определялась только дифракцией.

Вышеуказанным способом рассмотрение можно распространить и на случай среды с потерями. Нетрудно также показать, что переход от характеристического уравнения четвертой степени (4.53) к квадратному уравнению соответствует переходу от уравнений второго порядка (4.50) и (4.51) к приближенным уравнениям первого порядка (см. § 2 настоящей главы); в этом приближении также можно учесть и поглощение.

Аналогично тому как это было сделано при выводе уравнений (4.24) и (4.25), можно получить уравнения первого порядка для медленно меняющихся амплитуд;

обозначим их через  $E_s$  и  $E_i$ . Полагая углы  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ , имеем

$$\frac{dE_s}{dz} = i \frac{4\pi\omega_s^2}{2k_{zs}^m c^2} \chi E_L E_i^* e^{i\Delta k z} - \alpha_s E_s, \quad (4.56)$$

$$\frac{dE_i^*}{dz} = -i \frac{4\pi\omega_0^2}{2k_{zi}^m c^2} \chi^* E_L^* E_s e^{-i\Delta k z} - \alpha_i E_i^*. \quad (4.57)$$

Здесь введены коэффициенты затухания по амплитуде  $\alpha_s$  и  $\alpha_i$ ; они непосредственно определяются величиной мнимой части диэлектрической проницаемости. Решение этих уравнений дает две волны с постоянными распространения  $k_{zs}^m + \Delta k$ , где

$$\Delta k = -\frac{1}{2} \Delta k + \frac{1}{2} i (\alpha_s + \alpha_i) \pm \left\{ \frac{1}{4} [\Delta k - i (\alpha_i - \alpha_s)]^2 - \right. \\ \left. - \left( \frac{4\pi\omega_i\omega_s}{c^2} \right)^2 \frac{|\chi|^2 |E_L|^2}{4k_{zi}^m k_{zs}^m} \right\}^{1/2}. \quad (4.58)$$

В отсутствие потерь это соотношение идентично формуле (4.55). Для получения усиления необходимо, чтобы коэффициент нарастания превосходил декремент затухания; для случая полного согласования фазовых скоростей и при равенстве потерь для обеих волн это условие может быть записано в виде

$$\frac{2\pi\omega_i\omega_s}{c^2 (k_{zi}^m k_{zs}^m)^{1/2}} |\chi| |E_L| > \alpha_s = \alpha_i^1).$$

Весьма интересный результат получается в случае, когда потери для одной волны существенно превышают потери для другой. Пусть

$$\Delta k = 0, \quad \alpha_i \gg \frac{2\pi\omega_i\omega_s}{c^2 (k_{zi}^m k_{zs}^m)^{1/2}} |\chi| |E_L|.$$

<sup>1)</sup> Таким образом, при  $\alpha_{s,i} \neq 0$  и  $\Delta k \neq 0$  усиление возникает лишь при превышении некоторого порогового значения напряженности поля накачки. Уравнения вида (4.56) и (4.57) описывают также процессы вынужденного рассеяния; в этом случае пороговое поле называют «порогом» вынужденного рассеяния (см. ниже). — *Прим. ред.*

В этом случае квадратный корень (4.58) распадается на два значения

$$\Delta x = +i\alpha_i + i \left( \frac{4\pi\omega_i\omega_s}{c^2} \right)^2 \frac{\chi^2 |E_L|^2}{4k_{zi}^m k_{zs}^m \alpha_i}, \quad (4.59)$$

$$\Delta x = i\alpha_s - i \left( \frac{4\pi\omega_i\omega_s}{c^2} \right) \frac{\chi^2 |E_L|^2}{4k_{zi}^m k_{zs}^m \alpha_i}. \quad (4.60)$$

Если величина  $\alpha_s$  достаточно мала, то усиление для одной из волн будет всегда иметь место, несмотря на то что другая волна будет сильно поглощаться. Усиливаемая волна практически содержит только поле с частотой  $\omega_s$ ; волна с частотой  $\omega_i$  имеет существенно меньшую амплитуду. Рассмотренное решение может быть получено более просто, если в уравнении (4.57) пренебречь членом  $|dE_i^*/dz|$  по сравнению с величиной  $\alpha_i E_i^*$ . Подставляя величину  $E_i^*$  из уравнения (4.57) в (4.56), сразу же получаем выражение для постоянной распространения усиливаемой волны, соответствующей значению (4.60). При подстановке решения для  $E_s$  в уравнение (4.57) получаем выражение для волны поляризации с частотой  $\omega_i$ . Отношение амплитуд взаимодействующих волн равно

$$\left| \frac{E_i}{E_s} \right| \approx \frac{4\pi\omega_i^2 \chi |E_L|}{2k_i c^2 \alpha_i}.$$

Эти предельные случаи весьма поучительны. Итак, мнимая часть величины  $\Delta x$  в (4.58), или более точно корень  $\Delta x$  уравнения четвертой степени типа (4.53), где учтено затухание, дает полное описание процессов усиления и затухания при параметрическом преобразовании вниз по частоте. Для каждого собственного значения  $\Delta x$  можно найти соответствующие собственные волны, т. е. надлежащую линейную комбинацию волн с частотами  $\omega_s$  и  $\omega_i$ .

Аналогичное рассмотрение может быть проведено для случая, когда одна из волн, например волна с частотой  $\omega_i$ , является акустической. Это — рассеяние Мандельштама — Бриллюэна. В этом случае уравнение (4.51) нужно заменить акустическим волновым уравнением

(4.49). Выведенные ранее формулы остаются справедливыми; следует произвести лишь подстановки соответствующих физических величин. В кристаллах и жидкостях при комнатной температуре поглощение акустических волн оказывается много большим, чем поглощение световой волны в прозрачной среде. Типичное значение коэффициента поглощения для гиперзвуковой волны  $\alpha_i$  при температуре 300° К на частоте  $10^{10}$  *гц* составляет 400 *см*<sup>-1</sup>; величина  $\alpha_i$  возрастает как квадрат частоты. Поглощение же света характеризуется коэффициентом  $\alpha_s < 0,1$  *см*<sup>-1</sup>. Следовательно, можно ожидать усиления рассеянной световой волны с частотой  $\omega_s$ . Рассеяние Мандельштама — Бриллюэна во многом похоже на комбинационное рассеяние света. Действительно, в элементарном акте рассеяния квант частоты лазера  $\omega_L$  поглощается, световой квант частоты  $\omega_s = \omega_L - \omega_{ак}$  излучается, а акустический фотон  $\hbar\omega_{ак} = \hbar\omega_i$  из-за сильного затухания звука в среде поглощается. Легко видеть, что если величина  $\alpha_i$  постепенно уменьшается до значения, сравнимого с величиной  $\alpha_s$ , характер процесса рассеяния изменяется. При больших  $\alpha_i$  это процесс типа комбинационного рассеяния, где усиливается в основном рассеянная световая волна, а при малых  $\alpha_i$  — процесс параметрической генерации одновременно обеих волн — акустической и световой. Экспериментально последний режим можно реализовать путем охлаждения кристалла до температуры жидкого гелия, при которой величины  $\alpha_i$  и  $\alpha_s$  оказываются сравнимыми.

В § 3 было показано, что луч рассеянного света может идти в обратном направлении; это имеет место, когда величины  $k_{sz}^m$  и  $k_{iz}^m$  в уравнениях (4.58) — (4.60) отрицательны. Для обратной волны коэффициент затухания  $\alpha_s$  следует взять с обратным знаком. В предельном случае большого затухания звуковой волны выведенные соотношения остаются справедливыми при отрицательных значениях  $k_{zi}$  и  $\alpha_s$ . Мнимая часть величины  $\Delta x$  изменяет свой знак. Поскольку взаимодействующие волны распространяются теперь в противоположных направлениях, усиление обратной волны определяется формулой (4.60), если затухание акустической волны велико. Более общая теория явления вынужденного рассеяния Мандельштама —

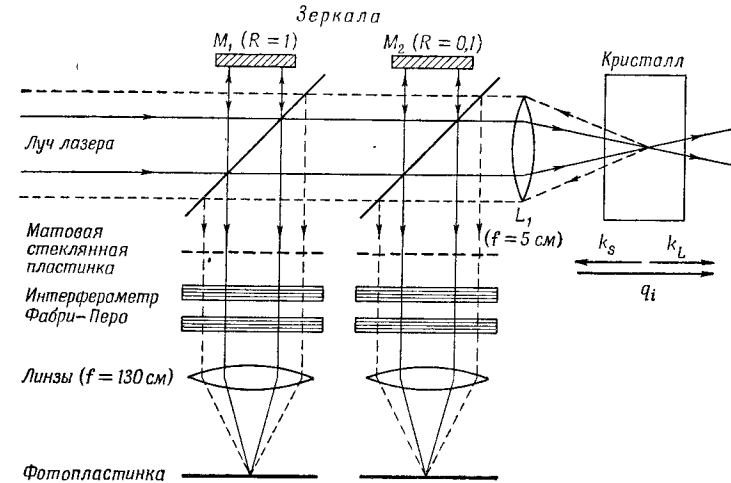


Бриллюэна развита Кроллем [11]. Он детально проанализировал режим рассеяния под углом  $180^\circ$  (рассеяния в обратном направлении) для случая, когда акустическое поглощение не слишком велико по сравнению с величиной параметрического усиления. Кролль обратил также внимание на то обстоятельство, что при анализе рассеяния Мандельштама — Бриллюэна весьма существенным является учет нестационарных процессов. Действительно, за время длительности импульса лазера ( $\sim 10^{-8}$  сек) акустическая волна может не успеть пройти расстояние, обеспечивающее достаточное усиление. Поэтому в уравнениях (4.56) и (4.57) необходим учет производных комплексных амплитуд по времени; в работе [11] дано решение таких уравнений.

Ряд теоретических вопросов, связанных с эффектом вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна, был рассмотрен Таунсом и др. [12]. Экспериментально рассеяние в кварце и сапфире наблюдали Чоу, Таунс и Стойчев [12]. Схема их эксперимента представлена на фиг. 15. При комнатной температуре пороговая мощность лазера, соответствующая появлению вынужденного рассеяния, оказывается весьма высокой; пороговые плотности потока мощности в сфокусированном лазерном луче составляют по оценкам  $10^{10}$  вт/см<sup>2</sup>. При этом в ультразвуке преобразуется доля мощности лазера  $\sim \omega_{\text{ак}}/\omega_L$ , которая из-за сильного поглощения звука за время, меньшее  $10^{-7}$  сек, переходит в тепло. Кристаллы неизменно повреждались, как только интенсивность лазерного излучения оказывалась достаточной для наблюдения эффекта вынужденного рассеяния. В этих опытах в основном регистрировалось рассеяние в обратном направлении. Вынужденное рассеяние в обратном направлении идет, по видимому, наиболее эффективно, поскольку длина взаимодействия рассеянного излучения с излучением лазера в этом случае максимальна. Здесь уместно заметить, что рассеяние Мандельштама — Бриллюэна в прямом направлении ( $\theta = 0$ , см. фиг. 13) возможно в анизотропных кристаллах. Здесь падающая световая волна может быть рассеяна с образованием волны стоксовой частоты, имеющей другую поляризацию и распространяющуюся в том же направлении. Законы сохранения энергии и им-

пульса при  $\omega_{\text{ак}} \neq 0$  выполняются здесь в силу двойного лучепреломления<sup>1)</sup>.

При превышении порога вынужденного рассеяния вдоль луча лазера заметная часть мощности лазера преобразуется в мощность волны стоксовой частоты. При этом мощность рассеиваемой волны уменьшается, и вследствие этого другие нелинейные процессы, например



Фиг. 15. Схема эксперимента по наблюдению вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна в обратном направлении (по данным работы [12]).

Расстояние между пластинами интерферометра Фабри — Перо 0,16 см.

вынужденное рассеяние в других направлениях, могут быть подавлены. Подобное взаимовлияние различных нелинейных процессов, связанных с определенным порогом, имеет большое значение. Нелинейная природа явлений

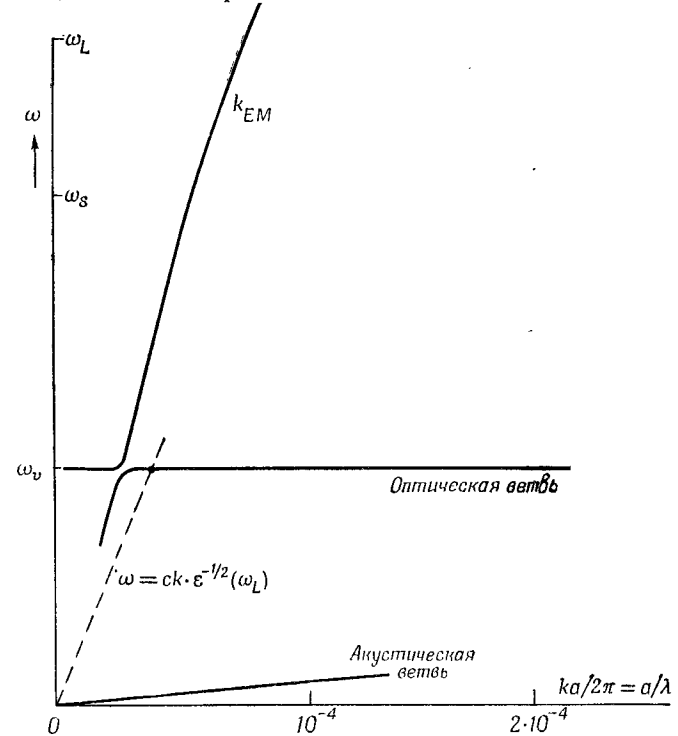
<sup>1)</sup> Действительно, формула (4.44), из которой следует, что  $\omega_{\text{ак}} = 0$  при  $\theta = 0$ , относится к случаю изотропной среды, где падающая и рассеянная волны могут быть волнами разных поляризаций (соответствующие показатели преломления  $n_1$  и  $n_2$ ), вместо (4.44) следует писать  $\omega_{\text{ак}} = \omega_1(v/c)\{(n_1 - n_2)^2 + n_1 n_2 \times (2 \sin^2 \theta/2)^2\}^{1/2}$ , откуда следует, что при  $n_1 \neq n_2$   $\omega_{\text{ак}} \neq 0$  и при  $\theta = 0$ . Соответствующий эксперимент по наблюдению вынужденного рассеяния в кварце описан в [39\*]. — Прим. ред.

такова, что реализуются лишь процессы с самыми низкими порогами. Вынужденное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна может конкурировать с вынужденным комбинационным рассеянием. Как уже указывалось, эти процессы весьма схожи, только роль акустических фононов играют в последнем случае оптические фононы, например молекулярные колебания. В этой связи примечательным является тот факт, что кварц и сапфир не дают эффекта вынужденного комбинационного рассеяния, в то время как кальцит, в котором последний эффект имеет место, не дает вынужденного рассеяния Мандельштама — Бриллюэна.

### § 5. Вынужденное комбинационное рассеяние

Теория этого эффекта обсуждалась многими авторами [14—24]. При классической трактовке вынужденного комбинационного рассеяния как параметрического процесса [25] его можно рассматривать как явление, в значительной мере аналогичное вынужденному рассеянию Мандельштама — Бриллюэна; связь между световой волной стоксовой частоты  $\omega_s$  и оптическими фононами с частотой  $\omega_v$  возникает в поле волны накачки частоты  $\omega_L = \omega_s + \omega_v$ . Основное различие этих явлений состоит в том, что дисперсионные характеристики среды для оптических фононов существенно отличаются от таковых для акустических фононов. Для колебаний типичной молекулярной группы, например  $\text{CO}_2$  в кальците или  $\text{C} - \text{H}$  в молекулярных органических жидкостях, ширина соответствующей фононной ветви весьма мала. Поскольку интерес представляют лишь длинноволновые фононы с длиной волны, соответствующей длине волны света,  $ka < 10^{-3}$  (здесь  $a$  — характерный внутриатомный размер), частота  $\omega_v$  постоянна при изменении волнового числа в довольно широких пределах. Поэтому закон сохранения импульса при рассеянии на таких оптических фононах выполняется для произвольного направления распространения электромагнитной волны с частотой  $\omega_s$ . Дисперсионные характеристики для электромагнитных волн и оптических фононов представлены на фиг. 16. Из-за колебательно-электронного взаимодействия дис-

персионные кривые не пересекаются, причем имеется весьма узкая полоса частот, близких к частоте молекулярных колебаний, соответствующая очень сильному поглощению электромагнитных волн. Соотношения



Фиг. 16. Дисперсионные кривые для электромагнитных волн, оптических фононов и акустических фононов в случае больших длин волн,  $\lambda \gg a$  (масштаб не выдержан).

Комбинационное рассеяние на сильных колебательных модах при относительно слабой связи с электромагнитным полем возможно и в прямом направлении.

Крамерса — Кронига показывают, что диэлектрическая проницаемость для частоты  $\omega \gg \omega_v$  несколько меньше, чем для частоты  $\omega \leq \omega_v$ . Наклон кривых пропорционален величине  $\epsilon^{-1/2}$ . Дальнейшее повышение частоты в сторону видимой части спектра сопровождается уменьшением

наклона кривых, соответствующим естественной дисперсии света. Для выполнения закона сохранения импульса при рассеянии стоксовой компоненты света в прямом направлении должно быть

$$k_L - k_s = \varepsilon^{1/2} (\omega_L) c^{-1} (\omega_L - \omega_s) = \varepsilon^{1/2} (\omega_L) c^{-1} \omega_v = k_v^{\text{мин}}.$$

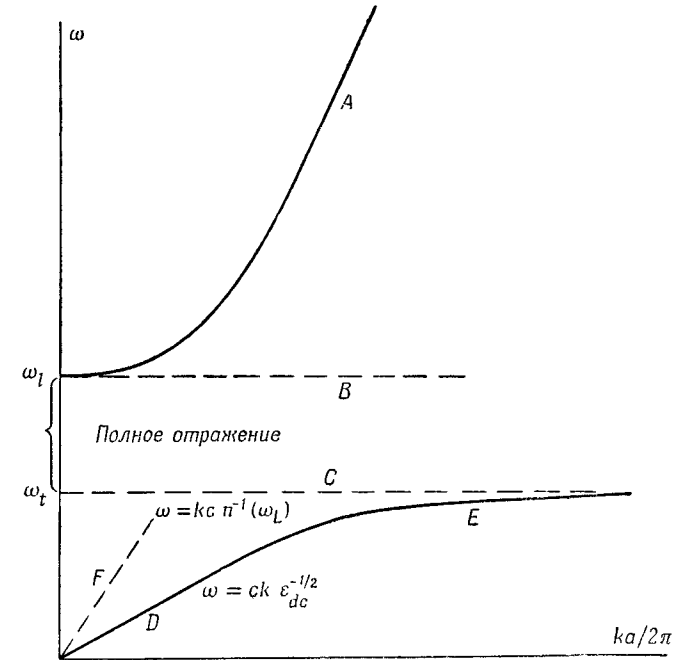
Оптические фононы с таким значением волнового вектора существуют, если  $\varepsilon^{1/2} (\omega_L) > \varepsilon^{1/2} (\omega = \omega_v - \delta)$  ( $\delta$  — малая величина, равная по порядку полосе частот сильного поглощения). Это возможно; см. пунктирную линию с наклоном  $\varepsilon^{1/2} (\omega_L)$  на фиг. 16. Для стоксовых компонент, распространяющихся в других направлениях, можно, очевидно, найти оптические фононы с согласованным импульсом, большим по величине, чем  $k_v^{\text{мин}}$ . Дисперсионная кривая для акустических фононов также построена на фиг. 16, однако масштаб для нее не соблюден. Заметим, что все эти кривые относятся лишь к весьма малым значениям величины  $ka$ , поскольку оптическая длина волны много больше внутриатомных расстояний.

Лоудон [17, 18] рассмотрел случай очень сильной фотон-фононной связи, возникающей при взаимодействии света с колебаниями ионной решетки. В этом случае  $\varepsilon(\omega = \omega_v - \delta) = \varepsilon_{dc}$ , тогда как в диапазоне частот, лежащем выше частоты ионных колебаний, диэлектрическая проницаемость оказывается много меньшей и равной квадрату коэффициента преломления для инфракрасной области. Дисперсионные эффекты здесь выражены более резко и качественно иллюстрируются графиками фиг. 17. Выполнение закона сохранения импульса для стоксовой компоненты, распространяющейся в прямом направлении, в кубических или изотропных средах невозможно. Лоудон показал, однако, что в анизотропных кристаллах рассеяние в прямом направлении возможно.

Мы уделим основное внимание существенно более узким фононным оптическим ветвям, связанным с молекулярными колебаниями<sup>1)</sup>. Эффект вынужденного комби-

<sup>1)</sup> Обстоятельный обзор литературы по спонтанному и вынужденному комбинационному рассеянию в кристаллах дан Лоудоном [40\*]. — *Прим. ред.*

национного рассеяния наблюдался до сих пор только для этих ветвей. Потери при этом существенно меньше, чем в случае широких оптических ветвей. Наблюдение же



Фиг. 17. Дисперсионные характеристики связанных электромагнитных волн и оптически активных ионных колебаний.

A — световая волна; B и C — соответственно продольные и поперечные фононы в отсутствие связей с электромагнитными волнами; D — низкочастотная электромагнитная волна; E — поперечные фононы ионной решетки, связанные с низкочастотной электромагнитной волной; F — наклон дисперсионной характеристики, соответствующий согласованию фазовых скоростей при комбинационном рассеянии в прямом направлении. В случае очень сильной связи рассеяние в прямом направлении в кубических ионных кристаллах невозможно. Лоудон [17, 18] показал, что согласование фазовых скоростей в прямом направлении возможно в анизотропных кристаллах.

эффекта вынужденного комбинационного рассеяния на оптических фононах в ионной решетке, например в NaCl, может быть связано с большими трудностями из-за высокого порога.

Связь между ядерной колебательной координатой  $R$  и полем описывается классической поляризуемостью, параметрически зависящей от  $R$ :

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{\partial \alpha}{\partial R} R + \dots \quad (4.61)$$

Эта модель была введена Плачком. Члены более высокого порядка в нашем случае пренебрежимо малы. Свободная энергия молекулы в электрическом поле равна

$$F = -\frac{1}{2} \alpha E^2 - \frac{1}{2} \frac{\partial \alpha}{\partial R} R E^2. \quad (4.62)$$

Вместо локального колебания  $R$  введем волну оптических фононов

$$Q = 2\text{Re}A_v e^{ik_v \cdot r - i\omega_v t},$$

где  $Q = R(2\rho\omega_v^2)^{1/2}$  означает нормальную координату волны, нормированную на единицу объема; здесь  $\rho$  — плотность,  $\omega_v$  — частота колебаний. В этом случае для усредненной по времени свободной энергии единицы объема в присутствии одновременно двух световых волн и одной волны оптических фононов имеем

$$\langle F_{\text{комб}} \rangle = N \left( \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right) (A_v E_s E_L^* + A_v^* E_s^* E_L). \quad (4.63)$$

Это выражение имеет ту же форму, что и соотношение (4.45) для энергии фотоупругой связи. Теперь можно записать уравнения связанных волн, аналогичные уравнениям (4.56) и (4.57). Волновое уравнение для оптических фононов отличается, однако, от уравнения (4.49) для акустических фононов в силу различия дисперсионных характеристик. Поэтому в уравнении для амплитуды молекулярных колебаний появляется групповая скорость  $d\omega_v/dk_v$

$$\frac{dE_s}{dz} = N \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \frac{i2\pi\omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} E_L A_v^*, \quad (4.64)$$

$$\frac{dA_v^*}{dz} = N \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \left( -i\omega_v \frac{dk_v}{d\omega_v} \right) E_L^* E_s - \frac{dk_v}{d\omega_v} \Gamma(k_v) A_v^*. \quad (4.65)$$

Характерной особенностью процесса является то, что затухание оптических фононов намного превышает затухание световых волн, поэтому последним мы пренебрегаем. Коэффициент поглощения для волны оптических фононов записывается в виде  $(dk_v/d\omega_v) \Gamma(k_v)$ , где  $\Gamma$  имеет размерность частоты и обратна по величине характеристическому времени затухания для оптических фононов. Не следует путать величину  $\alpha$  в формуле (4.65) для молекулярной поляризуемости с декрементами затухания  $\alpha_i$  и  $\alpha_s$  в уравнениях (4.56) и (4.57).

Здесь мы снова имеем два экспоненциальных решения, в которых мы опустим величину  $\exp(i\Delta k z)$ , так как при  $\omega_s = \omega_L - \omega_v$  для любого направления величину  $\Delta k$  можно принять равной нулю. Эти волны распространяются вдоль оси  $z$  и характеризуются постоянной распространения  $k_{sz}^m + \Delta k$ , где

$$\Delta k = + \frac{i}{2} \frac{dk_v}{d\omega_v} \Gamma(k_v) \pm i \left[ \frac{1}{4} \left( \frac{dk_v}{d\omega_v} \right)^2 \Gamma_v^2 + \frac{2\pi N^2 \omega_s^2 \omega_v}{c^2 k_{sz}^m} \frac{dk_v}{d\omega_v} \left( \frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)^2 |E_L|^2 \right]^{1/2}. \quad (4.66)$$

Так как параметр поглощения  $\Gamma_v$  всегда оказывается весьма большой величиной, то, раскладывая квадратный корень в ряд, для постоянной нарастания получаем

$$\Delta k = -i \frac{2\pi\omega_s^2}{k_{sz}^m c^2} \frac{N^2 (\partial \alpha / \partial R)^2}{2\rho\omega_v \Gamma(k_v)} |E_L|^2. \quad (4.67)$$

Волна, соответствующая этому собственному значению, является чисто световой волной с частотой  $\omega_s$ . Конечно, присутствует и небольшая «примесь» волны оптических фононов; она индуцируется при одновременном наличии волн лазера и стоксовой компоненты. Амплитуда этой волны может быть вычислена непосредственно из уравнения (4.65), если пренебречь величиной  $dA_v^*/dz$  по сравнению с диссипативным членом.

Представляет интерес сравнить вышеприведенное классическое описание эффекта вынужденного комбинационного рассеяния с квантовомеханическим расчетом

восприимчивости при комбинационном рассеянии, в результате которого была получена формула (2.62). В квантовомеханической трактовке колебательные уровни являются частью квантованных энергетических уровней локализованной молекулы. При классическом же подходе электронные квантованные уровни включают в поляризуемость  $\alpha$ , а молекулярные колебания трактуются как классическая волна. Мнимая постоянная распространения, соответствующая усилению, может быть выражена через комбинационную восприимчивость

$$\Delta\chi = +i \frac{2\pi\omega_s^2}{k_{sz}^m c^2} \chi_s'' |E_L|^2 \quad (4.68)$$

или

$$\chi_s'' = -\frac{N^2 (\partial\alpha/\partial R)^2}{2\rho\omega_v \Gamma(k_v)}. \quad (4.69)$$

Теперь продемонстрируем эквивалентность формул (2.62) и (4.69). С учетом известного выражения для линейной поляризуемости  $\alpha_0$  [см. формулу Крамерса — Гейзенберга (2.28)] запишем выражение для мнимой части комбинационной восприимчивости (2.62) в виде<sup>1)</sup>

$$\chi_s'' = -\frac{N}{\hbar\Gamma_{g'g_0}} \eta^2 \alpha_0^2 \left( \frac{\omega_v}{\omega_L - \omega_{ng}} \right)^2. \quad (4.70)$$

Безразмерная постоянная  $[\eta\omega_v/\omega_L - \omega_{ng}]^2$  является коэффициентом редукции для переходов, связывающих различные колебательные уровни. Отсюда имеем равенство

$$\frac{\eta\omega_v}{\omega_L - \omega_{ng}} = \left( \frac{R}{\alpha_0} \right) \left( \frac{\partial\alpha}{\partial R} \right)_0.$$

Классическая энергия осциллятора с амплитудой  $2R$  связана с частотой соотношением

$$2m\omega_v^2 R^2 = 2\rho N^{-1} \omega_v^2 R^2 = \hbar\omega_v. \quad (4.71)$$

<sup>1)</sup> Следует отметить, что нерезонансный член в формуле (2.62) имеет знак, противоположный знаку члена, появляющегося в выражении для линейной восприимчивости  $\alpha_0$ . Поэтому формула (4.70) и выражения, производные от нее, носят лишь приближенный характер.

Исключая  $\hbar$  и  $\eta$  из формулы (4.70), приходим к соотношению (4.69).

Параллель между квантовомеханической и классической трактовками комбинационного рассеяния может быть сделана даже более полной, если квантовать нормальные фононные моды, а не локализованные колебательные уровни. Преимуществом такой «нелокальной» трактовки является то, что она позволяет учесть зависимость поглощения от волнового вектора фонона. Поглощение оптических фононов вызвано в основном взаимодействием с акустическими фононами, которое обусловлено ангармоническими упругими силами и несовершенствами кристаллов. Проведение детального количественного расчета распада оптического фонона на два или более акустических фонона затруднительно. На основе общего рассмотрения в пространстве импульсов для конечного состояния можно ожидать, что фонон с волновым вектором  $k_L + k_s$  будет поглощаться несколько сильнее, чем фонон с вектором  $k_L - k_s$ . Поэтому величина усиления на единицу длины для стоксовой волны в прямом направлении, пропорциональная  $\Gamma^{-1}(k_L - k_s)$ , должна быть на несколько процентов больше усиления на единицу длины для стоксовой волны, рассеиваемой в обратном направлении [последнее пропорционально  $\Gamma^{-1}(k_L + k_s)$ ]. Бломберген и Шен [25] предложили привлечь эти рассуждения для объяснения наблюдаемой на опыте асимметрии в интенсивности стоксовой компоненты при рассеянии вперед и назад. При значительном экспоненциальном усилении разница в величине поглощения в несколько процентов может привести к изменению интенсивности стоксовой компоненты на порядок.

Быстрое затухание фононной волны приводит к тому, что усиление стоксовой компоненты не зависит от фазы этой волны. Возрастание амплитуды стоксовой волны в заданном поле  $E_L$  описывается уравнением

$$\frac{dE_s}{dz} = + \frac{2\pi\omega_s^2}{k_{sz} c^2} |\chi_s''| |E_L|^2 |E_s|. \quad (4.72)$$

В действительности амплитуда  $E_s$  экспоненциально возрастает с расстоянием лишь до тех пор, пока она не становится сравнимой с  $E_L$ . После этого величина  $E_L$  уже

не может больше рассматриваться как фиксированный параметр. Ее уменьшение описывается уравнением

$$\frac{dE_L}{dz} = - \frac{2\pi\omega_L^2}{k_{Lz}c^2} |\chi_s''| E_s^2 |E_L|. \quad (4.73)$$

Следует отметить, что в отличие от опытов по смешению и генерации гармоник, где обратной реакцией на порождающие волны во многих случаях можно пренебречь, в экспериментах по вынужденному комбинационному рассеянию наблюдается, как правило, уменьшение мощности накачки; оно неизбежно при высоком уровне мощности или при использовании длинных кювет. Решение системы двух связанных уравнений (4.72) и (4.73) было дано Лоудоном [17, 18]<sup>1)</sup>. Поскольку, как уже указывалось, фазовые соотношения несущественны, от этих уравнений можно перейти к уравнениям для интенсивностей. Умножим уравнение (4.72) на  $E_s^*$ , а уравнение (4.73) на  $E_L^*$ . Далее, используя соотношение между числом фотонов, проходящих через  $1 \text{ см}^2$  в  $1 \text{ сек}$ , и интенсивностью  $|E_s|^2$ ,  $n_s \hbar \omega_s = (c \epsilon_s^{1/2} / 2\pi) |E_s|^2$ , а также аналогичное соотношение для частоты  $\omega_i$ , уравнения связанных волн можно записать в виде<sup>2)</sup>

$$\frac{dn_s}{dz} = W (n_s + 1) n_L, \quad \frac{dn_L}{dz} = -W (n_s + 1) n_L, \quad (4.74)$$

где

$$W = \frac{8\pi^2 \hbar \omega_s \omega_L}{c^2 \epsilon_s^{1/2} \epsilon_L^{1/2}} |\chi_s''|. \quad (4.75)$$

Уравнения для чисел фотонов, записанные в такой форме, могут быть получены и непосредственно при квантовомеханическом подходе; это было проделано Хелворсом [14] и Цайгером [15]. При высоких уровнях мощности

<sup>1)</sup> См. также работы [41\*, 42\*]; в последней аналогичное рассмотрение проведено для среды, состоящей из анизотропных молекул. — *Прим. ред.*

<sup>2)</sup> В уравнениях (4.74) множители  $(n_s + 1)$  записаны вместо  $n_s$  из соображений получения соответствия с квантовой теорией. — *Прим. ред.*

( $n_L \gg 1$ ) спонтанным излучением можно пренебречь; в этом случае уравнения элементарно интегрируются. Первым интегралом является, конечно, закон сохранения полного числа фотонов,  $n_s + n_L = n_s^0 + n_L^0$  (здесь  $n_s^0$  и  $n_L^0$  — числа квантов на границе  $z = 0$ ). С учетом этого первое уравнение системы (4.74) можно записать в виде

$$\frac{dn_s}{dz} = W n_s (n_s^0 + n_L^0 - n_s),$$

решение которого имеет вид

$$n_s = \frac{n_s^0 (n_s^0 + n_L^0)}{n_s^0 + n_L^0 \exp [-(n_s^0 + n_L^0) W z]}. \quad (4.76)$$

Область применимости этого решения, однако, ограничена. Прежде всего, в действительности возбуждается не одна стоксова волна, так как усиление на стоксовой частоте имеет место во всех направлениях. Определенное направление может быть выделено с помощью внешних зеркал, понижающих порог возбуждения вынужденного рассеяния для определенной моды. Так делается в лазерах, использующих эффект комбинационного рассеяния. Как только интенсивность стоксовой компоненты в этой моде возрастает, стоксова волна сама начинает служить накачкой и генерирует волну с частотой  $\omega_{ss} = \omega_s - \omega_v = \omega_L - 2\omega_v$ . Сообщения о генерации таких стоксовых компонент второго порядка появились в первых публикациях по лазерам на комбинационном рассеянии [26]; эти компоненты были обнаружены и многими другими экспериментаторами. В свою очередь излучение с частотой  $\omega_{ss}$  может служить накачкой и генерировать волну с частотой  $\omega_{sss} = \omega_L - 3\omega_v$  и т. д. Волна с частотой  $\omega_{ss}$  не будет генерироваться, если начальное число квантов с частотой лазера меньше числа квантов, соответствующего двойному порогу. В этом случае величина  $n_s$  не может превысить порогового уровня, необходимого для процесса генерации стоксовых компонент второго порядка<sup>1)</sup>. В модели рассеяния, описываемой

<sup>1)</sup> Помимо описанного механизма генерации стоксовых компонент высших порядков, возможен и другой механизм, при котором порог их генерации равен порогу для первой стоксовой компоненты (см. [20]). — *Прим. ред.*

уравнениями типа (4.74), порог связан с поглощением на стоксовой частоте; для его количественного описания следует добавить в (4.74) соответствующие члены.

Поскольку начальная мощность лазера легко может превысить порог вынужденного рассеяния на частоте  $\omega_s$  на один или два порядка, для полного исследования явления оказывается необходимым решать систему многих связанных уравнений. Интенсивность волны лазера быстро падает до величины, превосходящей порог не более чем в несколько раз; возрастание интенсивности стоксовой волны также ограничено за счет процесса образования стоксовых компонент второго порядка. С увеличением интенсивности волны лазера в экспериментах по комбинационному рассеянию появляются стоксовы линии все более высокого порядка; однако интенсивность каждой из стоксовых линий более низкого порядка не может возрасти выше определенного значения. В этом состоит ограничивающее действие нелинейных процессов на интенсивности волн. Можно, конечно, искусственно повысить порог генерации на частоте  $\omega_{ss}$ , вводя сильное поглощение на частоте  $\omega_{ss}$  (но не на частоте  $\omega_s$ ). Вследствие этого волна с частотой  $\omega_{ss}$  будет исключена из системы связанных уравнений (точно так же сильно поглощение может исключить из взаимодействия фоновую волну с частотой  $\omega_p$ ). Если волна частоты  $\omega_{ss}$  не возбуждается, не могут возникнуть и стоксовы компоненты более высокого порядка. В этом случае применимо решение (4.76) двух связанных уравнений для волн с частотами  $\omega_L$  и  $\omega_s$ . Однако в описанных к настоящему времени экспериментах такого подавления компонент не наблюдалось. Более того, если нет резонатора, выделяющего стоксовы волны определенного направления, то возможно интенсивное излучение и на антистоксовых частотах  $\omega_a = \omega_L + \omega_p$ . Это излучение, впервые наблюденное Терхьюном [27], имеет коническую диаграмму направленности; экспериментально наблюдаются также и антистоксовы компоненты более высокого порядка с частотами  $\omega_L + l\omega_p$ .

## § 6. Связь между стоксовыми и антистоксовыми волнами

При более полном теоретическом исследовании вынужденного комбинационного рассеяния следует рассмотреть систему уравнений для связанных волн с частотой  $\omega_p$ , частотой лазера  $\omega_L$  и со всеми комбинационными частотами  $\omega_L \pm l\omega_p$ . Эти волны могут распространяться во многих направлениях. Чтобы сделать задачу разрешимой, следует ввести некоторые упрощающие предположения. Во-первых, можно исключить уравнение для волны с частотой  $\omega_p$ , поскольку оптические фононы сильно поглощаются средой. Во-вторых, допустим, что имеет место поглощение и для световых волн с частотами  $\omega_L \pm 2\omega_p$ . Это позволяет исключить волны стоксовых и антистоксовых компонент с индексом  $l \geq 2$ . Хотя волна нелинейной поляризации с частотой  $\omega_L + 3\omega_p$  может генерироваться при смешении антистоксовой и стоксовой компонент,  $2\omega_a - \omega_s$ , соответствующая нелинейная восприимчивость для этого процесса не будет резонансной. По той же причине можно исключить из рассмотрения и волны с частотами гармоник  $2\omega_L$  и т. д. Таким образом, мы ограничимся рассмотрением уравнений связанных волн с тремя частотами:  $\omega_L$ ,  $\omega_s$  и  $\omega_a$ ; однако даже и этот случай не поддается аналитическому исследованию. Поэтому мы будем считать поле накачки  $E_L$  заданным. Такое приближение достаточно хорошо соответствует (по крайней мере на начальном этапе процесса рассеяния) экспериментально реализуемым условиям, когда интенсивный луч лазера падает на плоскую границу ( $z = 0$ ) нелинейной среды — кристалла, жидкости или газа.

В этом приближении процесс генерации излучения с частотами  $\omega_s$  и  $\omega_a$  описывается системой уравнений для связанных волн с амплитудами  $E_s$  и  $E_a^*$ . Без существенного ограничения общности будем считать среду изотропной. Предположим далее, что все волны поляризованы одинаково, так что можно использовать выражения для скалярной комбинационной восприимчивости (2.62) и (2.68). Точно так же можно, разумеется, рассмотреть и случай, когда поляризации стоксовой и антистоксовой компонент и поляризация излучения лазера перпендику-

лярны. Ко всем комбинационным восприимчивостям следует прибавить действительную нерезонансную компоненту  $\chi_{NR}$ ; ее дисперсией можно пренебречь, поскольку возбужденные электронные уровни сильно разнесены по сравнению с величиной  $\omega_a - \omega_s$ . Соотношения между комплексными величинами  $\chi_a$  и  $\chi_s$  обсуждались в гл. 2.

Система двух уравнений для связанных волн может быть теперь записана в виде

$$\nabla^2 E_s - \frac{\epsilon_s}{c^2} \frac{\partial^2 E_s}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \{(\chi_s + \chi_{NR}) |E_L|^2 E_s + [(\chi_a^* \chi_s)^{\frac{1}{2}} + \chi_{NR}] E_L^2 E_a^*\}, \quad (4.77)$$

$$\nabla^2 E_a^* - \frac{\epsilon_a^*}{c^2} \frac{\partial^2 E_a^*}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \{[(\chi_a^* \chi_s)^{\frac{1}{2}} + \chi_{NR}] E_L^{*2} E_s + (\chi_a^* + \chi_{NR}) |E_L|^2 E_a^*\}. \quad (4.78)$$

Поле накачки представим в виде

$$E_L = 2 \operatorname{Re} (E_L e^{i k_L \cdot r - i \omega_L t}).$$

Как и прежде, решения можно искать в виде плоских волн, у которых плоскости постоянных амплитуд параллельны границе раздела линейной и нелинейной сред. Поэтому решения записываем в виде (амплитуды считаются постоянными)

$$E_s(\mathbf{r}, t) = E_s e^{i k_{xs} x + i k_{ys} y + i k_{zs} z} e^{-i \omega_s t}, \quad (4.79)$$

$$E_a^*(\mathbf{r}, t) = E_a^* e^{-i(2k_{xL} - k_{xs})x - i(2k_{yL} - k_{ys})y} \times e^{-i(2k_{zL} - k_{zs})z} e^{i(2\omega_L - \omega_s)t}. \quad (4.80)$$

Подстановка этих решений в волновые уравнения (4.77) и (4.78) сводит последние к двум однородным алгебраическим уравнениям. Определитель этой системы должен быть равен нулю. Для каждого набора значений  $k_{xs}$ ,  $k_{ys}$  и  $\omega_s$  получается уравнение четвертой степени для  $k_{zs}$ . Отрицательная мнимая часть корня  $k_{zs}$  соответствует усилению. Задача состоит в том, чтобы определить, как величина этого усиления изменяется в функции танген-

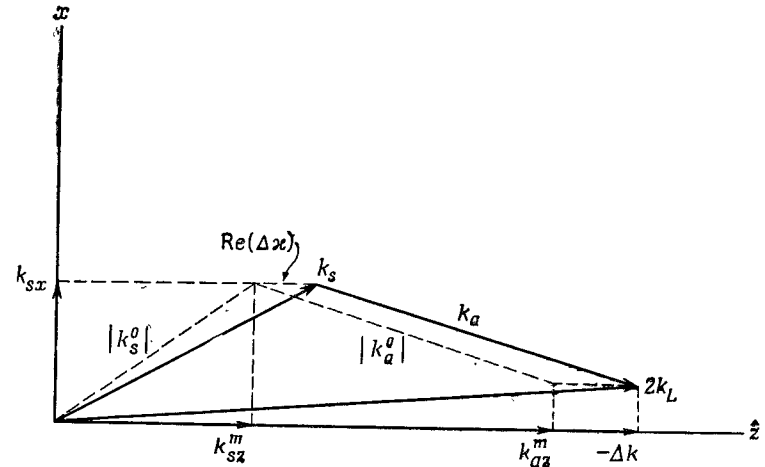
циальных компонент, определяющих направление выходящей волны, и частоты  $\omega_s$ . Следует помнить, что поведение величин  $\chi_s$  и  $\chi_a$  вблизи частот  $\omega_L - \omega_s = \omega_v$  и  $\omega_a - \omega_L = \omega_v$  соответственно носит резонансный характер.

Введем волновые векторы для линейной среды в отсутствие накачки  $E_L = 0$ , тогда с учетом линейных потерь в среде имеем

$$\frac{\epsilon_s \omega_s^2}{c^2} \approx (k_s^0)^2 + 2i\alpha_s k_{sz}^m, \quad (4.81)$$

$$\frac{\epsilon_a^* \omega_a^2}{c^2} \approx (k_a^0)^2 - 2i\alpha_a k_{az}^m. \quad (4.82)$$

Определенные таким образом коэффициенты поглощения оказываются соответственно в  $(\cos\theta_s)^{-1}$  и  $(\cos\theta_a)^{-1}$  раз большими, чем измеренные вдоль направления распро-



Фиг. 18. Геометрические соотношения между волновыми векторами стоксовой и антистоксовой волн и волны лазера. Величина  $\Delta k$  характеризует рассогласование фазовых скоростей в направлении нормали к границе нелинейной среды.



странения волны. Далее, введем  $z$ -компоненты для тангенциальных компонент волновых векторов в отсутствие поля накачки:

$$k_{sz}^m = [(k_s^0)^2 - k_{sx}^2 - k_{sy}^2]^{\frac{1}{2}}, \quad (4.83)$$

$$k_{az}^m = [(k_a^0)^2 - k_{ax}^2 - k_{ay}^2]^{\frac{1}{2}} = [(k_a^0)^2 - (2k_{Lx} - k_{sx})^2 - (2k_{Ly} - k_{sy})^2]^{\frac{1}{2}}. \quad (4.84)$$

В отсутствие накачки величина рассогласования для волновых векторов в  $z$ -направлении равна (см. фиг. 18)

$$-\Delta k = 2k_{Lz} - k_{sz}^m - k_{az}^m. \quad (4.85)$$

Имея в виду, что решения для  $k_{sz}$  слабо отличаются от величины  $k_{sz}^0$ , введем новую переменную

$$\Delta x = k_{sz} - k_{sz}^m. \quad (4.86)$$

Полагая определитель системы связанных уравнений равным нулю, получаем для  $\Delta x$  уравнение четвертой степени

$$\left\{ \begin{aligned} & [2k_{sz}^m (\Delta x - i\alpha_s) + \left\{ -\frac{4\pi}{c^2} \omega_s^2 [(\chi_a^* \chi_s)^{1/2} + \chi_{NR}] E_L^2 \right\}] \\ & + (\Delta x)^2 - \frac{4\pi \omega_s^2}{c^2} \times \\ & \times (\chi_s + \chi_{NR}) |E_L|^2 \quad \left[ -2k_{az}^m (\Delta x + \Delta k - i\alpha_s) + \right. \\ & \left. + (\Delta k + \Delta x)^2 - \right. \\ & \left. \left\{ -\frac{4\pi \omega_a^2}{c^2} [(\chi_a^* \chi_s)^{1/2} + \right. \right. \\ & \left. \left. + \chi_{NR}] E_L^{*2} \right\} \right] - \frac{4\pi \omega_a^2}{c^2} (\chi_a^* + \chi_{NR}) |E_L|^2 \end{aligned} \right\} = 0. \quad (4.87)$$

Рассмотрим прежде всего случай  $\Delta k = 0$ , соответствующий точному согласованию фазовых скоростей для линейной среды,  $2k_L - k_s - k_a = 0$ . В случае равных линейных потерь,  $\alpha_a = \alpha_s = \alpha_{sa}$ , пренебрегая дисперсией комбинационной восприимчивости  $\chi_a^* \approx \chi_s$ , получаем двойной корень  $\Delta x = i\alpha_{sa}$ . Это означает, что в направлениях, для которых условия согласования точно выполнены,

ны, не могут генерироваться ни стоксовы, ни антистоксовы компоненты. Этот несколько неожиданный результат объясняется тем, что положительная работа, произведенная нормальным колебанием вблизи частоты  $\omega_s$ , точно компенсируется отрицательной работой, произведенной вблизи частоты  $\omega_a$ . Такая ситуация хорошо известна в теории параметрических усилителей, где не может быть получено усиление на частоте  $\omega_s = \omega_L - \omega_i$ , если не подавлена боковая частота  $\omega_L + \omega_i$ .

Пренебрегая членами  $(\Delta x)^2$  и  $(\Delta k + \Delta x)^2$ , приводим уравнение четвертой степени к квадратному уравнению. Такое приближение оправдано, поскольку  $|\Delta k| \ll k_{az}$  и поскольку интерес представляют лишь те решения, для которых  $|\Delta x| \ll k_{sz}$ . Два отброшенных корня соответствуют обратным бегущим волнам. Полученное квадратное уравнение можно записать в виде

$$(\Delta x - \lambda_{ss}) (\Delta x - \lambda_{aa}) - \lambda_{as} \lambda_{sa} = 0, \quad (4.88)$$

где

$$\lambda_{ss} = i\alpha_s + \frac{2\pi \omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} (\chi_s + \chi_{NR}) |E_L|^2,$$

$$\lambda_{aa} = -\Delta k + i\alpha_a - \frac{2\pi \omega_a^2}{c^2 k_{az}^m} (\chi_a^* + \chi_{NR}) |E_L|^2,$$

$$\lambda_{as} \lambda_{sa} = -\frac{4\pi^2 \omega_s^2 \omega_a^2}{c^4 k_{sz}^m k_{az}^m} [(\chi_a^* \chi_s)^{1/2} + \chi_{NR}]^2 |E_L|^4.$$

Точно такое же квадратное уравнение можно получить, исходя из уравнений для связанных волн [25].

Корни уравнения (4.88) можно, конечно, записать в самом общем виде. В действительности же наибольший интерес представляет случай равных коэффициентов потерь,  $\alpha_s = \alpha_a = \alpha_{sa}$ , и пренебрежимой дисперсии комбинационного рассеяния,  $\chi_s \omega_s^2 / k_{sz}^m = \chi_a^* \omega_a^2 / k_{az}^m$ . В этом случае после алгебраических упрощений для корней уравнения имеем

$$\Delta x = i\alpha_{sa} - \frac{1}{2} \Delta k \pm \left[ \frac{1}{4} \Delta k^2 + \frac{2\pi \omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} (\chi_s + \chi_{NR}) |E_L|^2 \Delta k \right]^{1/2}. \quad (4.89)$$

При  $\Delta k = 0$  оба корня равны  $i\alpha_{sa}$ ; они описывают затухание обеих волн. Если же величина  $\Delta k$  велика, квадратный корень в (4.89) можно разложить в ряд; в этом случае имеем

$$\Delta\chi_s = i\alpha_{sa} + \frac{2\pi\omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} (\chi_s + \chi_{NR}) |E_L|^2 - \left( \frac{2\pi\omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} \right)^2 (\chi_s + \chi_{NR})^2 |E_L|^4 \Delta k^{-1}, \quad (4.90)$$

$$\Delta\chi_a = i\alpha_{sa} - \Delta k - \frac{2\pi\omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} (\chi_s + \chi_{NR}) |E_L|^2 + \dots \quad (4.91)$$

Первый корень  $\Delta\chi_s$  соответствует, очевидно, стоксовой волне. Мнимая часть величины  $\chi_s$  отрицательна, и волна усиливается, если величина  $\alpha_{sa}$  не слишком велика. В пределе при

$$\Delta k \gg \frac{2\pi\omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} \chi_s |E_L|^2$$

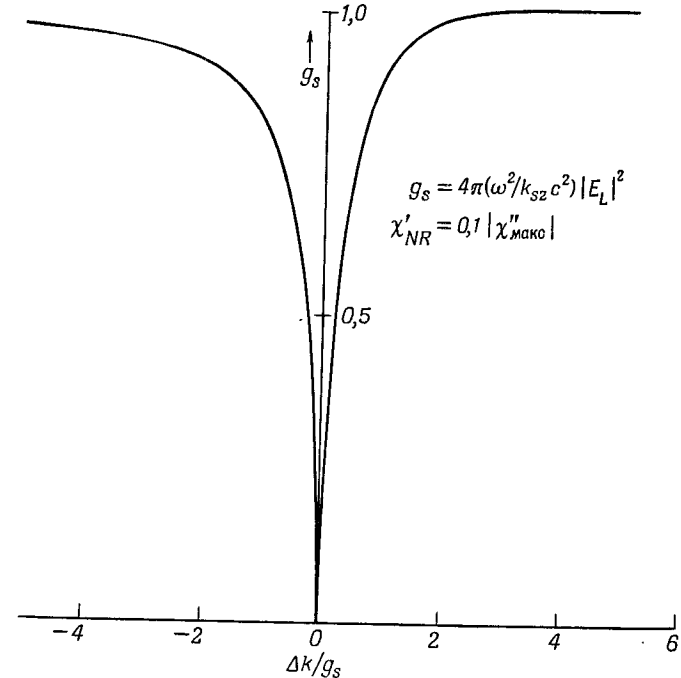
это совпадает с фактором нарастания стоксовой волны, вычисленным ранее [см. (4.68)]. Другой корень соответствует почти чисто антистоксовой затухающей волне.

Подставляя выражение (4.90) для собственного значения  $\Delta\chi_s$  в уравнения связанных волн, находим, что отношение интенсивностей антистоксовой и стоксовой компонент равно

$$\frac{|E_{as}|^2}{|E_s|^2} = \left( \frac{2\pi\omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} \right)^2 |\chi_s + \chi_{NR}|^2 |E_L|^4 \Delta k^{-2} \ll 1. \quad (4.92)$$

При малых  $\Delta k$  это приближение теряет силу. Вблизи направления, на котором фазовые скорости согласованы, связь стоксовой и антистоксовой компонент оказывается весьма сильной. Эта связь характеризуется соотношением (4.89). Так как оно содержит корень квадратный из комплексной величины, проследить поведение усиления, соответствующего мнимой части квадратного корня, довольно затруднительно. Для каждого значения  $\Delta k$ , т. е.

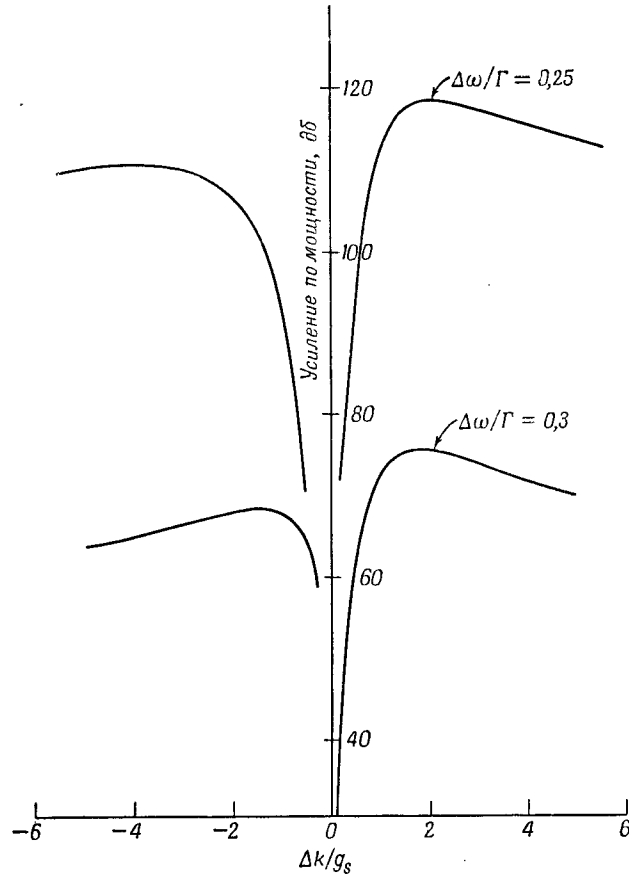
для каждого значения поперечной компоненты  $(k_{sx}^2 + k_{sy}^2)^{1/2}$ , можно найти зависимость коэффициента усиления от частоты  $\omega_s$ . Резонансная часть восприимчивости  $\chi_s$  является, конечно, быстро изменяющейся функцией частоты  $\omega_s$ . Ее действительная и мнимая части показаны на фиг. 6.



Фиг. 19. Зависимость коэффициента нарастания для связанных стоксовой и антистоксовой волн от рассогласования  $\Delta k$  в направлении оси  $z$ .

Кривые нормированы к величине  $g_s$  — коэффициенту нарастания для стоксовой компоненты, направление распространения которой отлично от направления полного согласования.

Зависимость коэффициента нарастания от величины  $\Delta k$  иллюстрируется фиг. 19; усиление резко падает до нуля в области точного согласования фазовых скоростей ( $\Delta k = 0$ ). Асимметрия кривой вызвана нерезонансным



Фиг. 20. Зависимость коэффициента усиления по мощности для антистоксовой волны от нормированного расогласования в направлении оси  $z$ ,  $\Delta k/g_s$ , где  $g_s = 4\pi(\omega/c^2 k_{sz}^m) \chi_s'' |E_L|^2$ .

Для каждого значения  $\Delta k$  направление излучения на выходе кюветы с рассеивающей средой может быть найдено из фиг. 18. Для каждого направления наблюдения существует расстройка  $\Delta\omega = \omega - \omega_L + \omega_{\sigma}$ , для которой усиление максимально. Асимметрия кривых относительно значения  $\Delta k = 0$  имеет место из-за нерезонансной части восприимчивости,  $|\chi_{NR}'/\chi_{s \text{ макс}}''| = 0,1$ .

членом. При расчете кривых было принято  $\chi_{NR} > 0$  и  $|\chi_{NR}'/\chi_{s \text{ макс}}''| = 0,1$ . Если принять в расчет распределение мощности в волне между стоксовой и антистоксовой компонентами, то усиление антистоксовой компоненты как функция рассогласования фазовых скоростей будет иметь другой вид. На фиг. 20 приведены результаты расчета этой функции на вычислительной машине. Для каждого значения  $\Delta k$  смещение частоты  $\Delta\omega$  выбиралось так, чтобы получить максимальное усиление. В этом примере для максимума усиления антистоксовой волны находим  $\Delta\omega \approx 0,3$  Г. Вообще говоря, можно ожидать, что усиление будет иметь место в полосе порядка  $0,5\Gamma/2\pi$ .

На кривых фиг. 19 и 20 величина  $\Delta k$  нормирована на величину коэффициента нарастания по мощности стоксовой волны

$$g_s = \frac{4\pi\omega_s^2}{c^2 k_{sz}^m} \chi_s'' |E_L|^2$$

[см. формулу (4.68)]. Максимум усиления на фиг. 20 соответствует величине  $\Delta k/g_s = 2$ . Направление распространения волны, соответствующее данному значению  $\Delta k$ , находится из формул (4.83) — (4.85). Геометрические соотношения представлены на фиг. 18. Геометрическая диаграмма полностью определяется заданием тангенциальных компонент  $k_s^0$ ,  $k_a^0$  и волнового вектора  $\mathbf{k}_L$ . Заданное значение  $\Delta k$  может быть связано таким образом с поперечными компонентами импульса. Следовательно, может быть определено и отклонение направления максимального усиления от направления  $\theta_0$ , соответствующего точному согласованию фазовых скоростей, поскольку тангенциальные компоненты импульсов на границе определяют направление луча вне нелинейной среды.

Итак, порог вынужденного рассеяния является функцией направления. Правда, при наблюдении комбинационного рассеяния в кюветках, длина которых много больше диаметра луча, геометрические факторы играют доминирующую роль. Однако даже для идеализированного случая бесконечно протяженных плоских волн имеет место резкое возрастание порога вблизи направ-

ления полного согласования фазовых скоростей. Точно в этом направлении порог равен бесконечности; поэтому в направленном интенсивном излучении стоксовой компоненты будет наблюдаться темное кольцо, определяемое направлением точного согласования фазовых скоростей. Одновременно возникает яркое кольцо (возможно два, если величина  $\chi_{NR}$  весьма мала) для антистоксовой компоненты в направлениях, смещенных от направления точного согласования. Лишь небольшая часть интенсивности в других направлениях соответствует антистоксовой компоненте. Отношение интенсивности антистоксовой и стоксовой компонент определяется формулой (4.92).

Подчеркнем, что все эти результаты получены для случая, когда излучение на частотах  $\omega_L \pm l\omega_v$  при  $l \geq 2$  подавлено, а поле накачки можно рассматривать как заданное. Однако ни одно из этих условий в экспериментах по вынужденному комбинационному рассеянию обычно не выполняется; сравнение результатов теории с экспериментом мы отложим до следующей главы.

Представляет также интерес теория усилителя, использующего эффект вынужденного комбинационного рассеяния. В этом случае, кроме луча лазера, на нелинейную среду падает внешнее излучение с частотой либо  $\omega_s$ , либо  $\omega_a$ . Направление падающего луча, например, с частотой  $\omega_s$

$$E_s^{\text{пад}} \exp(ik_s^i \cdot \mathbf{r} - i\omega_s t)$$

определяется тангенциальными компонентами волнового вектора. Следовательно, величина  $\Delta k$  определена. Теперь следует взять подходящую линейную комбинацию волн, соответствующих этому значению  $\Delta k$  и частоте  $\omega_s$ , которая удовлетворяет граничным условиям.

Обозначим два корня через  $\Delta x_1$  и  $\Delta x_2$ ; соответствующие собственные функции равны

$$A_1 [c_{1s} e^{i(k_{sz}^m + \Delta x_1)z} + c_{1a}^* e^{-i(k_{az}^m - \Delta k - \Delta x_1)z}], \quad (4.93)$$

$$A_2 [c_{2s} e^{i(k_{sz}^m + \Delta x_2)z} + c_{2a}^* e^{-i(k_{az}^m - \Delta k - \Delta x_2)z}]. \quad (4.94)$$

Комплексные собственные векторы нормированы

$$|c_{1s}|^2 + |c_{1a}|^2 = 1, \quad |c_{2s}|^2 + |c_{2a}|^2 = 1,$$

где

$$\frac{c_{1s}}{c_{1a}^*} = \frac{E_{s,1}}{E_{a,1}^*} = f(\Delta x_1), \quad \frac{c_{2s}}{c_{2a}^*} = \frac{E_{s,2}}{E_{a,2}^*} = f(\Delta x_2).$$

Зависимости функций от  $x$ ,  $y$ ,  $z$  опущены, так как они полностью определяются формулой (4.80).

Амплитуды собственных мод определяются теперь граничными условиями при  $z = 0$ , а полное решение будет дополнительно включать две отраженные волны с частотами  $\omega_s$  и  $\omega_a$  соответственно. Это дает четыре амплитуды, определяемые из условия непрерывности тангенциальных компонент векторов  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  раздельно на частотах  $\omega_s$  и  $\omega_a$ . Из расчетов § 1 настоящей главы следует, что амплитуды отраженных волн весьма малы, поэтому для приближенного определения величин  $A_1$  и  $A_2$  можно использовать следующие два уравнения:

$$c_{1s}A_1 + c_{2s}A_2 = E_s^{\text{пад}}, \quad c_{1a}A_1 + c_{2a}A_2 = 0. \quad (4.95)$$

Второе граничное условие будет ниже несколько модифицировано. После подстановки амплитуд в (4.93) и (4.94) находим, что решения для стоксовой и антистоксовой компонент являются линейными комбинациями двух экспонент. Исключая случай распространения в направлении точного согласования, одна из этих волн будет экспоненциально усиливаться. Для достаточно больших расстояний  $z$  остается только это решение. Направление, в котором энергия стоксовой компоненты выходит из плоскопараллельной кюветы с рассеивающей средой, параллельно конечно направлению падающего луча. Выходящее же из кюветы излучение антистоксовой компоненты распространяется, вообще говоря, в другом направлении, определяемом тангенциальными компонентами его волновых векторов.

Для весьма малых значений  $z$  амплитуда антистоксовой компоненты пропорциональна  $z$ , что согласуется с общими соотношениями § 1. Разлагая экспоненту в ряд для случая  $|\Delta x_s| \ll 1$ , имеем

$$E_a = i_i(c_{1a}A_1\Delta x_1 + c_{2a}A_2\Delta x_2)z e^{ik_{az}^0}. \quad (4.96)$$

Направлению точного согласования соответствуют два корня с решениями, затухающими по экспоненциальному закону. Для условий, при которых выведена формула (4.89), эти корни равны,  $\Delta k_1 = \Delta k_2 = i\alpha_{sa}$ . В этом вырожденном случае уравнения (4.93) и (4.94) не являются линейно независимыми, и амплитуда  $E_a$  в соответствии с уравнением (4.96) тождественно равна нулю. Правильное решение принимает тогда следующую форму:

$$\lim_{\Delta k_1 \rightarrow \Delta k_2} E_a = -A_2 z e^{ik_{az}^0 z - \alpha_{sa} z^2}. \quad (4.97)$$

Значение производной  $dE_a/dz$  для малых  $z$  в этом случае лучше определить из соотношений § 1. Для малых  $z$  решение должно переходить в формулу (4.12). В действительности, для случая  $\Delta k_1 \neq \Delta k_2$  оказывается возможным заменить граничное условие  $c_{1a}A_1 + c_{2a}A_2 = 0$  [см. уравнения (4.95)] условием того, что выражение  $i(c_{1a}A_1\Delta k_1 + c_{2a}A_2\Delta k_2)z$  соответствует нарастанию, описываемому формулой (4.12).

На этом мы заканчиваем изложение теории связанных волн. Возникающие здесь задачи не ограничиваются, конечно, взаимодействиями световых или акустических волн. Подобным же образом могут быть рассмотрены взаимодействия между световыми и спиновыми волнами. Заметим, что параметрическое взаимодействие связанных спиновых волн рассматривалось Сулом и Тьеном еще до появления нелинейной оптики [28]. Во многом аналогичные явления наблюдаются и при взаимодействии электромагнитных волн с волнами плотности и скорости электронов в лампе с бегущей волной [29]. Читатель, знакомый с теорией параметрических усилителей, встретился в этой главе с множеством знакомых ему фактов. Наиболее интересными новыми аспектами, присущими нелинейным взаимодействиям световых волн, являются трехмерный характер взаимодействий и специфические дисперсионные характеристики. В гл. 5 мы займемся сравнением теоретических результатов с экспериментальными данными.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Bloembergen N., Pershan P. S., Phys. Rev., **128**, 606 (1962). (См. приложение II к настоящей книге.)
2. Ducuing J., Bloembergen N., Phys. Rev. Lett., **10**, 474 (1963).
3. Bloembergen N., Ducuing J., Phys. Lett., **6**, 5 (1963).
4. Kronig R., Boukema J. I., Proc. Roy. Neth. Acad. (Amsterdam), **66B**, 8 (1963).
5. Terhune R. W., Maker P. D., Savage C. M., Appl. Phys. Lett., **2**, 54 (1963).
6. Shiren N. S., Appl. Phys. Lett., **4**, 82 (1964).
7. Ziman J. M., Electrons and Phonons, Oxford, 1960, Ch. 3. (Имеется перевод: Дж. Займан, Электроны и фононы, ИЛ, 1962.)
8. Born M., Huang K., Dynamical Theory of Crystal Lattices, Oxford, 1954. (Имеется перевод: М. Борн, Хуан Кунь, Динамическая теория кристаллических решеток, ИЛ, 1958.)
9. Kingston R. H., Proc. IRE, **50**, 472 (1962).
10. Kroll N. M., Phys. Rev., **127**, 1207 (1962).
11. Kroll N. M., Journ. Appl. Phys., **36**, 34 (1965).
12. Chiao R., Townes C. H., Stoicheff B., Phys. Rev. Lett., **12**, 592 (1964).
13. Chiao R., Garmire E., Townes C. H., Rendiconti S. I. F. Corso 22, August 1963, New York, 1964.
14. Hellwarth R. W., Phys. Rev., **130**, 1850 (1963).
15. Zeiger H. J., Tannenwald P. E., Proceedings 3rd International Conference on Quantum Electronics, Paris, February 1963, eds. P. Grivet, N. Bloembergen, New York, 1964, p. 1589.
16. Bloembergen N., Proceedings 3rd International Conference on Quantum Electronics, Paris, February, 1963, eds. P. Grivet, N. Bloembergen, New York, 1964, p. 150.
17. Loudon R., Proc. Phys. Soc., **A82**, 393 (1963).
18. Loudon R., Proc. Roy. Soc., **A275**, 218 (1963).
19. Terhune R. W., Solid State Design, **4**, 38 (November 1963).
20. Garmire E., Pandarese E., Townes C. H., Phys. Rev. Lett., **11**, 160 (1963).
21. Javan A., Rendiconti S. I. F. Corso 22, August 1963, New York, 1964.
22. Hellwarth R. W., Appl. Optics, **2**, 847 (1963).
23. Hellwarth R. W., Current Sci. (India), **33**, 129 (1964).
24. Zeiger H. J., Tannenwald P. E., Kern S., Herendeen R., Phys. Rev. Lett., **11**, 419 (1963).
25. Bloembergen N., Shen Y. R., Phys. Rev. Lett., **12**, 504 (1964).
26. Eckhardt G., Hellwarth R. W., McClung F. J., Schwarz S. E., Weiner D., Phys. Rev. Lett., **9**, 455 (1962).
27. Terhune R. W., Bull. Am. Phys. Soc., **II**, 8, 359 (1963).
28. Tien P. K., Suhl H., Proc. IRE, **46**, 700 (1958).
29. Pierce J. R., Traveling-Wave Tubes, New York, 1950. (Имеется перевод: Д. Пирс, Лампа с бегущей волной, М., 1955.)

30. Siegman A. E., Quate C. F., Bjorkholm J., Francois G., Appl. Phys. Lett., **5**, 1 (1964).
- 31\*. Kingston R., McWhorter A., Proc. IEEE, **53**, № 1, 4 (1965).
- 32\*. Ахманов С. А., Дмитриев В. Г., Моденов В. П., Радиотехника и электроника, **10**, 649 (1965).
- 33\*. Kleinman D., Phys. Rev., **128**, 1761 (1962).
- 34\*. Фабелинский И. Л., Усп. физич. наук, **63**, № 2, 356 (1957).
- 35\*. Фабелинский И. Л., Молекулярное рассеяние света, М., 1965.
- 36\*. Giordmaine J. A., Miller R., Phys. Rev. Lett, **14**, 973 (1965).
- 37\*. Ахманов С. А., Ковригин А. И., Пискараскас А. С., Фадеев В. В., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, письма в редакцию, **2**, № 7 (1965).
- 38\*. Ахманов С. А., Хохлов Р. В., Проблемы нелинейной оптики, М., 1964.
- 39\*. Hsu H., Kavage W., Phys. Lett., **15**, 207 (1965).
- 40\*. Loudon R., Advances in Physics, October 1964.
- 41\*. Платоненко В. Т., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, **46**, 555 (1964).
- 42\*. Платоненко В. Т., Хохлов Р. В., Оптика и спектроскопия, **18**, № 3, 369 (1965).

## ДОПОЛНИТЕЛЬНАЯ ЛИТЕРАТУРА

- 43\*. Луговой В. Н., Препринт ФИАН, А-60 (1965).  
Излучение стоксовых и антистоксовых компонент произвольных порядков при вынужденном комбинационном рассеянии.
- 44\*. Луговой В. Н., ЖЭТФ, **48**, 1216 (1965).  
О вынужденном комбинационном рассеянии в антистоксовой области.
- 45\*. Файн В. М., Яшин Э. Г., ЖЭТФ, **46**, 695 (1964).  
К теории индуцированного комбинационного излучения.
- 46\*. Зубов В. А., Сущинский М. М., Шувалов И. К., Усп. физич. наук, **83**, № 2, 197 (1964).  
Стимулированное комбинационное рассеяние света.
- 47\*. Степанов Б. И., Апанасевич П. А., Журн. прикл. спектр., **2**, № 1, 37 (1965).  
Вынужденное комбинационное рассеяние внутри резонатора первичного ОКГ.
- 48\*. Апанасевич П. А., Степанов Б. И., Журн. прикл. спектр., **1**, № 3 (1964).  
Влияние вынужденного комбинационного рассеяния на интенсивность и спектральный состав рассеянного излучения.
- 49\*. Хронопуло Ю. Г., Изв. ВУЗ'ов, Радиофизика, **7**, № 4, 674 (1964).  
К теории комбинационного излучения в сильных полях.

- 50\*. Tang C., Deutsch T., Phys. Rev., **138**, № 1A, A1 (1965).  
Generation of antistokes radiation in the higher order coherent Raman processes.
- 51\*. Haus H., Kelley P., Zeiger H., Phys. Rev., **138**, A690 (1965).  
Generation of stokes and antistokes radiation in Raman media.
- 52\*. Марушко И. А., Машкевич В. С., Укр. физич. журн., **10**, № 3, 321 (1965).  
Генерация второй оптической гармоники в резонаторе лазера.
- 53\*. Bloembergen N., Shen Y. R., Phys. Rev., **137**, № 6A, 1787 (1965).  
Theory of stimulated Brillouin and Raman scattering.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

### § 1. Экспериментальная проверка законов нелинейного взаимодействия световых волн в объеме и на поверхности нелинейной среды

Все эксперименты по параметрическим взаимодействиям световых волн, выполненные до настоящего времени, достаточно хорошо описываются соотношениями, приведенными в гл. 4, § 1 и 2. Наиболее тщательную проверку теории позволили осуществить эксперименты по генерации второй световой гармоники в пьезоэлектрических кристаллах. Франкен в своем первом эксперименте [1] фокусировал луч рубинового лазера с длиной волны 6943 Å в кристалл кварца в пятно диаметром около 1 мм. Энергия лазерного импульса равнялась приблизительно 3 дж, длительность составляла около  $10^{-3}$  сек. Излучение, выходящее из кварца, регистрировалось с помощью кварцевого спектрографа на фотопленке, нечувствительной к красному свету. Оценки показали, что около  $10^{11}$  от общего числа фотонов, имевшихся в импульсе, преобразовывалось в кванты ультрафиолетового излучения с длиной волны 3471 Å. Эксперименты, выполненные позже с использованием дифракционных решеток, подтвердили, что генерируемая частота равна удвоенной частоте излучения рубинового лазера с точностью до  $10^{-5}$ . В этих экспериментах производилось сравнение дифракционного спектра первого порядка ультрафиолетового излучения с дифракционным спектром второго порядка излучения рубина, причем оба спектра получались во время одной и той же экспозиции<sup>1)</sup>.

Результаты первых экспериментов, описанных в гл. 1, хорошо согласуются с формулами (4.12) и (4.13). В частности, результаты опытов по генерации второй гар-

моники света в плоскопараллельной пластинке с изменяющейся оптической толщиной, которые представлены графически на фиг. 2, описываются формулой (4.13). Величина, характеризующая рассогласование фазовых скоростей,  $\varepsilon^{1/2}(2\omega) - \varepsilon^{1/2}(\omega)$ , определяется из расстояния между максимумами, а их высота позволяет найти величину нелинейной восприимчивости. Схема опыта, приведенная на фиг. 1, обычно используется при определении нелинейных восприимчивостей; соответствующий расчет выполняется по формуле (4.13).

Джордмейн [2], а также Мейкер и др. [3] одновременно указали на то, что в отрицательном одноосном кристалле с достаточно большим двойным лучепреломлением фазовая скорость обыкновенной волны основной частоты совпадает с фазовой скоростью необыкновенной волны удвоенной частоты при условии, что световые волны идут в некотором определенном направлении по отношению к оптической оси. В дигидрофосфате калия  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  (KDP) это происходит тогда, когда луч рубинового лазера, имеющий длину волны 6940 Å и поляризованный перпендикулярно к оптической оси, образует с ней угол в  $49,8 \pm 0,5^\circ$ . Использование этого обстоятельства позволяет увеличить интенсивность второй гармоники на много порядков. При точном согласовании фазовых скоростей интенсивность пропорциональна квадрату длины кристалла, как это следует из соотношения (4.12). Однако задача сохранения согласования фазовых скоростей на больших длинах оказывается сложной в связи с тем, что луч рубинового лазера обычно содержит много продольных и поперечных мод. Поэтому для повышения интенсивности гармоники выгодно фокусировать лазерный луч. Вследствие возрастания интенсивности в фокусе уменьшается характеристическая длина нелинейного взаимодействия, которая определяется выражением (4.35). Терхьюн, Мейкер и Сэвидж [4] использовали линзу с фокусным расстоянием 25 см для фокусировки излучения лазера с модулируемой добротностью, который давал около 0,1 дж за  $20 \cdot 10^{-9}$  сек, в кристалл  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  (ADP). Они смогли преобразовать во вторую гармонику более 20% излучения рубинового лазера и наблюдали

<sup>1)</sup> Более подробные данные, полученные в этих опытах, можно найти в [53\*, 54\*]. — Прим. ред.

уменьшение интенсивности волны основного излучения, описываемое соотношением (4.34). Интересно заметить, что в этом эксперименте не удавалось использовать KDP. Край полосы ультрафиолетового поглощения находится в KDP вблизи от частоты третьей гармоники рубинового лазера, и поэтому трехфотонное поглощение разрушало этот кристалл, тогда как в ADP, полоса поглощения которого смещена дальше в ультрафиолетовую область, излучение той же интенсивности не приводило к повреждениям.

### ГЕОМЕТРИЧЕСКИЕ СООБРАЖЕНИЯ

Идеальный фокус луча, обладающего дифракционной расходимостью, характеризуется величиной

$$f = \beta^{-1} = \frac{nl_f}{d},$$

где  $l_f$  — фокусная длина в вакууме,  $d$  — диаметр луча,  $n$  — показатель преломления среды, в которой находится фокус,  $\beta$  — полный угол при вершине конуса света, выходящего из фокуса. Дифракционная теория идеального фокуса для  $f \gg 1$  подробно изложена в книге [5]. Поле излучения в зоне высокой интенсивности вблизи фокуса можно приближенно описать с помощью плоской волны, распространяющейся в цилиндрической области длиной

$$\xi = \frac{8f^2\lambda_0}{n} \quad (5.1)$$

и диаметром

$$\delta = \frac{2\lambda_0 f}{n}. \quad (5.2)$$

Длина волны в этой области уменьшается в  $[1 - (4f)^{-2}]$  раз.

Плотность потока мощности в фокусе увеличивается в  $(d/\delta)^2$  раз. Ясно, что в реальных условиях такого увеличения не получается, так как расходимость луча лазера превышает дифракционную. Примем, что расходимость несфокусированного луча составляет  $4 \cdot 10^{-3}$  рад. В таком случае диаметр луча света в фокусе при  $l_f = 25$  см будет равен 0,1 см. Эта величина в десять раз меньше диаметра поперечного сечения несфокуси-

ванного луча, равного примерно 1 см. Плотность потока мощности в фокусе приблизительно в 100 раз больше, чем в несфокусированном луче и составляет около  $500 \text{ Мвт/см}^2$ . Тогда в соответствии с формулой (4.35) характеристическая длина нелинейного взаимодействия будет порядка 2 мм. Это значение примерно вдвое превышает длину фокальной области  $\xi$ . Соотношение (4.34) дает при этом для коэффициента преобразования на длине  $\xi$  приблизительно ту величину, которая наблюдается экспериментально. Вместе с тем следует иметь в виду, что формулы (4.33) и (4.34), вообще говоря, неприменимы для оценки реальных экспериментальных ситуаций. Подробная картина структуры мод в луче лазера и в фокусе неизвестна. Интенсивность распределена неравномерно по поперечному сечению луча. В сложной структуре лазерного луча существуют узкие пучки, которые преобразуются в гармонику почти полностью; вместе с тем, особенно в периферических частях луча, существуют пучки, которые слабо преобразуются или вообще остаются не преобразованными. Эта ситуация осложняется анизотропией среды. Не для всех направлений в луче конечной расходимости выполняется условие точного согласования фазовых скоростей<sup>1)</sup>.

Клейнман [6] теоретически исследовал генерацию второй гармоники в одноосных кристаллах, когда на них падают пучки конечной расходимости, а не плоские волны с бесконечно большим поперечным сечением. Примем, что интенсивность излучения основной частоты равномерно распределена по углам в малом интервале  $\Delta\theta$  вокруг направления точного согласования фазовых скоростей  $\theta_0$ . Угловое распределение интенсивности излучения второй

<sup>1)</sup> Теория генерации гармоник в фокусе, развитая с учетом дифракционных эффектов, показывает, что учет явлений лишь в области, описываемой формулами (5.1) и (5.2), достаточен только для случая фокусировки длиннофокусной линзой ( $\xi > L$ , где  $L$  — длина нелинейного кристалла). Энергетический выигрыш за счет фокусировки максимален при  $\xi \approx L$ ; однако если угол анизотропии в нелинейном кристалле не слишком мал, имеет смысл фокусировать лишь те пучки, расходимость которых превышает дифракционную. При  $\xi < L$  определенный вклад в интенсивность гармоники дают околофокальные области, где волна уже не может считаться плоской. Более подробное рассмотрение см. в [55\*, 93\*]. — *Прим. ред.*



гармоники, генерируемой в плоско-параллельной пластинке толщиной  $z$ , пропорционально значениям функции

$$\sin^2 \{ [n(\theta) - n(\theta_0)] \omega c^{-1} z \} [n(\theta) - n(\theta_0)]^{-2}.$$

Показатель преломления необыкновенного луча  $n$  является функцией угла  $\theta$ . Полная интенсивность второй гармоники, усредненная по всем направлениям, пропорциональна интегралу

$$\frac{1}{\Delta\theta} \int_{-\frac{1}{2}\Delta\theta}^{\frac{1}{2}\Delta\theta} \frac{\sin^2(\partial n/\partial\theta_0) \omega c^{-1} z\theta}{(\partial n/\partial\theta_0)^2 \theta^2} d\theta. \quad (5.3)$$

При  $(\partial n/\partial\theta_0) \omega c^{-1} z \Delta\theta \ll 1$  этот интеграл можно аппроксимировать выражением  $\omega^2 c^{-2} z^2$ . При  $(\partial n/\partial\theta_0) \omega c^{-1} z \Delta\theta \gg 1$  интеграл можно преобразовать к виду

$$\omega c^{-1} z \left( \frac{\partial n}{\partial\theta_0} \Delta\theta \right)^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} u^{-2} \sin^2 u du = \pi \omega c^{-1} z \left( \frac{\partial n}{\partial\theta_0} \Delta\theta \right)^{-1}.$$

Пользуясь вышеприведенными формулами, можно ввести понятие эффективной когерентной длины нелинейного взаимодействия для пучка с угловой расходимостью  $\Delta\theta$ , распространяющегося вблизи направления точного согласования фазовых скоростей

$$l'_{\text{ког}} = \left( \frac{\partial n}{\partial\theta_0} \omega c^{-1} \Delta\theta \right)^{-1}. \quad (5.4)$$

Для кристалла KDP при  $\lambda = 3470 \text{ \AA}$

$$n^{-2} = 1,534^{-2} \cos^2 \theta + 1,487^{-2} \sin^2 \theta.$$

Угол, соответствующий точному согласованию фазовых скоростей, равен  $\theta_0 = 49,9^\circ$ . Поэтому для  $\partial n/\partial\theta_0 \approx 0,03$  и типичной расходимости луча рубинового лазера  $\Delta\theta = 4 \cdot 10^{-3} \text{ рад}$  получаем, что эффективная длина  $l'_{\text{ког}} = 0,1 \text{ см}$ . При  $z > l'_{\text{ког}}$  интенсивность второй гармоники будет расти уже пропорционально  $z$ , а не  $z^2$ . К счастью, величина  $l'_{\text{ког}}$  оказывается такой же, как глубина фокуса

и характеристическая длина нелинейного взаимодействия, так что предыдущее рассмотрение остается справедливым<sup>1)</sup>.

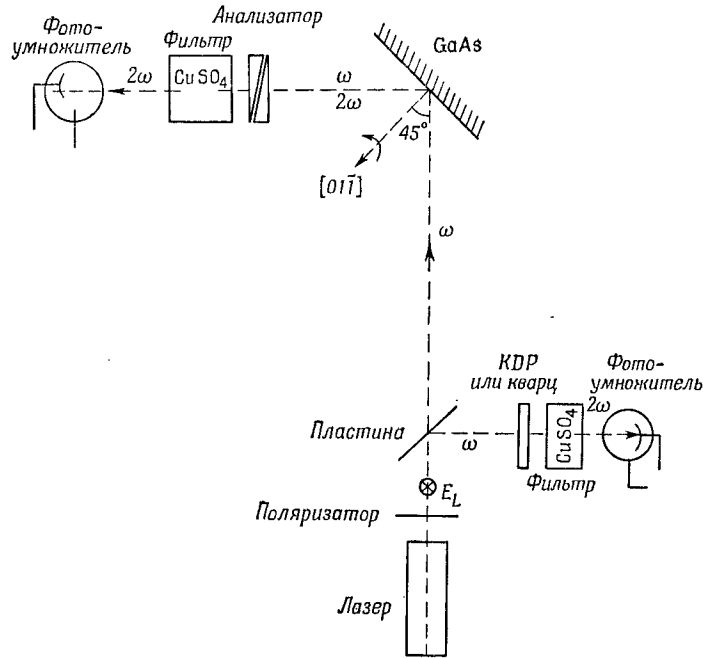
Джордмейн [2] исследовал также генерацию второй гармоники в том случае, когда лучи основной частоты идут не по одному направлению. В треугольнике, образованном волновыми векторами, возможно согласование фазовых скоростей двух обыкновенных лучей основной частоты и одного необыкновенного луча гармоники, идущих в направлениях, близких к  $\theta_0$ . При этом наблюдаются интересные картины распределения интенсивности, которые подтверждают выводы, полученные при теоретическом рассмотрении вопроса о согласовании фазовых скоростей.

#### ВОЗНИКНОВЕНИЕ ВОЛН ГАРМОНИК ПРИ ОТРАЖЕНИИ

Некоторые исследователи наблюдали генерацию второй гармоники при прохождении света через пластину, которая сильно поглощает гармонику, но пропускает волну основной частоты; этот эффект описывается нелинейной поляризацией, входящей в соотношение (4.15).

<sup>1)</sup> Здесь уместно сделать некоторые пояснения. Понятие когерентной длины нелинейного взаимодействия для расходящегося пучка, введенное в этом параграфе, не следует путать с понятием длины когерентного взаимодействия для плоской волны, введенным ранее [см., например, формулу (4.14)]. При этом в обоих случаях рассматриваются строго монохроматические волны, так что фазовые соотношения между основной волной и гармоникой остаются регулярными как для  $l < l_{\text{ког}}$ , так и для  $l > l_{\text{ког}}$ . Когерентная же длина является пространственным масштабом нелинейного взаимодействия, на котором сохраняется определенный закон нарастания интенсивности гармоники с расстоянием. Таким образом, использование термина «когерентный» представляется здесь не совсем удачным, поскольку обычно его связывают со статистикой. Когерентная длина, имеющая статистическую природу, появляется в нелинейной оптике при исследовании нелинейных взаимодействий в статистически неоднородной среде или же при исследовании нелинейных взаимодействий волн с конечной шириной спектра; в этом случае при  $l > l_{\text{ког}}^{\text{стат}}$  корреляция между основным излучением и второй гармоникой ослабляется. — Прим. ред.

Когда среда поглощает и излучение основной частоты и гармонику, генерация второй гармоники возможна только при отражении. Этот эффект впервые наблюдался Дюкуэнгом [7]. Факторы, определяющие направление отраженных лучей гармоники, уже обсуждались в гл. 4, § 1. Поляризация излучения второй гармоники,



Фиг. 21. Схема экспериментальной установки для измерения нелинейной восприимчивости кристалла GaAs методом отражения.

возникающей при отражении света от поверхности кристалла GaAs, измерялась с помощью экспериментальной установки, схема которой приведена на фиг. 21. Тензор третьего ранга  $\chi_{ijk}(2\omega = \omega + \omega)$  в кристаллах класса симметрии  $\bar{4}3m$  имеет следующие отличные от нуля компоненты:

$$\chi_{xyz} = \chi_{zxy} = \chi_{yzx} = \frac{1}{2} \chi_{14}. \quad (5.5)$$

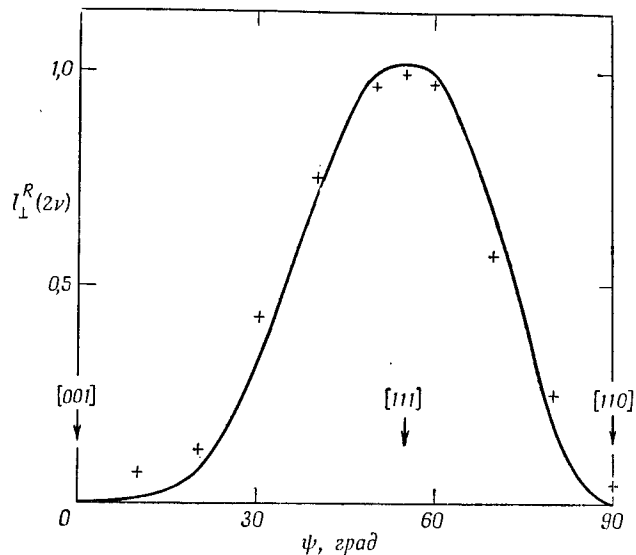
Падающий луч лазера поляризован перпендикулярно плоскости падения. Компоненты нелинейной поляризации по прямоугольным кристаллографическим осям равны

$$\begin{aligned} P_x(2\omega) &= \chi_{14} E_y E_z, \\ P_y(2\omega) &= \chi_{14} E_z E_x, \\ P_z(2\omega) &= \chi_{14} E_x E_y. \end{aligned} \quad (5.6)$$

Если кристалл, являющийся «нелинейным зеркалом», поворачивать вокруг нормали, совпадающей с кристаллографическим направлением  $[01\bar{1}]$ , то поляризацию излучения основной частоты можно сделать параллельной направлениям  $[100]$ ,  $[111]$  и  $[011]$  соответственно. В первом случае  $E_y = E_z = 0$  и поляризация на частоте второй гармоники не возбуждается. При  $\mathbf{E}(\omega)$ , параллельном направлению  $[111]$ ,  $E_x(\omega) = E_y(\omega) = E_z(\omega)$  и из соотношений (5.6) сразу же получается, что и вектор  $\mathbf{P}(2\omega)$  параллелен направлению  $[111]$ . Следовательно, поляризация гармоники, возникающей при отражении, также перпендикулярна плоскости падения. При  $E_x = 0$ ,  $E_y = E_z$  поляризация с частотой гармоники имеет только  $x$ -компоненту. В этом случае вектор  $\mathbf{P}(2\omega)$  составляет прямой угол с поляризацией падающего луча лазера, поэтому поляризация отраженного луча гармоники лежит в плоскости отражения. Сказанное хорошо подтверждается экспериментальными данными, приведенными на фиг. 22 и 23. Экспериментальные значения интенсивности параллельной и перпендикулярной компоненты отраженного излучения второй гармоники сравниваются с теоретическими кривыми, дающими зависимость интенсивности гармоники от угла  $\psi$  между направлением поляризации волны основной частоты и кристаллографической осью  $x$ . Для геометрии фиг. 21 угловая зависимость интенсивности отраженного излучения гармоники для двух поляризаций дается следующими выражениями:

$$I_{\perp}(2\omega) \sim P_{\perp}^2(2\omega) \sim \sin^4 \psi \cos^2 \psi, \quad (5.7)$$

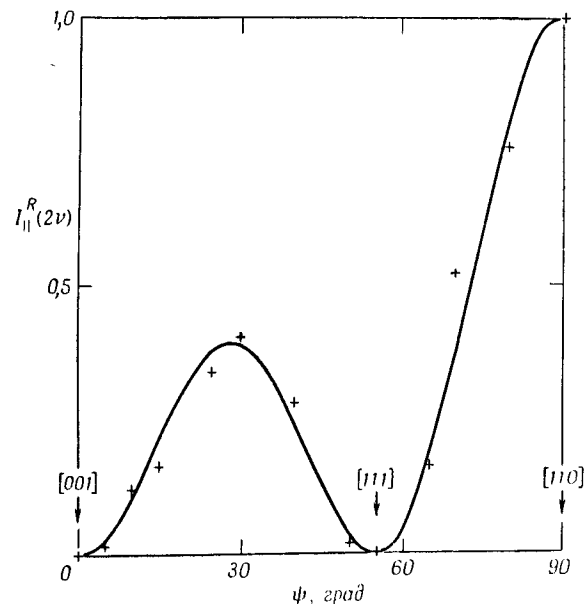
$$I_{\parallel}(2\omega) \sim P_{\parallel}^2(2\omega) \sim \sin^2 \psi (1 - 3 \cos^2 \psi)^2.$$



**Фиг. 22.** Зависимость интенсивности луча второй гармоники, возникающей при отражении от поверхности кристалла GaAs, от угла между плоскостью падения и кристаллографической осью [100].

Волны основной частоты и второй гармоники поляризованы перпендикулярно плоскости падения. Интенсивность отраженного луча измеряется по отношению к интенсивности излучения, возникающего в нелинейном процессе того же порядка в КДР или кварце.

Пластина из GaAs прозрачна для излучения с длиной волны  $\lambda = 1,06 \text{ мк}$ , которое дает лазер на неодимовом стекле. В этом случае можно определить отношение интенсивности отраженного излучения второй гармоники к интенсивности излучения гармоники, прошедшего через пластинку. Согласно (4.8) и (4.15), это отношение не должно зависеть от нелинейной восприимчивости вещества. Указанные выражения действительно дают правильную величину этого отношения, которое экспериментально было определено Дюкуэнгом. Все сказанное можно рассматривать как проверку правильности обобщенных формул Френеля для интенсивности отраженного излучения гармоники.



**Фиг. 23.** Зависимость интенсивности луча второй гармоники, возникающей при отражении от поверхности кристалла GaAs, от угла между плоскостью падения и кристаллографической осью [100].

Луч основной частоты поляризован перпендикулярно плоскости падения, а луч второй гармоники — в плоскости падения.

#### ГЕНЕРАЦИЯ СУММАРНОЙ И РАЗНОСТНОЙ ЧАСТОТ

Франкен и др. [8] первыми получили суммарную частоту при смешении двух лучей света с разными частотами. Они использовали два рубиновых лазера, работавших при различных температурах, вследствие чего их длины волн отличались на 10 Å. В ультрафиолетовом излучении, выходящем из нелинейного кристалла, они действительно наблюдали три частоты: две вторые гармоники и суммарную частоту. Смит и Браслау [9] получили разностную частоту при смешении излучения рубинового лазера с излучением линии 3115 Å, испускаемой ртутным разрядом. Последний источник является «некогерентным», и его излучение должно рассматриваться как суперпозиция

ция большого числа плоских волн. Каждая из них смешивается с излучением лазера и создает излучение разностной частоты с длиной волны вблизи  $\lambda = 5650 \text{ \AA}$ . Смит и Браслау наблюдали также линию суммарной частоты с длиной волны  $3056 \text{ \AA}$ , получившуюся при смешении излучения рубинового лазера и ртутной линии  $5470 \text{ \AA}$ . В экспериментах других авторов были получены также суммарная и разностная частота излучения рубинового и неодимового лазеров. Терхьюн получил частоту  $3\omega$ , удвоив сначала частоту излучения рубинового лазера в KDP, а затем смешав луч с частотой  $2\omega$  и часть луча с частотой  $\omega$  в другом нелинейном кристалле, ориентированном так, чтобы обеспечить согласование фазовых скоростей.

Франкен с сотрудниками [10] наблюдали выпрямление света в KDP, которое можно рассматривать также как биения с нулевой частотой. Соответствующая нелинейная поляризация равна

$$P_z(0) = \chi_{zxy}(0 = \omega - \omega) [E_x(\omega) E_y^*(-\omega) + E_x^*(-\omega) E_y(\omega)]. \quad (5.8)$$

В связи с тем, что объем взаимодействия для светового луча в нелинейной среде трудно определить, ошибка измерения этой восприимчивости может достигать, по-видимому, 200%. Указанный эксперимент позволяет осуществить интересную проверку пространственно-частотных перестановочных соотношений для тензора нелинейной восприимчивости путем сравнения выпрямления с линейным электрооптическим эффектом в постоянном поле

$$P_x(\omega) = \chi_{xyz}(\omega = \omega + 0) E_y(\omega) E_z(0). \quad (5.9)$$

Нелинейная восприимчивость связана с постоянной  $r_{36}$ , которая обычно приводится в литературе, соотношением

$$+ \chi_{xyz}(\omega = \omega + 0) = - \frac{n_0^4 r_{36}}{4\pi}.$$

В пределах точности эксперимента было установлено равенство

$$\chi_{xyz}(\omega = \omega + 0) = \chi_{zxy}(0 = \omega - \omega) = 13 \cdot 10^{-8} \text{ ед. CGSE}^{(1)}.$$

Отношение величин, характеризующих выпрямление света в  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  и  $\text{KD}_2\text{PO}_4$ , очень хорошо совпадает с соответствующим отношением для линейных электрооптических постоянных.

Когда постоянное поле в соотношении (5.9) заменяется переменным полем, частота которого лежит в радио- или СВЧ диапазоне, вблизи световой несущей возникают боковые полосы

$$P_y(\omega_L + \omega_m) = \chi(\omega = \omega_L + \omega_m) E_x(\omega_L) E_z(\omega_m), \quad (5.10)$$

$$P_y(\omega_L - \omega_m) = \chi(\omega = \omega_L - \omega_m) E_x(\omega_L) E_z^*(-\omega_m).$$

Эти боковые полосы света были разрешены с помощью дифракционного спектрографа для  $\omega_m/2\pi = 15 \text{ Гц}$ . Камингов [11, 12] и многие другие исследователи создали практические модуляторы света, работающие в диапазоне СВЧ. Можно осуществить много вариантов устройств, предназначенных для согласования фазовых скоростей световых волн и сверхвысокочастотных радиоволн, распространяющихся в волноводе. Для исследования процессов в таких системах теорию взаимодействия волн следует распространить на другие типы волн, отличающихся от плоских. Обратный процесс, когда в результате смешения двух световых волн возникает волна нелинейной поляризации с частотой, лежащей в диапазоне СВЧ, экспериментально наблюдался Нибуром [13]. Две аксиальные моды рубинового лазера, отличающиеся по частоте на  $2,964 \text{ Гц}$ , были смешаны в кристалле кварца, который одновременно являлся частью резонатора лазера и частью СВЧ резонатора.

Таким образом, соотношения, приведенные в гл. 4, § 1 и 2, хорошо описывают широкий круг наблюдавшихся экспериментально параметрических взаимодействий, свя-

<sup>1)</sup> Заметим, что при нашем определении амплитуд постоянного поля величина  $\chi_{zxy}(0 = \omega - \omega)$  в четыре раза больше того значения, которое дано Уордом и Франкеном [10]. В связи с тем что мы делаем различие между положительными и отрицательными частотами, пространственно-частотное перестановочное соотношение не содержит здесь множителя 4.

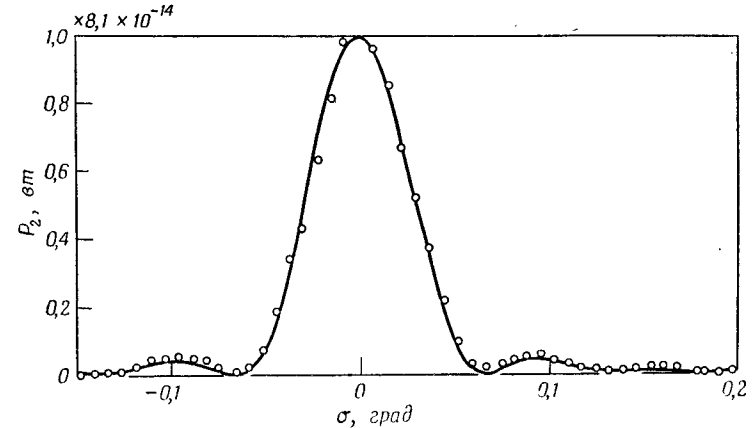
занных с оптическими нелинейностями низшего порядка. И наоборот, эти соотношения можно использовать для определения из экспериментальных данных численных значений нелинейных восприимчивостей.

## § 2. Определение абсолютной величины нелинейной восприимчивости

Трудность получения надежной величины нелинейной восприимчивости по измеренной интенсивности второй гармоники связана с многомодовой структурой излучения твердотельных лазеров высокой мощности. Распределение интенсивности в произвольном поперечном сечении луча точно не известно. Импульсный характер излучения создает дополнительные трудности. Интенсивность второй гармоники пропорциональна не квадрату интегральной интенсивности излучения основной частоты, а интегралу от квадрата этой интенсивности. Связанные с этим затруднения подробно анализируются в следующем параграфе.

С другой стороны, газовые лазеры работают в непрерывном режиме и имеют четкую геометрию луча. Ашкин, Бойд и Дзидзик [14] использовали для получения оптических гармоник гелий-неоновый лазер, генерировавший излучение с длиной волны  $1,1526 \text{ мк}$  в основной моде ( $00q$ ) с радиальным распределением интенсивности  $I_l = I_0 \exp(-2r^2/a^2)$  при размере пятна  $a = 0,21 \text{ см}$ . Луч имел дифракционную расходимость с угловой полушириной, равной всего  $3 \cdot 10^{-5} \text{ рад}$ . Для таких параметров когерентная длина  $l'_{\text{ког}}$ , определяемая выражением (5.4), составляет в кристалле KDP около  $20 \text{ см}$ . Используя такой луч и кристалл длиной  $z = 1,23 \text{ см}$ , можно добиться точного согласования фазовых скоростей, при котором интенсивность второй гармоники нарастает как  $z^2$ . Ашкин, Бойд и Дзидзик проверили эту зависимость на кристаллах трех различных длин. Как показано на фиг. 24, изменение интенсивности второй гармоники вблизи направления точного согласования фазовых скоростей хорошо описывается соотношением (4.13). Так как мощность луча непрерывного газового лазера составляет всего  $1,48 \cdot 10^{-3} \text{ вт}$ , то, несмотря на точное согла-

сование фазовых скоростей, мощность второй гармоники очень мала. Максимальная наблюдаемая мощность второй гармоники, генерируемой в кристалле KDP длиной  $1,23 \text{ см}$ , равнялась  $8,1 \cdot 10^{-14} \text{ вт}$ . Поляризация падающего луча лазера направлена вдоль  $[110]$ . Необыкновенный луч второй гармоники поляризован в плоскости, содержащей



Фиг. 24. Экспериментальная зависимость интенсивности второй гармоники в кристалле KDP от угла между лучом газового лазера и направлением точного согласования фазовых скоростей (по данным работы [14]).

Газовый лазер работал в одномодовом режиме  $TEM_{00q}$ . Кружками обозначены экспериментальные точки; сплошная кривая построена по формуле (4.13). Мощность основного излучения составляла  $P_1 = 1,48 \cdot 10^{-3} \text{ вт}$ , длина кристалла  $l = 1,23 \text{ см}$ .

кристаллографическую ось  $z$  и волновой вектор падающей волны. Угол  $\sigma$  с осью  $z$ , при котором выполняется условие согласования фазовых скоростей для  $\lambda = 1,15 \text{ мк}$ , равен  $\theta_M = 41^\circ$ . Направление распространения энергии составляет небольшой угол  $\alpha$  с направлением волнового вектора. Если диаметр луча равен  $a$ , то необыкновенный луч второй гармоники, волновой вектор которого параллелен обыкновенному лучу основной частоты, пройдя расстояние  $a/\text{tg } \alpha$ , выйдет в сторону из сечения, занятого лучом основной частоты. В рассматриваемом эксперименте при  $a = 0,21 \text{ см}$  и  $z = 1,25 \text{ см}$  этот эффект, очевид-

но, не играет роли<sup>1)</sup>. Эффективный нелинейный источник, возбуждающий необыкновенную волну гармоника, представляет собой компоненту нелинейной поляризации, параллельную вектору электрического поля  $\mathbf{E}(2\omega)$  волны

$$P^{\text{NLS}}(r) = P_2^{\text{NLS}} \sin(\theta_M + \alpha) = \chi_{36}(2\omega = \omega + \omega) \sin(\theta_M + \alpha) E_{1x}(r) E_{1y}(r).$$

Это выражение для  $P^{\text{NLS}}(r)$  подставляется в соотношение (4.13), после чего производится интегрирование по точно известному радиальному распределению интенсивности основной частоты. Используя такой метод, Ашкин, Бойд и Дзидзик нашли, что  $\chi_{36}^{\text{KDP}}(2\omega = \omega + \omega) = (6 \pm 2) \times 10^{-9}$  ед. CGSE для  $2\pi c\omega^{-1} = 1,15$  мк. Эта величина вдвое превышает значение, приведенное в их оригинальной статье, что связано с нашим определением амплитуд поля. Интенсивность излучения второй гармоники измерялась также и для других мод. Результаты наблюдений хорошо согласуются с вычисленными распределениями интенсивности в поперечном сечении луча.

### § 3. Многомодовая структура и флуктуационные явления

Хотя газовый лазер может работать в режиме одной поперечной моды, тем не менее при этом могут существовать еще несколько продольных мод с эквидистантными частотами. Ниже будет показано, что это может вызвать систематическую ошибку при определении величины нелинейной восприимчивости из опытов по генерации второй гармоники: истинная величина  $\chi_{36}$  может оказаться меньше измеренной в  $\sqrt{2}$  раз. Многомодовая структура излучения реального лазера, который можно рассматривать как ряд параллельных когерентных генераторов, существенно усложняет картину взаимодействия волн в нелинейной среде; многомодовая структура вызывает, в

<sup>1)</sup> Подробное исследование влияния различия направлений лучевого и волнового векторов в нелинейной анизотропной среде на процесс генерации второй гармоники выполнено в недавно опубликованной работе [56\*]. — Прим. ред.

частности, флуктуации интенсивности второй гармоники. В общем случае и задача о генерации гармоник и другие нелинейные оптические задачи должны рассматриваться как статистические, поскольку поле лазерного излучения состоит из ряда волн, амплитуды и фазы которых являются случайными величинами. Вообще говоря, они не обязательно статистически независимы; нелинейные процессы связывают различные моды лазера и могут установить между ними частичную или полную корреляцию. Однако в некоторых случаях обосновано рассмотрение комплексных амплитуд как статистически независимых. Примером может служить излучение рубинового лазера, различные моды которого образованы различными возбужденными ионами.

Представим поле лазерного излучения для одного направления поляризации в виде

$$E_1(\mathbf{r}, t) = \sum_{n,j} a_{nj} u_j(xy) e^{i(k_n j z - i\omega_n j t)}. \quad (5.11)$$

Индекс  $j$  использован для обозначения поперечных мод, а  $n$  — продольных. Интенсивность второй гармоники, возбужденной этим лазерным полем в пластине из нелинейного вещества толщиной  $z$ , дается соотношением (4.13) и может быть записана в виде четверной суммы

$$|E_2(x, y, z, t)|^2 = \frac{64\pi^2 |\chi^{\text{NL}}|^2 \sin^2 \frac{1}{2} \omega c^{-1} (\epsilon_S^{1/2} - \epsilon_T^{1/2}) z}{(\epsilon_S - \epsilon_T)^2} \times \\ \times \sum e^{-i(\omega_{nj} + \omega_{n'j'} - \omega_{n''j''} - \omega_{n'''j''''})t} \times \\ \times a_{nj} a_{n'j'} a_{n''j''}^* a_{n'''j''''}^* u_j(x, y) u_{j'}(x, y) u_{j''}^*(x, y) u_{j'''}^*(x, y). \quad (5.12)$$

Экспериментально наблюдаемая величина обычно регистрируется через посредство квадратичного процесса, проинтегрированного по определенному интервалу времени и определенной площади поперечного сечения. Если, например, измеряется ток фотоумножителя,

вызванный излучением с частотой второй гармоники, то интегрирование производится по интервалу времени  $T$ , равному постоянной времени регистрирующей схемы, и по поперечному сечению фотокатода. Хотя интервал  $T$  достаточно короток для того, чтобы считать амплитуды не зависящими от времени, тем не менее это время обычно превышает период биений любых двух различных частотных компонент. Экспоненту в соотношении (5.12), проинтегрированную по  $T$ , можно заменить  $\delta$ -функцией. Так как различные моды  $u_j$  ортогональны, интенсивность основной частоты, или фототок, равна просто

$$I_1 = \eta_1 \sum_{n_j, n''_j} a_{n_j} a_{n''_j}^* \frac{1}{T} \int_0^T e^{-i(\omega_{n_j} - \omega_{n''_j})t} dt \times \\ \times \int \int u_{n_j} u_{n''_j}^* dx dy = \eta_1 \sum |a_{n_j}|^2. \quad (5.13)$$

Множитель  $\eta_1$  учитывает чувствительность фотоумножителя и другие параметры регистрирующей схемы.

Измеренную интенсивность второй гармоники, или соответствующий фототок можно в общем случае получить из выражения (5.12). В простейшем случае, когда амплитуды отдельных мод постоянны, а фазы  $\varphi_{n_j}$  являются статистически независимыми переменными, равномерно распределенными по интервалу  $0 - 2\pi$ , среднее значение интенсивности второй гармоники можно записать в виде

$$\bar{I}_2 = \eta_2 |\chi^{NL}|^2 \sum |a_{n_j}|^4 C_{jjjj} + 2\eta_2 |\chi^{NL}|^2 \times \\ \times \sum' |a_{n_j}|^2 |a_{n'_j}|^2 C_{jj'j'j}. \quad (5.14)$$

Здесь постоянная  $\eta_2$  включает чувствительность фотоумножителя на частоте гармоники и геометрический множитель, входящий в выражение (5.12). Постоянные  $C$  определяются соотношением

$$C_{ijkl} = \int \int u_i u_j u_k^* u_l^* dx dy. \quad (5.15)$$

Если амплитуды постоянны, то интенсивность основной частоты является регулярной, а интенсивность второй гармоники — случайной величиной, так как различные

пары мод основной частоты, имеющие случайные фазы, дают вклад в одну и ту же моду второй гармоники.

Рассмотрим газовый лазер, излучающий большое количество эквидистантных продольных мод и только одну поперечную моду  $j$ . Амплитуды этих мод можно считать постоянными, а фазы не обязательно статистически независимыми. В этих предположениях комбинация выражений (5.13) и (5.14) дает для  $N$  мод равной амплитуды

$$\bar{I}_2 = \frac{\eta_2}{\eta_1^2} |\chi^{NL}|^2 I_1^2 \int \int |u_j(r)|^4 dx dy \times \\ \times \left[ 1 + \frac{\sum' |a_n|^2 |a_{n'}|^2}{\left( \sum_n |a_n|^2 \right)^2} \right]. \quad (5.16)$$

Сумма со штрихом означает суммирование по  $N(N-1)$  паре мод. Если заданная интенсивность излучения основной частоты  $I_1$  не сосредоточена в одной моде, а распределена по  $N$  модам, то средняя интенсивность второй гармоники увеличивается в  $(2 + N^{-1})$  раз. Нелинейная восприимчивость, определенная по результатам такого эксперимента без учета модовой структуры излучения, может оказаться завышенной в  $\sqrt{2}$  раз. Физическое объяснение состоит в том, что наибольший вклад в величину нелинейного эффекта дают интерференционные члены, соответствующие возрастанию амплитуды. Неоднородное распределение во времени и пространстве при заданной интегральной интенсивности излучения основной частоты будет приводить к увеличению мощности гармоники. В литературе сообщалось о наблюдавшихся иногда отклонениях от квадратичного соотношения  $I_2 \sim I_1^2$ . Объяснение, возможно, заключается в том, что модовая структура излучения изменяется при возрастании мощности лазера  $I_1$ .

Помимо возрастания средней мощности гармоники, будут иметь место флуктуации ее мощности около среднего значения. Величину  $\langle I_2^2 \rangle - \langle I_2 \rangle^2$  можно вычислить с помощью полинома восьмой степени по случайным амплитудам мод основной частоты. Аналогичное рассмот-

рение можно провести и для нелинейных процессов более высокого порядка.

Дюкуэнг [15] наблюдал флуктуации коэффициента, связывающего величины  $I_2$  и  $I_1^2$  для различных импульсов рубинового лазера с модулируемой добротностью. Иногда импульс с меньшей интенсивностью излучения основной частоты давал более мощную гармонику. Однако между двумя нелинейными процессами одного порядка, вызванными одним и тем же лазерным импульсом, существует регулярное соответствие, не подверженное флуктуациям (для их наблюдения излучение лазера разделяется на две части с помощью полупрозрачного зеркала). Этот метод позволяет получить надежные *относительные* величины нелинейной восприимчивости. На фиг. 21 приведена схема экспериментальной установки, на которой измерялась нелинейная восприимчивость GaAs; ее величина определялась по отношению к нелинейной восприимчивости, обуславливающей генерацию второй гармоники в KDP или кварце. Если перед кварцевым кристаллом помещалась рассеивающая пластинка из матированного стекла, не обладающая поглощением, то указанное регулярное соответствие нарушалось. Пространственное распределение мод в двух образцах нелинейного вещества переставало быть идентичным. Этот эксперимент убедительно показывает, что в импульсе рубинового лазера генерируются одновременно несколько мод<sup>1)</sup>.

Многомодовая структура лазерного излучения оказывает также сильное влияние на генерацию малых разностных частот. Рассмотрим сначала эффекты, связанные с наличием ряда продольных мод.

Пусть смешиваются два луча, содержащие соответственно  $N_1$  и  $N_2$  частотных компонент, сгруппированных около  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Каждая частотная компонента первого луча будет смешиваться с каждой компонентой второго

<sup>1)</sup> Флуктуации мощности гармоники могут быть связаны, вообще говоря, не только с флуктуационным разбросом фаз в разных модах основного излучения (см., например, [76\*]). Заметим также, что для ряда задач представляет интерес не только дисперсия мощности гармоники, но и временные характеристики ее флуктуаций [77\*]. — *Прим. ред.*

луча и давать разностную частоту вблизи  $\omega_2 - \omega_1$ . Ширина полосы регистрирующей системы, настроенной на частоту  $\omega_2 - \omega_1$ , определит, какие из всех возможных комбинаций частотных компонент  $N_1 N_2$  дадут вклад в регистрируемый сигнал. Если ширина полосы детектора меньше разности частот между  $N$  эквидистантными компонентами каждого луча, то результирующий сигнал на частоте  $\omega_2 - \omega_1$  будет меньше сигнала, созданного двумя идеально монохроматическими лучами света такой же интенсивности в  $N$  раз, где  $N$  равно большему из чисел  $N_1, N_2$ .

Обратимся теперь к эффектам, обуславливаемым различием в пространственной когерентности смешиваемых лучей. Предположим, что длина волны излучения разностной частоты равна или больше поперечного сечения лучей или нелинейного кристалла. Тогда мощность, генерируемая на разностной частоте, пропорциональна квадрату средней по поперечному сечению поляризации с частотой  $\omega_2 - \omega_1$ . Поляризация, в пространственном распределении которой по поперечному сечению имеются узлы, не может излучать, если размеры поперечного сечения малы по сравнению с длиной волны. В этом случае интерференция гасит излучение. Поэтому излучение на разностной частоте могут давать только те моды двух лучей света, которые имеют одно и то же пространственное распределение, причем длина волны излучения должна быть больше диаметра пучков света. Если в каждом пучке имеется соответственно  $J_1$  и  $J_2$  пространственных мод, то интенсивность излучения разностной частоты уменьшается в  $J$  раз, где  $J$  — большее из двух чисел  $J_1, J_2$ . При получении из света излучения разностной частоты, находящейся в диапазоне СВЧ, важно иметь лучи, обладающие только дифракционной расходимостью. Коэффициент ослабления интенсивности обусловлен по существу ограничениями конечных состояний в фазовом пространстве на низких частотах.

В обратном процессе СВЧ модуляции некогерентного луча света коэффициент ослабления отсутствует. Световые компоненты в боковых полосах всегда смогут найти моду с соответствующей частотой  $\omega_{nj} \pm \omega_{\text{СВЧ}}$  и с соответствующим распределением амплитуды  $u_{nj} u_{\text{СВЧ}}^*$  по поперечному сечению. Очевидно, что коэффициент ослабле-



ния отсутствует в экспериментах по смешению излучения рубинового лазера с излучением неодимового лазера, имеющим широкую полосу частот, или с некогерентным излучением ртутного разряда.

Коэффициент ослабления отсутствует также при выпрямлении света. В этом случае каждая мода может смешиваться сама с собой и создавать постоянное напряжение, пропорциональное интегральной интенсивности основной частоты, безотносительно к распределению интенсивности по модам.

Приведенные соображения по существу аналогичны соображениям, высказанным Форрестером [16], при анализе влияния пространственной когерентности на фотоэлектрическое смешение. Фотоэлектрический эффект также является нелинейным эффектом с квадратичной характеристикой<sup>1)</sup>.

#### § 4. Нелинейные восприимчивости пьезоэлектрических кристаллов

Методы, изложенные в общих чертах в гл. 1 и 5, использовались для измерения компонент тензоров восприимчивости третьего ранга, описывающих генерацию второй гармоники в ряде кристаллов. Измерения обычно производятся по отношению к стандартной величине компоненты  $\chi_{xyz}$  ( $2\omega = \omega + \omega$ ) для KDP, равной при комнатной температуре  $6,0 \cdot 10^{-9}$  ед. CGSE и принятой за единицу. Для получения точных относительных значений важно избегать направления точного согласования фазовых скоростей и близких к нему направлений. В этих случаях данные были бы чрезвычайно чувствительны к геометрии, и требовалось бы точно знать конфигурацию мод и ориентацию кристалла. Кроме того, для получения надежных данных необходимо провести измерения нескольких максимумов и минимумов на кривых типа, при-

<sup>1)</sup> В последнее время весьма оживленно дискутируются также вопросы, связанные с влиянием модовой структуры излучения лазера на протекание процессов вынужденного рассеяния (см. [78\* — 83\*]). Дискуссионным, в частности, является вопрос о влиянии модовой структуры на интенсивность линий вынужденного комбинационного рассеяния (ср., например, [79\*] и [82\*]). — *Прим. ред.*

#### Относительные величины компонент тензора нелинейной восприимчивости $\chi_{ijk}$ ( $2\omega = \omega + \omega$ )

Используются обозначения Фойгта:  $x = 1, y = 2, z = 3, yz = zy = 4, xz = zx = 5, xy = yx = 6$ . Величина  $\chi_{33}$  для KDP принята за единицу. Ее абсолютное значение  $\chi_{33} = 6 \cdot 10^{-9}$  ед. CGSE [14].

Кристалл	Восприимчивость для генерации второй гармоники $\chi$		Литература
	$\lambda = 6943 \text{ \AA}$	$\lambda = 1,06 \text{ мк}$	
KН <sub>2</sub> РO <sub>4</sub> (тетрагональный)	$\chi_{33} = 1,00$	1,0	[17]
	$\chi_{14} = 0,95 \pm 0,06$ $\chi_{14}' = 0,86 \pm 0,05$	$1,01 \pm 0,05$	[18]
KН <sub>2</sub> РO <sub>4</sub> (орторомбический)	$\chi_{31}' = 1,23 \pm 0,1$		[18]
	$\chi_{15}' = 1,20 \pm 0,1$		[18]
	$\chi_{32}' = 0,83 \pm 0,1$		[18]
	$\chi_{24}' = 0,80 \pm 0,1$		[18]
	$\chi_{33} = 0,0$		[18]
KD <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	$\chi_{33} = 0,75 \pm 0,02$	$0,92 \pm 0,04$	[17]
	$\chi_{14} = 0,76 \pm 0,04$	$0,91 \pm 0,03$	[17]
	$\chi_{14} = 0,85 \pm 0,1$		[18]
NH <sub>4</sub> H <sub>2</sub> PO <sub>4</sub>	$\chi_{33} = 0,93 \pm 0,06$	$0,99 \pm 0,05$	[17]
	$\chi_{14} = 0,89 \pm 0,04$	$0,98 \pm 0,05$	[17]
	$\chi_{33}' = 1,25 \pm 0,05$		[18]
	$\chi_{14}' = 1,07 \pm 0,05$		[18]
KН <sub>2</sub> AsO <sub>4</sub>	$\chi_{33} = 1,0 \pm 0,1$		[18]
	$\chi_{14} = 0,86 \pm 0,1$		[18]
Кварц	$\chi_{11} =$	$0,82 \pm 0,04$	[19]
	$\chi_{14} =$	$0,00 \pm 0,05$	[19]
BaTiO <sub>3</sub>	$\chi_{15} =$	$35,0 \pm 3$	[19]
	$\chi_{31} =$	$37,0 \pm 3$	[19]
	$\chi_{33} =$	$14,0 \pm 1$	[19]
CdS	$\chi_{15} =$	$35,0 \pm 3$	[21]
	$\chi_{31} =$	$32,0 \pm 2$	[21]
	$\chi_{33} =$	$63,0 \pm 4$	[21]

Продолжение табл. 1

Кристалл	Восприимчивость для генерации второй гармоники		Литература
	$\lambda = 6943 \text{ \AA}$	$\lambda = 1,06 \text{ мк}$	
GaAs	$\chi_{14} = 570 \pm 100$	$330,0 \pm 100$	[22]
InAs	$\chi_{14} = 370 \pm 75$	$210,0 \pm 75$	[22]
InSb	$\chi_{14} = 820 \pm 150$	$324,0 \pm 100$	[22]
GaSb	$\chi_{14} = 865 \pm 150$	$224,0 \pm 75$	[22]
ZnO	$\chi_{24} = \chi_{15}$ $\chi_{32} = \chi_{31}$ $\chi_{33} = \chi_{31}$	$4,7 \pm 0,4$ $4,3 \pm 0,4$ $14,3 \pm 0,4$	[23]
AlPO <sub>4</sub>	$\chi_{11} = \chi_{31}$	$0,84 \pm 0,07$	[23]

веденной на фиг. 2. Далее, для определения всех независимых компонент тензора восприимчивости можно использовать соотношение (4.13) для различных ориентаций поляризации луча основной частоты и луча второй гармоники по отношению к кристаллографическим осям. Опубликованные к настоящему времени данные получены почти исключительно с помощью рубиновых лазеров, у которых  $\hbar\omega = 1,79 \text{ эв}$  ( $\lambda = 6940 \text{ \AA}$ ), и неодимовых лазеров на стекле или вольфрамите кальция ( $\text{CaWO}_4$ ) с присадкой  $\text{Nd}^{3+}$ , имеющих  $\hbar\omega = 1,17 \text{ эв}$  ( $\lambda = 1,06 \text{ мк}$ )<sup>1)</sup>. В табл. 1 приведены только самые новые и, по-видимому, самые надежные данные.

В связи с тем, что две частоты равны, спектральная компонента тензора нелинейной восприимчивости  $\chi_{xyz}(2\omega)$  симметрична по двум последним индексам:

$$\chi_{iyz}(2\omega = \omega + \omega) = \chi_{izy}(2\omega = \omega + \omega) = \frac{1}{2} d_{i4}$$

<sup>1)</sup> Только в последнее время появились сообщения об опытах, в которых генерация гармоник происходила при возбуждении нелинейной среды излучением с длинами волн  $\lambda = 0,53 \text{ мк}$  и с некоторыми другими [57\*—59\*] — Прим. ред.

Здесь  $i$  принимает значения  $x = 1, y = 2, z = 3$ . Приняты обозначения Фойгта, согласно которым

$$yz = zy = 4, \quad xz = zx = 5, \quad xy = yx = 6.$$

Первые четыре кристалла в табл. 1 имеют тетрагональную симметрию класса  $\bar{4}2m$  или  $V_d$ , характерную для KDP. Отличными от нуля компонентами являются  $d_{14} = d_{25}$  и  $d_{36}$ . Тригональный кварц обладает симметрией класса 32 или  $P_3$ , причем отличны от нуля компоненты  $d_{11} = -d_{22} = -d_{26}$  и  $d_{14} = -d_{25}$ . Четыре кристалла в таблице относятся к полупроводникам типа  $A^{III}B^V$  с решеткой типа ZnS, имеющей тетрагональную симметрию класса  $\bar{4}3m$  или  $T_d$ . Отличными от нуля компонентами являются  $d_{14} = d_{25} = d_{36}$ . О свойствах симметрии других кристаллов можно узнать в работах, на которые даны ссылки в табл. 1. Тензор третьего ранга  $d$  характеризуется такими же свойствами симметрии, как и пьезоэлектрический тензор. Он часто используется в литературе вместо  $\chi$ . Его компоненты с индексами 4, 5, 6 вдвое больше соответствующих компонент  $\chi$ .

Результаты экспериментов по определению нелинейных восприимчивостей согласуются с известными свойствами симметрии. Интересно отметить, что часто оказывается справедливым дополнительное свойство симметрии, известное как соотношение Клейнмана [24]. Частотная дисперсия нелинейной восприимчивости в области прозрачности кристаллов настолько мала, что часто можно менять местами  $2\omega$  и  $\omega$  без соответствующей перестановки индексов. Это дает дополнительное соотношение вида  $d_{14} \approx d_{36}$  для кристаллов класса KDP и  $d_{14} \approx d_{25}$  для кварца. Так как из симметрии кристалла кварца следует равенство  $d_{14} = -d_{25}$ , то получается, что в кварце в пределах точности эксперимента  $d_{14} = 0$ . В KDP указанное соотношение, вероятно, не выполняется строго, так как Ван дер Зил нашел, что в этом случае  $d_{14} = (0,86 \pm 0,05)d_{25}$ <sup>1)</sup>.

<sup>1)</sup> За время, прошедшее после написания этой книги, интенсивная работа по определению нелинейных восприимчивостей  $\chi_{ijh}$  в различных кристаллах продолжалась. Пожалуй, одним из наиболее интересных ее результатов следует признать открытие нового весь-

### ТЕМПЕРАТУРНАЯ ЗАВИСИМОСТЬ И ДИСПЕРСИЯ НЕЛИНЕЙНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ В KDP

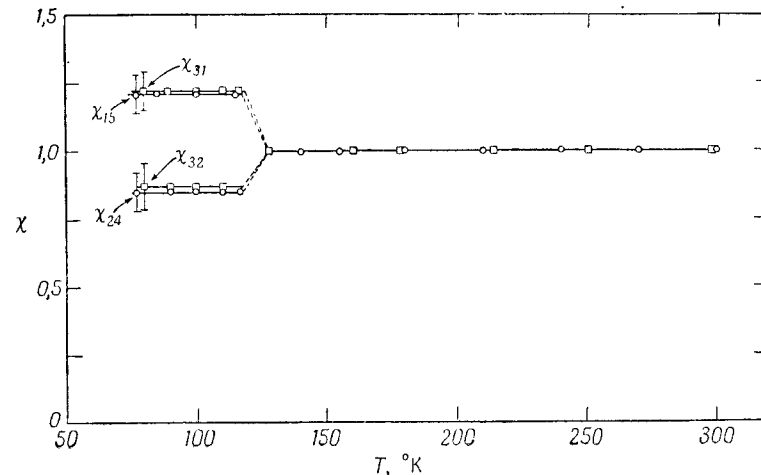
Ван дер Зил [18] подробно исследовал температурную зависимость нелинейной восприимчивости в KDP и некоторых других кристаллах с такой же структурой. При температуре ниже  $122^\circ\text{K}$  кристалл KDP переходит в сегнетоэлектрическую фазу с орторомбической симметрией (класс  $mm2$ ). Если охладить кристалл до температуры, меньшей температуры перехода, в достаточно сильном электрическом поле, направленном по тетрагональной оси, то образуется один сегнетоэлектрический домен с орторомбическими осями  $x'$ ,  $y'$ , повернутыми на  $45^\circ$  по отношению к осям  $x$ ,  $y$  исходной тетрагональной структуры. Тензор нелинейной восприимчивости в сегнетоэлектрической фазе имеет компоненты:

	$x'x'$	$y'y'$	$zz$	$zx'$	$y'z$	$x'y'$
$x'$	0	0	0	0	$\chi'_{15}$	0
$y'$	0	0	0	$\chi'_{14}$	0	0
$z$	$\chi'_{31}$	$\chi'_{32}$	$\chi'_{33}$	0	0	0

Величины измеренных восприимчивостей приведены на фиг. 25. В каждой фазе они не зависят от температуры, причем в орторомбической фазе оказалось невозможно измерить  $\chi'_{33}$  из-за его малости. Компоненты  $\chi'_{31}$  и  $\chi'_{15}$ , вероятно, имеют противоположные знаки, то же относится и к  $\chi'_{32}$  и  $\chi'_{24}$ . Изменение абсолютной величины восприимчивости при переходе из одной фазы в другую мало. В соответствии с требованиями симметрии в

ма эффективного нелинейного кристалла  $\text{LiNbO}_3$  [60\*, 61\*]. Этот одноосный пьезоэлектрический кристалл, относящийся к группе  $3m$  и имеющий  $d_{31} = 3,6 \cdot 10^{-3}$  ед. CGSE (при использовании обычной записи для поля), допускает согласование фазовых скоростей. Используя этот кристалл, удается создать эффективные удвоители частоты и перестраиваемые параметрические генераторы света (см. гл. 4). — Прим. ред.

тетрагональной фазе с инверсионной поворотной осью четвертого порядка те же самые величины, отнесенные к орторомбическим осям, должны иметь противоположный знак.



Фиг. 25. Температурная зависимость нелинейной восприимчивости в KDP.

Фазовый переход происходит при температуре  $122^\circ\text{K}$ .

Если охлаждать кристалл, не прикладывая к нему электрического поля, то образуется сегнетоэлектрическая доменная структура, в которой орторомбические оси соседних доменов образуют между собой угол в  $90^\circ$ . Это приводит к изменению знака нелинейной восприимчивости при переходе от одного домена к другому. Так как величина доменов сравнима с длиной когерентного взаимодействия, в многодоменном кристалле можно получить сильное увеличение интенсивности гармоники. Объясняется это тем, что, когда разность фаз между волной гармоники и волной основной частоты должна была бы стать слишком большой, происходит изменение знака нелинейной поляризации на частоте второй гармоники на обратный. В результате волна гармоники продолжает нарастать. Интенсивность второй гармоники в многодоменных кристаллах может увеличиться на два

порядка и зависит от конкретных особенностей доменной структуры. Аналогичные эффекты наблюдались Миллером [19, 20] в сегнетоэлектрике  $\text{BaTiO}_3$ . Этот же эффект можно использовать для компенсации рассогласования фазовых скоростей в кубических кристаллах: кристаллические пластинки набирают в стопу так, чтобы оси [011] соседних пластинок оказались попеременно повернутыми на  $90^\circ$  (см. приложение I).

Нелинейная восприимчивость  $\chi_{36}$  ( $0 = \omega - \omega$ ) в КДР приблизительно в 40 раз больше величины  $\chi_{36}(2\omega = \omega + \omega)$ . Такая большая дисперсия обуславливается в основном усилением действующих полей ионной поляризации и подробно обсуждалась Франкеном [10]. На СВЧ этот ионный вклад в нелинейную поляризацию все еще существует, так что

$$\chi_{36}(\omega_{\text{СВЧ}} = \omega_2 - \omega_1) = \chi_{36}(0 = \omega_1 - \omega_1).$$

Нелинейные восприимчивости орторомбической фазы можно вывести из нелинейных восприимчивостей тетрагональной фазы более высокого порядка, учитывая внутреннее постоянное поле, вызванное спонтанной статической поляризацией. Имеем, например,

$$\begin{aligned} \chi'_{113}(2\omega = \omega + \omega) &= \chi_{123}^{\text{тетр}}(2\omega = \omega + \omega) + \\ + \chi_{1233}^{\text{тетр}}(2\omega = \omega + \omega + 0)P_3 + \chi_{12333}^{\text{тетр}}(2\omega = \omega + \omega + 0 + 0)P_3^2, \\ \chi'_{223}(2\omega = \omega + \omega) &= -[\chi_{123}^{\text{тетр}}(2\omega = \omega + \omega) - \\ - \chi_{1233}^{\text{тетр}}(2\omega = \omega + \omega + 0)P_3 + \\ + \chi_{12333}^{\text{тетр}}(2\omega = \omega + \omega + 0 + 0)P_3^2]. \end{aligned}$$

Аналогичным образом учитывая линейный электрооптический эффект, вызванный действующим электрическим полем, которое создано спонтанной статической поляризацией, можно связать величину двойного лучепреломления орторомбической фазы с показателями преломления тетрагональной фазы. Ван дер Зил [18] и Миллер [19, 20] исследовали связь между указанными тензорами и пришли к некоторым интересным заключениям относительно действующего поля.

## НЕЛИНЕЙНЫЕ ВОСПРИИМЧИВОСТИ ПОЛУПРОВОДНИКОВ

Дисперсия нелинейной восприимчивости становится более резко выраженной, когда одна из частот попадает в область поглощения вещества. Если начинает поглощаться излучение с частотой второй гармоники, то происходит заметное увеличение нелинейной восприимчивости. Такой эффект наблюдали Зорев и Мус [21], которые работали с твердыми растворами  $\text{ZnS}-\text{CdS}$  и  $\text{CdS}-\text{CdSe}$ . Ширина запрещенной зоны  $E_g$  в этих кристаллах в зависимости от концентрации систематически изменяется от 1,71 эв в  $\text{CdSe}$  до 2,36 эв в  $\text{CdS}$  и до 3,52 эв в  $\text{ZnS}$ . Такой диапазон изменения  $E_g$  вдвое превышает энергию фотонов, испускаемых лазером на неодимовом стекле. При уменьшении ширины запрещенной зоны с 1,52 ( $2\hbar\omega$ ) до 0,73 ( $2\hbar\omega$ ), приводящему к попаданию второй гармоники в область сильного поглощения, нелинейная восприимчивость  $\chi_{333}(2\omega = \omega + \omega)$  увеличивается на порядок. Этот результат согласуется с теоретическим расчетом по формуле (2.48). Резонансный знаменатель этого выражения, зависящий от частоты  $\omega_1 + \omega_2 = 2\omega$ , показывает, что, после того как  $2\hbar\omega$  станет больше  $E_g$ , нелинейная восприимчивость должна расти по такому же закону, как и комплексная линейная восприимчивость на частоте  $2\omega$ . Таким образом, существует во всяком случае качественное согласие между теорией и экспериментом. Заслуживает внимания то, что даже в области прозрачности, где  $E_g > 2\hbar\omega$ , нелинейность  $\text{CdS}$  много больше, чем КДР. Объяснение, по-видимому, заключается в том, что отклонение от инверсионной симметрии в  $\text{CdS}$  и полупроводниках типа  $A^{\text{III}}B^{\text{V}}$  гораздо сильнее. Поэтому значительно большая сила осциллятора связывается с волновыми функциями валентных электронов, не обладающими определенной четностью.

Указанные нелинейности были определены в экспериментах по генерации второй гармоники в объеме; нелинейная восприимчивость же полупроводников типа  $A^{\text{III}}B^{\text{V}}$  измерялась методом отражения<sup>1)</sup>, показанном

<sup>1)</sup> Некоторые новые данные о дисперсии нелинейной восприимчивости в монокристаллах  $\text{GaAs}$ ,  $\text{InAs}$ ,  $\text{InSb}$ ,  $\text{ZnTe}$ , полученные методом отражения, сообщались в [58\*]. — Прим. ред.

на фиг. 21. Так как излучение основной частоты (лазера) поглощается кристаллом, для предотвращения разрушения его поверхности вследствие избыточного нагревания и испарения мощность потока падающего излучения должна быть не слишком велика. К счастью, значительная часть поглощенного лазерного света, по-видимому, снова испускается в виде рекомбинационного излучения. Поверхность должна быть отполирована и химически протравлена. Все отраженное излучение с частотой гармоники возникает в слое толщиной около  $400 \text{ \AA}$ , равной глубине поглощения света на частоте второй гармоники. Проверкой качества этого слоя является равенство нулю интенсивности отраженной гармоники для специальных ориентаций, отмеченных на фиг. 22 и 23. Это служит доказательством того, что поверхностный слой имеет такую же симметрию, как и остальная часть кристалла. Если луч лазера падает под углом  $45^\circ$  и поляризация нормальна к плоскости падения, параллельной кристаллографической оси [111], то нелинейная поляризация равна

$$P_{\perp}^{\text{NLS}}(2\omega) = 3^{-1/2} \chi_{14} |E_{\perp}(\omega)|^2 = 3^{-1/2} |E^{\text{пад}}(\omega)|^2 \times \left[ \frac{2}{i[2\varepsilon(\omega) - 1]^{1/2} + 1} \right]^2. \quad (5.17)$$

Последний множитель в этом выражении является френелевским коэффициентом пропускания, позволяющим выразить поле внутри полупроводника через напряженность поля в падающем лазерном луче. Пользуясь соотношением (4.8), для амплитуды гармоники в отраженной волне получаем

$$E_{\perp}^R(2\omega) = \frac{4\pi\chi_{14}}{\sqrt{3}} |E^{\text{пад}}(\omega)|^2 \left[ \frac{2}{(2\varepsilon(\omega) - 1)^{1/2} + 1} \right]^2 \times \frac{\sqrt{2}}{\left\{ \left[ \varepsilon(2\omega) - \frac{1}{2} \right]^{1/2} + \left[ \varepsilon(\omega) - \frac{1}{2} \right]^{1/2} \right\} \{ [2\varepsilon(2\omega) - 1]^{1/2} + 1 \}}. \quad (5.18)$$

Наблюдаемая интенсивность второй гармоники пропорциональна квадрату абсолютной величины этого выра-

жения. Необходимо подчеркнуть, что в экспериментах по генерации второй гармоники измеряется только абсолютная величина комплексной восприимчивости.

Ширина запрещенной зоны в GaAs, равная  $1,35 \text{ эв}$ , больше энергии кванта излучения неодимового лазера, равной  $1,17 \text{ эв}$ . В этом случае, воспользовавшись соотношением (4.15), нелинейную восприимчивость можно также измерить по генерации гармоники в объеме. Оба метода дают согласующиеся результаты, но измерения по методу отражения оказываются в 2—3 раза более точными. Большая неопределенность результатов измерения восприимчивости по генерации гармоники в объеме вызвана неопределенностью значений комплексного линейного показателя преломления. В выражение (4.15) для интенсивности гармоники входит разность этих величин, взятых на частотах  $\omega$  и  $2\omega$ . Указанное обстоятельство ограничивает точность такого метода.

Существует значительная дисперсия величины  $\chi_{14}(2\omega = \omega + \omega)$  в интервале от  $\hbar\omega = 1,17 \text{ эв}$  до  $\hbar\omega = 1,79 \text{ эв}$ . В InSb ( $E_g = 0,24 \text{ эв}$ ), InAs ( $E_g = 0,45 \text{ эв}$ ) и GaSb ( $E_g = 0,81 \text{ эв}$ ) всегда поглощаются и излучение основной частоты и вторая гармоника. В GaAs с  $E_g = 1,35 \text{ эв}$  излучение неодимового лазера основной частоты не поглощается. Заметим, что в случае, когда в дополнение к поглощению второй гармоники начинается поглощение излучения основной частоты, существенных изменений нелинейной восприимчивости не происходит. Когда частота гармоники попадает в область поглощения, нелинейная восприимчивость возрастает на порядок, однако дополнительное поглощение излучения основной частоты может самое большее изменить наклон дисперсионной кривой, но не порядок величины восприимчивости. Такое поведение восприимчивости в общих чертах согласуется с соотношением (2.48). Так как ширина зон велика по сравнению с постоянной затухания  $\Gamma$ , то можно перейти к пределу при  $\Gamma \rightarrow 0$  и использовать соотношение

$$\lim_{\Gamma \rightarrow 0} \frac{1}{\omega_2 - \omega_{n''n'} + i\Gamma} = \text{Главное значение} \frac{1}{\omega_2 - \omega_{n''n'}} - i\pi\delta(\omega_2 - \omega_{n''n'}) \quad (5.19)$$

при вычислении интеграла в выражении (2.48). Таким способом нелинейные восприимчивости можно выразить через те же смешанные плотности состояний, которые встречаются в теории линейной диэлектрической проницаемости [25]. Могут иметься критические точки, где смешанная плотность состояний высока. Если окажется возможным измерять нелинейность на более высоких частотах, то можно попытаться отыскать такие максимумы комплексной нелинейной восприимчивости. Исследование выражения (2.48) показывает, что возможен также другой тип сингулярности в поведении нелинейной восприимчивости, который не наблюдается в линейном случае. Два знаменателя могут одновременно оказаться вблизи от резонанса, когда  $\omega_{n'n}(k) = 2\omega_{n'n^*}(k)$ . В этом случае, а также вблизи от края зоны следует пользоваться выражением (2.48), не переходя к пределу при  $\Gamma \rightarrow 0$  в соответствии с соотношением (5.19). Хотя нелинейности в указанных полупроводниковых соединениях очень велики, вторая гармоника генерируется в действительности слабо. Эффективный когерентный объем излучающей поляризации, пропорциональный глубине поглощения, уменьшается быстрее, чем растет нелинейность<sup>1)</sup>. Нелинейная восприимчивость дает больше информации о структуре электронных зон, чем только одни линейные оптические константы, потому что она описывает свойства, характерные для волновых функций зон смешанной четности.

Полупроводники Si и Ge, имеющие центры инверсии, не дают заметной интенсивности второй гармоники. Их нелинейность по крайней мере на три порядка меньше, чем в GaAs, а интенсивность генерируемой ими второй гармоники меньше в  $10^6$  раз. Эти эффекты не зависят от легирующих примесей и удельного сопротивления материала, что указывает на то, что нелинейности электронной плазмы ненаблюдаемы. Это не удивительно: нелинейность плазмы в таком металле, как серебро, по оценкам, которые можно сделать, пользуясь выражениями (1.6) или (2.45), того же порядка, что и в KDP, или приблизительно в 400 раз меньше, чем в GaAs. Однако

<sup>1)</sup> Эти вопросы обсуждаются также в [62\*, 63\*]. — Прим. ред.

нелинейность трудно обнаружить, поскольку поглощение в металле очень велико. Даже если использовать узкие плазменные резонансы в серебре, для того чтобы уменьшить, насколько это возможно, некоторые из знаменателей, входящих в выражения, аналогичные соотношениям (5.17) или (5.18), то и тогда эксперимент останется все еще очень сложным. Нелинейность плазмы в полупроводнике можно увеличить во много раз в далекой инфракрасной области, где при малых эффективных массах и сильных магнитных полях может возникать циклотронный резонанс [26]. Очевидно, что существует много возможностей для проведения дальнейших экспериментов.

## § 5. Электрические квадрупольные эффекты

Терхьюн [27] наблюдал генерацию второй гармоники в кристалле кальцита, который имеет центр инверсии. Этот кристалл относится к группе симметрии  $\bar{3}m$  или  $D_{3d}$ . Эффект очень мал и может наблюдаться лишь при тщательном согласовании фазовых скоростей обыкновенной волны основной частоты и необыкновенной волны второй гармоники<sup>1)</sup>. Генерацию второй гармоники можно сильно увеличить, если приложить к кристаллу постоянное электрическое поле (фиг. 26). Это поле нарушает инверсионную симметрию. В этом случае волна нелинейной поляризации связана с восприимчивостью, описываемой тензором четвертого ранга,

$$P^{NLS}(2\omega) = \chi(2\omega = \omega + \omega + 0) E(\omega) E(\omega) E_{dc}(0). \quad (5.20)$$

Интенсивность второй гармоники действительно возрастает пропорционально  $E_{dc}^2$ . Однако в настоящем разделе мы будем интересоваться случаем  $E_{dc}(0) = 0$ . В этом случае генерация второй гармоники обусловлена

<sup>1)</sup> Следует отметить, что выполнение закона сохранения импульса в кальците возможно и в том случае, когда обыкновенная и необыкновенная волны основного излучения взаимодействуют с необыкновенной волной гармоники. Такие взаимодействия возможны и в других кристаллах. — Прим. ред.

квадрупольным эффектом, который можно получить из свободной энергии

$$F = - \sum_{ijkl} \chi_{ijkl}^I E_i^*(2\omega) E_j(\omega) \nabla_k E_l(\omega) - \\ - \sum_{ijkl} \chi_{ijkl}^{II} E_j(\omega) E_l(\omega) \nabla_k E_i^*(2\omega) + \text{компл. сопр.} \quad (5.21)$$

Входящий сюда тензор восприимчивости симметричен по последним двум индексам. Першан [28] детально рассмотрел энергию, связанную с квадрупольными членами, и показал, что без потери общности можно положить  $\chi_{ijkl}^I = 0$ . В таком случае нелинейная плотность тока в соответствии с выражением (3.3) равна

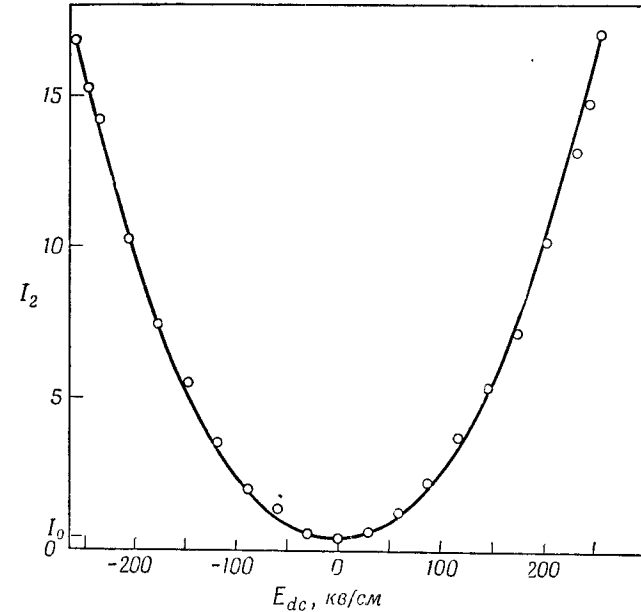
$$J_i(2\omega) = 2i\omega \sum_{ijk} \nabla_k \chi_{jiki}^{II} E_j(\omega) E_l(\omega). \quad (5.22)$$

Так как для плоских волн градиент  $\nabla_k$  отличен от нуля только в направлении распространения волны и  $i = k$ , то волна второй гармоники, фазовая скорость которой согласована, вызывается продольной волной нелинейной поляризации. В изотропной среде этот источник не может возбуждать электромагнитную волну, однако в кальците угол  $\alpha$  между векторами  $\mathbf{D}$  и  $\mathbf{E}$  для направления, соответствующего согласованию фазовых скоростей, равен приблизительно  $7^\circ$ . В результате эффективная составляющая продольного тока, которая может возбуждать электромагнитную волну, равна

$$J_{\parallel}^{\text{NLS}}(2\omega) = J_{i=k}(2\omega) \sin \alpha.$$

В выражении (5.22) имеется несколько компонент тензора, которые дают вклад в нелинейную поляризацию при характерной для эксперимента геометрии. Измеренная Терхьюном интенсивность второй гармоники позволяет оценить порядок величины этих компонент:  $|\chi^{II}| \sin \alpha \approx 10^{-18}$  ед. CGSE или  $|\chi^{II}| \sim 10^{-17}$  ед. CGSE. Очевидно, что надежен только порядок величины, так как трудности определения абсолютных значений оказываются даже более серьезными, чем в предыдущих случаях.

В изотропной среде генерация второй гармоники может происходить в результате квадрупольного взаимодействия, если в области нелинейного взаимодействия



Фиг. 26. Зависимость интенсивности излучения второй гармоники  $I_2$  (в относительных единицах), возникающей в кальците, от величины приложенного к кристаллу постоянного электрического поля (по данным работы [41]).

В отсутствие постоянного поля генерация гармоники обусловлена только квадрупольным эффектом.

идут два луча света, образующие между собой угол  $\varphi$  и имеющие различные направления поляризации. Для согласования фазовых скоростей все же желательно использовать анизотропный кристалл, в котором волна второй гармоники распространялась бы в направлениях, образующих углы  $\varphi_1$  и  $\varphi_2 = \varphi - \varphi_1$  с направлением лучей основной частоты. Нелинейный источник, определяемый соотношением (5.22), имеет в этом случае поперечные компоненты. Джордмейн [29] описал эксперимент

по генерации второй гармоники в кальците, в котором используется указанная геометрия.

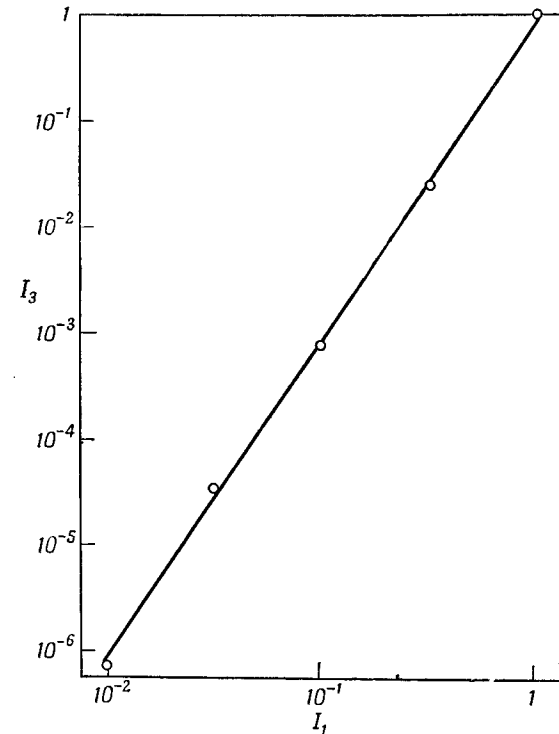
Магнитные дипольные эффекты также можно проанализировать, пользуясь соответствующим выражением для свободной энергии [одним из примеров является соотношение (3.11)]. Першан [28] провел детальное обсуждение свойств симметрии таких эффектов. В частности, под действием импульса света с круговой поляризацией должно наблюдаться индуцированное намагничение непоглощающей среды. Этот эффект обратен в термодинамическом отношении фарадееву вращению, и его можно вывести из того же члена выражения для свободной энергии, записанного через постоянную Верде. Сообщений о наблюдении такого эффекта пока нет<sup>1)</sup>.

Сильное намагничение можно возбудить излучением рубинового лазера с круговой поляризацией при поглощении его в другой рубине. В этом случае происходит перераспределение населенностей зеемановских уровней ионов  $\text{Cr}^{3+}$ , что в значительной мере аналогично оптической накачке в газах.

## § 6. Генерация третьей гармоники

Теперь мы обратимся к рассмотрению эффектов, которые можно получить из усредненной по времени свободной энергии, описываемой полиномом четвертой степени по напряженностям электрического поля. Терхьюн и др. [30] наблюдали генерацию третьей гармоники в изотропных жидкостях, кубических кристаллах и кальците. В последнем случае согласование фазовых скоростей луча основной частоты и луча третьей гармоники возможно для двух направлений. Для угла  $57^\circ$  по отношению к тригональной оси имеет  $2k_o(\omega) + k_e(\omega) = k_e(3\omega)$ , а для угла  $47^\circ$  выполняется соотношение  $3k_o(\omega) = k_e(3\omega)$ . Здесь индексы  $o$  и  $e$  обозначают обыкновенную и необыкновенную волны. Генерации третьей гармоники описываются тензором четвертого ранга; со-

<sup>1)</sup> Сообщение о наблюдении этого эффекта в монокристалле  $\text{CaF}_2$  с ионами  $\text{Eu}^{2+}$  было сделано недавно на конференции по квантовой электронике в Пуэрто-Рико [64\*]. — Прим. ред.



Фиг. 27. Зависимость интенсивности излучения третьей гармоники  $I_3$  возникающей в кальците, от падающей на кристалл мощности излучения основной частоты  $I_1$  (по данным работы [30]).

Все величины выражены в относительных единицах. Прямая соответствует закону  $I_3 \sim I_1^3$ .

ответствующая нелинейная поляризация имеет вид

$$P_i(3\omega) = \sum_{jkl} \chi_{ijkl} (3\omega = \omega + \omega + \omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(\omega). \quad (5.23)$$

Терхьюн и др. [30] указали отличные от нуля компоненты тензора  $\chi_{ijkl}$  для 32 точечных групп симметрии. Как показано на фиг. 27, измеренная интенсивность излучения на частоте  $3\omega$  действительно оказалась пропорцио-



нальной кубу интенсивности излучения основной частоты. Максимальное значение коэффициента преобразования энергии составляет  $3 \cdot 10^{-6}$ . Эта величина получена в сфокусированном луче лазера с модулируемой добротностью, идущем в направлении согласования фазовых скоростей. Следует отметить, что интенсивность поля в фокусе лазера с модулируемой добротностью настолько велика, что здесь можно разрушить почти любой кристалл. Поэтому при наблюдении генерации третьей гармоники интенсивность луча лазера уменьшалась до величины несколько меньшей критической. Разрушение кристалла в лазерном луче может происходить вследствие поглощения энергии примесями, многофотонного поглощения или возбуждения колебаний среды, связанных с вынужденным комбинационным рассеянием или вынужденным рассеянием Манделштама — Бриллюэна. При этом мгновенное выделение тепла в небольшом объеме вызывает образование ударной волны.

Порядок величины  $|\chi(3\omega = \omega + \omega + \omega)|$  равен по оценкам  $10^{-15}$  ед. CGSE. Для кубических кристаллов, таких, как LiF, соотношение (5.23) можно записать в виде

$$P_i = AE_i^3 + BE_i(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}), \quad (5.24)$$

где  $A + B = \chi_{1111}$  и  $B = \chi_{1122} = \chi_{1133}$ . Терхьюн обнаружил, что опыты по генерации третьей гармоники указывают на некоторую анизотропию в этих кристаллах. Так как в этом случае невозможно осуществить согласование фазовых скоростей, эффект трудно наблюдать. Постоянная  $A$  определенно отлична от нуля.

## § 7. Многофотонное поглощение

Поперечное сечение процесса двухфотонного поглощения рассматривалось в гл. 2. Клейнман [31] и Бронштейн [32] дали более подробный анализ этой задачи. Если падающий луч света когерентен, то, как показано в гл. 2, § 8, процесс можно также описать с помощью мнимой нелинейной восприимчивости. Поглощение двух

квантов из одного и того же луча описывается соотношением

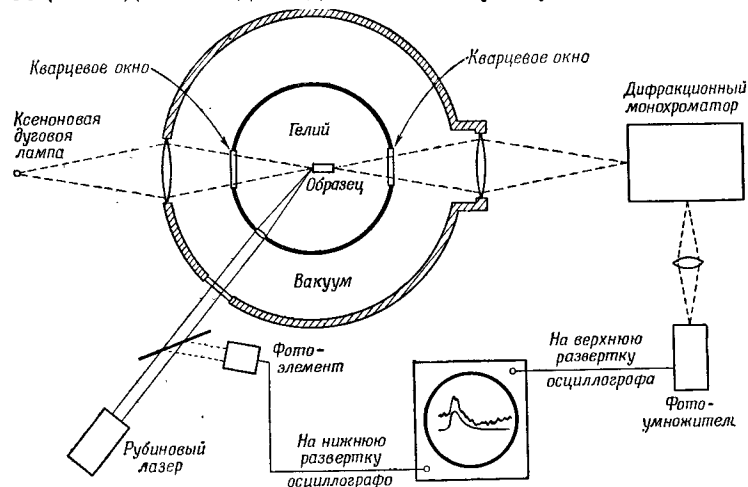
$$P_i^{\text{NL}}(\omega) = i\chi''_{ijkl}(\omega = -\omega + \omega + \omega) E_j^*(-\omega) E_k(\omega) E_l(\omega). \quad (5.25)$$

Свойства симметрии этого тензора, симметричного по двум первым и двум последним индексам, идентичны свойствам симметрии тензоров упругости, которые хорошо известны для всех точечных групп.

Двухфотонное поглощение впервые наблюдалось Кайзером и Гарреттом [33], которые освещали кристалл  $\text{CaF}_2$ , содержащий ионы  $\text{Eu}^{2+}$ , лучом рубинового лазера. При этом кристалл испускал характерное излучение флуоресценции с длиной волны  $4250 \text{ \AA}$ , соответствующее переходу  $\text{Eu}^{2+}$  из возбужденного состояния. Интенсивность флуоресценции была пропорциональна квадрату интенсивности луча лазера. Эта голубая флуоресценция наблюдалась ранее только при возбуждении ультрафиолетовой полосы поглощения  $\text{Eu}^{2+}$ . В опытах же с рубиновым лазером два кванта красного света индуцируют переход на этот возбужденный уровень, находящийся в ультрафиолетовой области. Возможность двух последовательных процессов однофотонного поглощения исключается, поскольку нет поддающегося измерению линейного поглощения на частоте излучения рубина, и не известно уровней энергии, расположенных на «половине пути» вверх. В опытах [33] приблизительно один из  $10^7$  падающих фотонов поглощался в кристалле толщиной  $1 \text{ мм}$ , в котором плотность ионов  $\text{Eu}^{2+}$  составляла  $N_0 = 2,4 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ , причем плотность потока фотонов равнялась  $8 \cdot 10^{23} \text{ см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$ . Напряженность поля, вычисленная с помощью соотношения (2.91), равнялась  $|E_\lambda| = 9 \text{ ед. CGSE} = 2700 \text{ в} \cdot \text{см}^{-1}$ . Нелинейная восприимчивость, определенная из величины поглощения на длине  $1 \text{ см}$ , равного  $4\pi(\omega_\lambda/c)(+\chi'')|E_\lambda|^2 = 10^{-6}$ , составляет  $\chi''(\omega = -\omega + \omega + \omega) \approx 10^{-14}$  ед. CGSE. Это значение можно существенно увеличить, если окажется возможным уменьшить ширину полосы поглощения в ультрафиолетовой области и увеличить концентрацию ионов

$\text{Eu}^{2+}$ . При остром резонансе восприимчивости могут иметь значительно большую величину.

Хопфилд и др. [34] нашли важное для спектроскопии применение многофотонного поглощения. Схема их экспериментальной установки приведена на фиг. 28. Образец находится под воздействием двух лучей света, один



Фиг. 28. Схема использования двухфотонного поглощения в спектроскопии.

Контролируется изменение поглощения света, испускаемого ксеноновой лампой в кристалле KI во время прохождения через него импульса лазерного излучения (по данным работы [34]).

из которых создан импульсом излучения рубинового лазера, другой образован непрерывным излучением дуговой ксеноновой лампы. Двухфотонное поглощение обнаруживается по изменению коэффициента поглощения света ксеноновой лампы в образце (кристалл KI) при прохождении через него импульса излучения рубинового лазера. Этот метод позволял исследовать дисперсионные характеристики процесса двухфотонного поглощения в широком диапазоне частот. Результаты такого эксперимента дополняют данные, полученные при исследовании однофотонного поглощения, так как в двухфотонных электрических дипольных переходах начальные и конечные состояния имеют одинаковую четность.

В связи с тем что второй источник света дает некогерентное излучение в широком спектре частот, нелинейную восприимчивость, определенную в гл. 2 для периодических возмущений, нельзя непосредственно использовать для теоретических оценок. Коэффициент нелинейного поглощения можно, конечно, выразить через поперечное сечение поглощения, пропорциональное интенсивности некогерентного луча, приходящейся на единичный интервал частот.

Недавно Синг и Брэдли [35] наблюдали трехфотонное поглощение в кристаллах нафталина. Интенсивность флуоресценции с длиной волны  $3000 \text{ \AA}$ , возбужденной сфокусированным лучом рубинового лазера, была пропорциональна третьей степени интенсивности излучения основной частоты. При плотности потока фотонов в фокусе  $2 \cdot 10^{27} \text{ см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$  эффективность преобразования составляла около  $10^{-10}$ . Процесс ступенчатого возбуждения, по-видимому, исключен<sup>1)</sup>.

## § 8. Зависимость показателя преломления от интенсивности света

Если в соотношении (5.25) восприимчивость рассматривать как действительную величину, то мы получим феноменологическое описание эффекта, заключающегося

<sup>1)</sup> В последнее время многофотонное поглощение является предметом интенсивных экспериментальных и теоретических исследований. Укажем здесь на экспериментальную работу Н. Делоне и Г. Воронова [65\*], зарегистрировавших семифотонную фотоионизацию благородных газов в поле рубинового лазера; работу [66\*], в которой детально исследовалось двухфотонное поглощение в CdS; исследования Н. Г. Басова и др. [67\*], посвященные вкладу двухфотонных процессов в возбуждение полупроводникового лазера; работу [58\*], где была сделана попытка зарегистрировать двухфотонное поглощение в диэлектриках. Из теоретических работ следует указать на обстоятельную работу Л. В. Келдыша [68\*], посвященную теории многофотонной ионизации газов и твердых тел; работу Голда и Бебба [69\*], связанную с той же проблемой; работу Ф. В. Бункина и А. М. Прохорова [70\*], обсуждавших роль многофотонного поглощения в установлении предельной мощности лазера. Обстоятельный обзор данных по многофотонному поглощению по уровню, достигнутому к концу 1964 г., выполнен А. М. Бонч-Бруевичем и В. А. Ходовым [71\*]. — Прим. ред.

в изменении показателя преломления в зависимости от интенсивности. Для изотропной среды нелинейную поляризацию можно записать в виде

$$P_i^{NL}(\omega) = AE_i(\omega) [E^*(-\omega) \cdot E(\omega)] + \frac{1}{2} BE_i^*(-\omega) [E(\omega) \cdot E(\omega)]. \quad (5.26)$$

Постоянные  $A$  и  $B$  связаны с компонентами симметричного тензора четвертого ранга следующими соотношениями:

$$\chi'_{xxxx}(\omega = -\omega + \omega + \omega) = A + \frac{1}{2} B, \quad (5.27)$$

$$\chi_{xyxy} = A,$$

в результате чего автоматически выполняется условие изотропии<sup>1)</sup>

$$\chi'_{xyxy} = \frac{1}{2} B = \chi'_{xxxx} - \chi'_{xyxy}.$$

Терхьюн и др. [36] обнаружили существование члена  $B$  простым способом. В непоглощающей среде  $A$  и  $B$  действительны. Когда компоненты линейно поляризованной волны, входящие в выражение (5.26), преобразуются к виду

$$P_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (P_x \pm iP_y) \quad \text{и} \quad E_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (E_x \pm iE_y),$$

для зависящих от интенсивности изменений показателей преломления, соответствующих двум круговым поляризациям, можно найти следующие выражения:

$$\delta n_+ = \frac{2\pi}{n_0} [AE_+E_+^* + (A+B)E_-E_-^*], \quad (5.28)$$

$$\delta n_- = \frac{2\pi}{n_0} [AE_-E_-^* + (A+B)E_+E_+^*].$$

<sup>1)</sup> Иногда недиагональные компоненты берутся вдвое большей величины. В таком случае в соотношении (5.27) вместо нашей записи  $\chi'$  надо писать  $\chi_{xyxy} + \chi_{yxyx}$ .

Показатели преломления света с круговой и линейной поляризациями различны. Использовался эллиптически поляризованный свет рубинового лазера, который фокусировался в жидкость через слюдяную пластинку в  $1/8 \lambda$ . Призма Рошона позволяла разделить две линейные поляризации, соответствующие «быстрой» и «медленной» осям пластинки в  $1/8 \lambda$ . При малых интенсивностях лазерного луча интенсивности этих двух поляризаций равны. При больших интенсивностях наблюдается разбаланс, вызванный поворотом эллипсоида поляризации, и описываемый соотношением (5.28). Терхьюн с сотр. измерили константу нелинейности  $B = 2(\chi'_{xxxx} - \chi'_{xyxy})$  для многих жидкостей. Полученные величины лежат в пределах от  $8 \cdot 10^{-15}$  ед. CGSE для воды до  $10^{-13}$  ед. CGSE для сероуглерода<sup>1)</sup> (используется введенное выше определенное амплитуд). Большое значение последней величины обусловлено близостью резонанса для двухфотонного поглощения. Джордмейн [37] действительно наблюдал поглощение излучения рубинового лазера в сероуглероде, зависящее от интенсивности и характеризующееся величиной  $\chi''(\omega = -\omega + \omega + \omega)$ . К сожалению, описанный выше метод трудно распространить на кубические кристаллы. Камнем преткновения является двойное лучепреломление, связанное с напряжениями в твердых телах.

<sup>1)</sup> Наличие таких нелинейных поправок к диэлектрической проницаемости приводит к существенному изменению характера взаимодействия и распространения интенсивных волн в нелинейной среде. При больших интенсивностях света условия согласования фазовых скоростей начинают зависеть от интенсивности; это обстоятельство может влиять на характер параметрических взаимодействий (см. [72\*]). Однако наибольший интерес здесь представляет возможность появления эффектов самофокусировки и самоканализации мощных световых пучков [73\*—75\*]. В среде с показателем преломления, возрастающим с ростом интенсивности света, диаметр фокусного пятна уменьшается, а при определенных условиях возможна и самоканализация пучка. Различные аспекты этой проблемы проанализированы в [73\*—75\*]. Заметим также, что зависимость показателя преломления от интенсивности световой волны может быть связана не только с нелинейной поляризацией, но и с электрострикцией, рассмотренной в гл. 4 этой книги в связи с вынужденным рассеянием Мандельштама — Бриллюэна. — Прим. ред.

### § 9. Вынужденное комбинационное рассеяние

Вудбери и Нг [38] обнаружили, что рубиновый лазер, показанный на фиг. 4, а, добротность которого модулировалась с помощью ячейки Керра на нитробензоле, в дополнение к нормальному излучению рубина с длиной волны 6943 Å испускал интенсивное излучение с длиной волны 7670 Å. Правильное объяснение этого эффекта было дано вскоре Хелворсом и др. [39]. Когда между зеркалами резонатора лазера помещаются различные жидкости, то наблюдается дополнительное излучение света на различных частотах. Все они смещены по отношению к частоте излучения рубина на величину, соответствующую колебательной частоте молекул жидкости <sup>1)</sup>.

Спектры вынужденного комбинационного рассеяния для некоторых жидкостей [39] и твердых тел [40] приведены в табл. 2. В спектре вынужденного комбинационного рассеяния появляются только те частоты, которые соответствуют наиболее узкой и наиболее интенсивной линии спонтанного комбинационного рассеяния. Иногда появляются две линии. Обычно они принадлежат к полносимметричным колебаниям. Указанные выше особенности вынужденного рассеяния не являются неожиданными, поскольку процесс с самым низким порогом будет стремиться ограничить мощность излучения лазера на уровне, меньшем более высоких пороговых значений. Дальнейшее возрастание мощности какачки увеличит интенсивность этой стоксовой линии, но не приведет к появлению других линий спектра комбинационного рассеяния. Однако когда стоксова линия достигнет достаточной интенсивности, она сама создаст новую стоксову линию с частотой  $\omega_L - 2\omega_v$  и т. д. Эти линии более высокого порядка, о существовании которых также говори-

<sup>1)</sup> Материал § 9—11 базируется на результатах опытов, получаемых с рубиновым лазером. Следует отметить, что в последнее время были обнаружены возможности расширения средств экспериментального изучения вынужденного комбинационного рассеяния. Так, в [84\*] сообщается о наблюдении вынужденного рассеяния на  $\lambda \approx 1,06$  мк, а в [85\*] — на  $\lambda \approx 0,53$  мк. Последнее открывает определенные возможности изучения вынужденного рассеяния в резонансных условиях. — *Прим. ред.*

Таблица 2

Сравнение частотных смещений стоксовых линий, излучаемых при вынужденном комбинационном рассеянии, с частотными смещениями наиболее интенсивных линий, испускаемых при спонтанном комбинационном рассеянии [39, 40]

Вещество	Смещение когерентных комбинационных линий по отношению к линии рубина, см <sup>-1</sup>	Смещение двух наиболее интенсивных некогерентных стоксовых линий, см <sup>-1</sup>
Бензол	3064±2 990±2 1980±4	3064 991,6
Нитробензол	1344±2 2·(1346±2) 3·(1340±5)	1345 и 1004
Толуол	1004±4	1002 и 785
1-бромнафталин	1368	1363 и 3060
Пиридин	992±2 2·(992±5)	991 и 3054
Циклогексан	2852±1	801 и 2853
Дейтерированный бензол	944,3±1 2·944	944,7 и 2292
Алмаз	1325 2661	1331,8
Кальцит	1075 2171	1085,6
α-сера	216 472 946	216 и 468

лось в первом сообщении [37], имеют частоты, точно равные гармоникам частоты первого колебательного перехода. Они не могут быть связаны с комбинационным рассеянием второго порядка, возбуждаемым излучением с частотой  $\omega_L$ , при котором молекула совершает переход, сопровождающийся изменением колебательного квантового числа на две единицы. Матричный элемент такого перехода весьма мал, а ангармоничность колебаний до-

статочна велика для того, чтобы не наблюдалось совпадения частоты спонтанного комбинационного рассеяния, обусловленного переходом с изменением колебательного квантового числа на два, равной  $\omega_L - \omega_{v=0 \rightarrow 2}$ , с частотой  $\omega_L - 2\omega_{v=0 \rightarrow 1}$ .

Теория, изложенная в гл. 4, § 5, непосредственно приложима к рассматриваемым здесь явлениям. Нелинейная восприимчивость, описывающая комбинационные рассеяния (комбинационная восприимчивость), дается выражением (4.70), идентичным соотношению, которым пользовались Терхьюн и др. [41]. Напомним, что наша комбинационная восприимчивость в 4 раза больше, что обусловлено измененным определением амплитуд поля. Усиление стоксовых компонент дается выражением (4.68). При заданной мощности излучения лазера наша величина  $|E_L|^2$  в 4 раза меньше, в результате чего усиление стоксовой компоненты на длине в 1 см совпадает со значением, вычисленным Терхьюном для того же уровня мощности. Соотношение (4.70) можно несколько обобщить, если учесть, что в соответствии с распределением Максвелла — Больцмана возбужденное колебательное состояние также может быть частично заселено. Выражение для восприимчивости на стоксовой частоте перепишем здесь в виде

$$-\chi_s'' = \frac{N}{\hbar \Gamma_v} [1 - e^{-\hbar \omega_v / kT}] \left( \frac{\eta \omega_v \alpha_0}{\omega_L - \omega_{ng}} \right)^2. \quad (5.29)$$

Коэффициент нарастания мощности в 2 раза превышает соответствующий амплитудный коэффициент, который дается соотношением (4.68) и равен

$$g_{\text{стокс}} = \frac{8\pi^2 (-\chi_s'') |E_L|^2}{n \lambda_0}. \quad (5.30)$$

В это выражение введены длина волны излучения в вакууме  $\lambda_0$  и показатель преломления среды  $n$ . В выражении (5.30) не учтено различие между  $k_{sz}$  и  $k_s^0$ . Плотность потока мощности в луче лазера равна  $(nc/2\pi) |E_L|^2$ .

В качестве приемлемого значения комбинационной восприимчивости свободной молекулы можно взять величину  $\eta \omega_{ng} \alpha_0 / (\omega_L - \omega_{ng}) \approx 10^{-25}$  ед. CGSE. Как показа-

но в гл. 2, § 8, эта величина непосредственно связана с поперечным сечением некогерентного комбинационного рассеяния. Комбинационная восприимчивость на порядок меньше восприимчивости, обусловленной чисто электронным переходом, при котором не происходит изменения колебательных координат ядер. Для типичного значения ширины линии колебательного перехода  $3 \text{ см}^{-1}$  (отсчет на уровне половины максимальной интенсивности), чему соответствует  $\Gamma_v = 2\pi \cdot 10^{11}$ , и для  $N = 10^{22}$  получаем  $|\chi_s''| \sim 1,6 \cdot 10^{-13}$  ед. CGSE. Если учесть поправочный множитель Лоренца  $(\epsilon_L + 2)^2 (\epsilon_s + 2)^2 / 81$ , то  $|\chi_s''|$  станет равной  $6,5 \cdot 10^{-13}$  ед. CGSE. Эта величина  $|\chi_s''|$  примерно на порядок больше нерезонансных восприимчивостей, рассмотренных в § 8 настоящей главы. Мы получаем выигрыш в  $\omega_v / \Gamma_v \sim 10^3$  раз, вызванный колебательным резонансом, и проигрываем в 10—100 раз из-за существования связи между колебаниями электронов и ядер. Выражение (5.30) дает для коэффициента нарастания по мощности на стоксовой частоте значение  $g_{\text{стокс}} = 1,4 \cdot 10^{-3} \text{ см}^{-1}$  при условии, что плотность потока мощности излучения лазера равна  $2 \text{ Мвт/см}^2$ , чему соответствует  $|E_L| = 53$  ед. CGSE. Усиление стоксовой компоненты за один проход кюветы длиной 10 см равно  $e^{0,014}$ . Для того чтобы при такой величине усиления создать условия, необходимые для генерации, следует использовать зеркала с коэффициентом отражения 99%. Уровень мощности внутри резонатора лазера, вероятно, на порядок выше и равен  $20 \text{ Мвт}$ . В этом случае усиление за один проход кюветы будет равно  $e^{0,14}$  и комбинационный лазер легко возбудится.

Результаты вычислений находятся в удовлетворительном согласии с цифрами, приведенными Хелворсом для нитробензола [42]. По его оценке коэффициент нарастания равен  $0,3 \text{ см}^{-1}$  при уровне мощности накачки  $100 \text{ Мвт/см}^2$ , что соответствует плотности потока фотонов  $3 \cdot 10^{26} \text{ см}^{-2} \cdot \text{сек}^{-1}$ . Согласно измерениям, полное поперечное сечение комбинационного рассеяния, полученное интегрированием по углу  $\Omega = 4\pi$ , равно  $6 \cdot 10^{-30} \text{ см}^2$ . Частота колебательного перехода равна  $1345 \text{ см}^{-1}$ ; полуширина линии составляет  $4 \text{ см}^{-1}$ . В ре-

зультате величина  $|\chi_s^*|$  для нитробензола оказывается равной  $2,4 \cdot 10^{-12}$  ед. CGSE. Точность определенного таким способом значения  $|\chi_s^*|$  невелика. Все проблемы, обсужденные в § 2 при рассмотрении нелинейности низшего порядка, возникают снова и в более сложном виде при исследовании комбинационного рассеяния. Измерения поперечного сечения комбинационного рассеяния в бензоле, где  $\omega_v/2\pi c = 992 \text{ см}^{-1}$  и  $\Gamma_v/2\pi c = 3,1 \text{ см}^{-1}$ , дают для комбинационной восприимчивости величину  $(4,8 \pm 1,2) \cdot 10^{-12}$  ед. CGSE. Это значение удовлетворительно совпадает с результатами, полученными при измерении порога генерации комбинационного лазера на бензоле <sup>1)</sup>.

За исключением специфического провала (см. фиг. 19) вблизи направления согласования фазовой скорости антистоксовой компоненты с фазовой скоростью излучения основной частоты, коэффициент усиления вынужденного комбинационного рассеяния почти изотропен. Действительно, оказывается возможным получить вынужденное излучение со стоксовой частотой, идущее под углом к лазерному лучу накачки [43]. Конечно, при параллельном расположении лучей объем взаимодействия оказывается обычно намного больше. Так как эффективная длина взаимодействия для внеосевого направления меньше, то для возбуждения рассеяния в этом направлении величину отражений для излучения со стоксовой частотой, идущего вперед, следует свести к минимуму, а на пути внеосевого луча установить зеркала с высоким коэффициентом отражения. Если сфокусировать лазерный луч диаметром 1 см с помощью цилиндрической линзы, то в фокусе ее перпендикулярно направлению исходного луча образуется линия длиной 1 см с высокой плотностью мощности накачки. Создав обратную связь с помощью зеркал, расположенных перпендикулярно этой линии. Танненвальд [44] осуществил генерацию стоксовой компоненты в направлении, образующем прямой угол с накачкой.

<sup>1)</sup> Значительные трудности в сравнении экспериментальных и теоретических данных связаны с многомодовой структурой лазерного излучения (см. [78\*—83\*]). — Прим. ред.

Начальные условия, необходимые для самовозбуждения колебаний, определяются шумами. Проще всего рассмотрим спонтанное комбинационное рассеяние, возникающее в слое вещества, перпендикулярном направлению распространения излучения со стоксовой частотой, поскольку источником входного сигнала для усилителя на стоксовой частоте является излучение, испускаемое соседними слоями. Анализ процесса самовозбуждения комбинационного лазера полностью аналогичен исследованию процесса установления колебаний в лампах бегущей волны. Условие существования стационарных колебаний можно в общем случае записать в «баркгаузеновской» форме

$$r_1 r_2 e^{2i(k_s + \Delta k)d} = 1. \quad (5.31)$$

Здесь  $r_1$  и  $r_2$  — коэффициенты отражения двух зеркал для комплексной амплитуды на частоте  $\omega_s$ ,  $d$  — длина кюветы,  $\Delta k$  — комплексный корень, определяемый соотношением (4.66) или (4.67). Это условие является выражением того факта, что для незатухающих колебаний усиление по амплитуде в замкнутом контуре равно единице. Мнимая часть выражения (5.31) эквивалентна условию возбуждения колебаний в лазере, выведенному Таунсом и Шавловым. Она определяет пороговое значение  $|E_L|^2$ . Если в начальный момент величина  $|E_L|^2$  больше порогового значения, то амплитуда колебаний со стоксовой частотой будет расти до тех пор, пока дополнительные потери не уменьшат уровень накачки до некоторого установившегося значения. Действительно, в стационарном состоянии должны удовлетворяться одновременно два условия возбуждения колебаний на частотах  $\omega_L$  и  $\omega_s$ . Действительная часть выражения (5.31) определяет частоту колебаний. При достаточно большой естественной ширине линий комбинационного рассеяния точное значение частоты определяется расстоянием между зеркалами  $d$ . Если зеркала расположены не на концах кюветы, то левую часть выражения (5.31) следует, конечно, умножить еще на соответствующие экспоненты, описывающие распространение в других средах, находящихся в резонаторе.

Интенсивность стоксовой компоненты может вырасти до такой величины, что она сможет сама служить накачкой для второй стоксовой линии и т. д. Генерацию на этих новых частотах можно подавить с помощью селективных просветляющих покрытий на окошках или специальных поглотителей в кювете для комбинационного рассеяния. Без таких предосторожностей при возрастании мощности лазерной накачки мощность выходного излучения будет распределяться по все возрастающему числу стоксовых компонент сравнимой интенсивности. Наблюдались случаи, когда более 60% выходной мощности излучалось на стоксовых частотах. Вероятно, коэффициент преобразования мог бы быть и выше<sup>1)</sup>, если бы этому не препятствовало то обстоятельство, что луч лазера обычно далек от однородной плоской волны. Части луча, где интенсивность невысока, преобразуются только частично или вообще не преобразуются. С точки зрения эффективности преобразования рубиновый лазер, дающий излучение в виде немногих очень ярких нитей, был бы лучше лазера, дающего луч с равномерным распределением интенсивности по поперечному сечению, при условии, что полные потоки мощности в обоих случаях одинаковы. Изменение интенсивности лазера во времени также играет важную роль.

Экспериментально в нефокусированных лучах, усиленных в лазерном усилителе, можно получить пиковые мощности, превышающие 500 Мвт. В этом случае в нитробензоле на длине 10 см усиление на стоксовой частоте равнялось бы  $e^{15}$ . Очевидно, что обратная связь, созданная случайным рассеянием всего лишь одной миллионной доли излучения, была бы достаточна для того, чтобы в системе возникла генерация. На пути в 30 см усиление равнялось бы  $e^{45}$ . Это означает, что один входной фотон создавал бы в среднем  $10^{20}$  фотонов. Однако это число больше начального числа квантов лазерного излучения, которое не превышает обычно  $10^{18}$ . Поэтому интенсивность лазерного луча уменьшается, прежде чем он до-

<sup>1)</sup> Для теоретического исследования вопроса о предельном к. п. д. лазера, использующего эффект вынужденного комбинационного рассеяния, надо решить систему (4.72), (4.73) в резонаторе. Результаты такого анализа сообщаются в [87\*, 88\*]. — Прим. ред.

стигнет конца кюветы. Если диаметр луча равен 1 см, то заметное усиление на стоксовой частоте существует вплоть до углов в несколько градусов. Соответствующее излучение со стоксовой частотой, идущее вперед под малыми углами к направлению основного луча, можно обнаружить, если оно пройдет в кювете путь длиной около 15 см. Из-за экспоненциального характера усиления излучение представляется выходящим из определенного места в кювете. Это излучение можно рассматривать как усиленные шумы. Если кювета короче, то для получения заметной интенсивности необходима некоторая минимальная обратная связь. Даже в кюветах с брюстеровскими окнами существует достаточное рассеяние в обратном направлении, равное примерно  $10^{-6}$ . В этом случае внесевое излучение со стоксовой частотой кажется выходящим из области размером в несколько миллиметров, расположенной в самом конце кюветы, так как такие лучи усиливаются больше всего. В коротких кюветах, длина которых, например, меньше 10 см, эффектами запаздывания можно пренебречь. Усиление в обратном направлении должно быть таким же, как в параллельном ему прямом направлении. Однако предварительные экспериментальные данные показали, что интенсивность излучения, направленного назад, меньше в 2—4 раза. Если, как предполагалось в гл. 4, § 5, постоянная затухания изменяется в зависимости от направления на несколько процентов, то это приведет к уменьшению усиления от величины  $e^{20}$  для излучения, направленного вперед, до величины  $e^{19}$  для излучения, направленного назад, что достаточно для объяснения указанного эффекта.

## § 10. Стоксовы и антистоксовы компоненты высших порядков

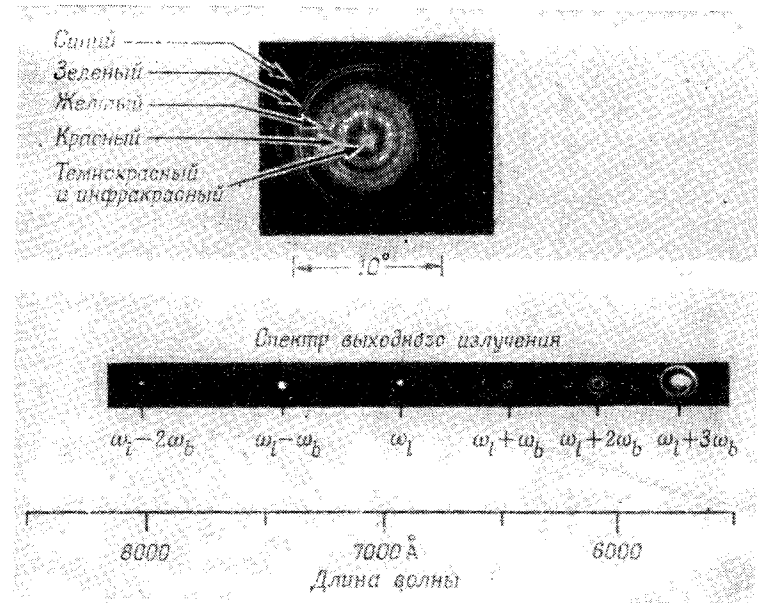
Фокусируя луч лазера, нетрудно получить плотности потока мощности, превышающие  $1000 \text{ Мвт/см}^2$ . Терхьюн [45] первый осуществил эксперимент, схема которого показана на фиг. 4, б. Он обнаружил, что бензол, жидкий азот и некоторые другие жидкости, кроме интенсивных стоксовых компонент различных порядков, испускают еще

свет, образующий цветные кольца. Вскоре после этого об аналогичных наблюдениях сообщили и другие исследователи [46, 47].

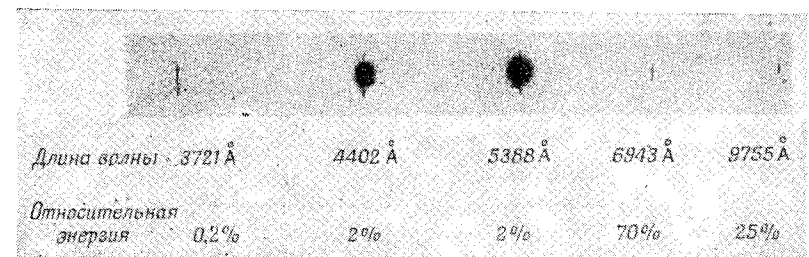
Типичное распределение интенсивности по частотам и направлениям показано на фиг. 29. Частотный спектр, проинтегрированный по всем направлениям, можно получить с помощью спектрального прибора высокой разрешающей силы, на щель которого проектируется изображение матовой стеклянной пластинки, расположенной за кюветой комбинационного рассеяния в непосредственной близости от нее. Стойчев [46] указал на некоторые характерные особенности, относящиеся к ширине и структуре линий. При очень высоких уровнях мощности происходит уширение линий, которое может достигать  $50 \text{ см}^{-1}$ , что в 10 раз превышает ширину линии спонтанного комбинационного рассеяния<sup>1)</sup>. Вблизи от порога антистоксовы линии могут быть значительно более узкими, чем Г, и иметь ширину  $0,2 \text{ см}^{-1}$ .

Терхьюн и др. [48] обнаружили очень сильное излучение с антистоксовой частотой, испускаемое газами в прямом направлении. Полученный в этом эксперименте спектр  $H_2$  приведен на фиг. 30. Свет, идущий в прямом направлении, кажется белым, потому что все конусы антистоксовых компонент перекрываются. Несмотря на относительно малое число молекул в единице объема, находящихся в данном колебательно-вращательном состоянии, эффект, наблюдаемый в газах, оказывается сильным из-за очень малой ширины линии Г. При давлениях выше одной атмосферы ширина линии обратно пропорциональна давлению. В соответствии с выражением (5.29) это означает независимость усиления на единицу длины от давления газа, что и наблюдается экспериментально. При низких давлениях величина Г определяется доплеровской шириной. Однако при приближении к таким давлениям ширина спектра выходного излучения лазера, равная обычно  $0,1 \text{ см}^{-1}$ , становится сравнимой с Г. В этом случае при заданной полной мощности излучения лазера усиление перестает быть независимым от

<sup>1)</sup> Возможные причины уширения линий вынужденного комбинационного рассеяния обсуждаются в [86\*]. — *Прим. ред.*



Фиг. 29. Распределение по направлениям и частотам интенсивности стоксовых и антистоксовых компонент, возникающих в бензоле при возбуждении фокусированным лучом рубинового лазера с модулируемой добротностью (по данным работы [18]).



Фиг. 30. Спектр излучения когерентного комбинационного рассеяния, возникающего при фокусировке в газообразном водороде луча рубинового лазера с модулируемой добротностью (по данным работы [48]).

Снимок получен за один импульс, длительность которого равна  $2 \cdot 10^{-8}$  сек.  
16 Н. Бломберген



давления. Не все моды лазерного луча могут возбуждать данную моду излучения со стоксовой частотой. В таком случае надо брать свертку лоренцевского контура колебательной линии и спектрального распределения излучения лазера.

Терхьюн и др. [48] оценили, что за один проход через фокус в газообразном водороде усиление должно составлять  $e^{500}$ . Как показано в § 1, при фокусировке луча, имеющего только дифракционную расходимость, интенсивность в области фокуса увеличивается в  $(d/\delta)^2 \sim \sim f^{-2}$  раз. Однако эффективная длина фокуса уменьшается в  $f^{+2}$  раза. Поэтому усиление стоксовой компоненты за один проход через фокус не зависит от  $f$  и в соответствии с соотношениями (5.1), (5.2) и (5.30) дается выражением

$$g_{sz} \cdot \xi = \frac{8\pi^2(-\chi_s'')|E_L|^2}{n\lambda_0} \left(\frac{d}{\delta}\right)^2 \xi = \frac{8\pi^2(-\chi_s'')|E_L|^2}{n\lambda} \frac{2nd^2}{\lambda_0}.$$

Соответствующее усиление на 3 дБ больше усиления, которое получается в нефокусированном луче на длине, необходимой для того, чтобы диаметр луча с дифракционной расходимостью увеличился в 2 раза.

Данные, полученные в самое последнее время, показали, что даже в жидкостях и твердых телах помимо излучения, выходящего по образующей конуса, существует интенсивное излучение с частотой  $\omega_a = \omega_L + \omega_s$ , идущее в прямом направлении. Углы конусов, измеренные в жидкостях, а также спектральная ширина различных стоксовых и антистоксовых линий определяются, по-видимому, особенностями экспериментальной установки и свойствами фокуса.

Чао и Стойчев [49] точно измерили углы при вершине конусов в кальците. В этом случае ввиду возможного разрушения кристалла под действием излучения очень высокой интенсивности лазерный луч фокусировался в точку, расположенную вне его. Как указывалось выше, все излучение комбинационного рассеяния представляется выходящим из конца кристалла. Чао и Стойчев наблюдали также темные кольца в угловом распределении интенсивности стоксовых компонент различных порядков и яркие кольца на антистоксовых частотах. Значе-

ния половинных углов, под которыми выходит излучение различных антистоксовых компонент, приведены в табл. 3, где даны также углы, соответствующие точному согласованию фазовых скоростей, вычисленные с помощью известных величин линейных показателей преломления.

Таблица 3

Экспериментальные углы испускания антистоксовых компонент различных порядков, возбуждаемых лучом рубинового лазера в кальците, и вычисленные направления точного согласования фазовых скоростей [49]

Частота	Длина волны, Å	Угол испускания излучения, $10^{-2}$ рад		
		наблюдаемая величина	величина, экстраполированная к линзе с бесконечно большим фокусным расстоянием	значение, вычисленное для точного согласования фазовых скоростей
$\omega_L + \omega_s$	6456,0	$2,89 \pm 0,03$	$2,50 \pm 0,03$	2,49
$\omega_L + 2\omega_s$	6033,2	$5,42 \pm 0,08$	$5,03 \pm 0,08$	4,91
$\omega_L + 3\omega_s$	5662,3	$7,80 \pm 0,2$	$7,64 \pm 0,2$	7,29
$\omega_L + 4\omega_s$	5334,4	$10,64 \pm 0,4$	$10,2 \pm 0,4$	9,61

Можно дать следующее объяснение углового распределения интенсивности излучения на стоксовой частоте. Хотя усиление на единицу длины почти изотропно, при отклонениях от направления луча на несколько градусов интенсивность быстро падает из-за сокращения эффективной длины взаимодействия с лучом лазера. Заметим, что в силу экспоненциального характера усиления даже очень небольшое изменение длины пути, изменяющейся приблизительно как  $(\cos \theta)^{-1}$ , может вызвать сильное изменение наблюдаемой интенсивности. При угле  $\theta_0$ , соответствующем точному линейному<sup>1)</sup> согласованию фазовых скоростей  $k_s^0 + k_a^0 = 2k_L^0$ , имеется показанный на фиг. 19 очень узкий провал, не связан-

<sup>1)</sup> Термином «линейное» автор подчеркивает, что используются значения волновых чисел, полученные из измерений в линейном режиме. — Прим. ред.

ный с указанным геометрическим эффектом. Этот провал объясняет появление темного кольца на фоне излучения стоксовой частоты в кальците. В других веществах такое кольцо также должно существовать, но, по-видимому, его маскирует рассеянный свет.

В соответствии с изложенным в гл. 4, § 6 в усиленной волне всегда присутствует излучение с антистоксовой частотой. В прямом направлении усиление настолько велико, что это излучение можно обнаружить. В соответствии с выражениями (4.92) и (4.68) или (5.30) отношение интенсивностей антистоксовой и стоксовой компонент составляет  $(\frac{1}{2} g_s)^2 \Delta k^{-2}$ , что равно приблизительно квадрату усиления по амплитуде на длине когерентного взаимодействия. Для нитробензола  $\Delta k^{-1}$  в прямом направлении равно приблизительно  $10^{-2}$  см. При усилении по мощности 10 дБ/см отношение интенсивностей было бы равно 0,01%, что дает, по-видимому, правильный порядок величины.

Около направления линейного согласования фазовых скоростей постоянная нарастания уменьшается, а относительная интенсивность антистоксовой компоненты растет. На фиг. 20 интенсивность антистоксовой компоненты дана как функция  $\Delta k$  для двух типичных значений усиления в прямом направлении. Когда усиление равно 120 дБ, антистоксовая компонента максимальна в том направлении, для которого рассогласование фазовых скоростей составляет  $\Delta k = 2 g_s$ . Это рассогласование не очень чувствительно к величине полного усиления. Отклонение поперечной составляющей волнового вектора от направления согласования фазовых скоростей можно определить из соотношения

$$(k_x^0 + \Delta k_x)^2 + \left(k_{zs}^0 - \frac{1}{2} \Delta k\right)^2 = (k_x^0)^2 + (k_{zs}^0)^2 = (k_s^0)^2.$$

Для малых относительных изменений  $k_x$  получаем

$$\Delta k_x = \frac{1}{2} \frac{k_{sz}^0}{k_x^0} \Delta k = \frac{\Delta k}{2 \operatorname{tg} \theta_0},$$

где  $\theta_0$  — направление точного согласования фазовых скоростей; для излучения рубина, идущего в нитробен-

золе,  $\theta_0 = 2,5^\circ$ . Угол, под которым излучение с антистоксовой частотой наблюдается вне кюветы, определяется соотношением  $\sin \theta = (k_x^0 + \Delta k_x) / k_s^{\text{бак}}$ , где  $k_s^{\text{бак}}$  — волновой вектор в вакууме. Для малых углов и малых изменений сразу же получаем

$$\frac{\Delta \theta}{\theta_0} = \frac{\Delta k_x}{k_x^0} = \frac{\Delta k}{2 k_s^0 \operatorname{tg}^2 \theta_0}.$$

Направление, соответствующее максимуму интенсивности антистоксовой компоненты, отклоняется от направления точного согласования на угол

$$\Delta \theta = \frac{\theta_0 g_s}{k_s^0 \operatorname{tg}^2 \theta_0} \approx \frac{g_s}{k_s^0 \theta_0}. \quad (5.32)$$

Для  $g_s = 4 \text{ см}^{-1}$ , соответствующего усилению 18 дБ/см, находим, что в нитробензоле  $\Delta \theta = 0,1^\circ$ . В области фокуса усиление может даже превысить это значение; соответственно больше будет и величина  $\Delta \theta$ . Сообщалось, что экспериментальное значение угла, соответствующего первому антистоксову кольцу в нитробензоле, равно  $3,1^\circ$ , откуда  $\Delta \theta = 0,6^\circ$ . Другие исследователи дают иные значения для отклонения. Результаты, по-видимому, очень чувствительны к изменению условий эксперимента. Чао и Стойчев получили меньшие отклонения  $\Delta \theta$  в кальците, когда пользовались более длиннофокусными линзами. Экспериментальное значение, экстраполированное к бесконечно большой фокусной длине,  $\Delta \theta \sim 0,1^\circ$ .

Так как предположения, на которых основана теория, изложенная в гл. 4, § 6, не выполняются в условиях реального эксперимента, то можно считать, что теория не расходится с экспериментальными результатами. Происходит уменьшение мощности излучения лазера, и не подавляются высшие стоксовы и антистоксовы комбинационные частоты. Весьма важным фактором является, по-видимому, также то, что распределение интенсивности в луче лазера очень неравномерно.

Можно показать, что наблюдаемое излучение антистоксовой частоты должно идти преимущественно через область максимальной интенсивности луча лазера. Как следует из рассмотрения кривых фиг. 20, излучение, про-

ходящее через эту область под углом меньшим  $\theta_0 + \Delta\theta_{\text{макс}}$ , усилится незначительно. Излучение, идущее под большим углом, будет получать, однако, достаточное усиление. Кривые усиления на фиг. 20 показывают, что интенсивность антистоксовой компоненты быстро уменьшается при углах, меньших  $\theta_0 + \Delta\theta_{\text{макс}}$ , где  $\Delta\theta_{\text{макс}}$  равно угловому отклонению, соответствующему области максимального усиления.

Для газов направление согласования фазовых скоростей, совпадает по существу с прямым направлением луча,  $k_x^0 = 0$ . В этом случае максимальное усиление антистоксовой компоненты получается для угла

$$\theta_{\text{макс}} \approx \sin \theta_{\text{макс}} = \frac{\Delta k_x}{k_s^0} = \frac{(\Delta k k_{sz}^0)^{1/2}}{k_s^0} \approx \left( \frac{2g_s}{k_s^0} \right)^{1/2}.$$

При  $g_s = 4$ , соответствующему усилению 18 дБ/см, этот угол равен  $8 \cdot 10^{-3}$  рад или приблизительно  $0,5^\circ$ . Он растет как квадратный корень из постоянной нарастания. В газе излучение с антистоксовой частотой идет преимущественно в прямом направлении, хотя и не совсем точно. Усиление на стоксовой частоте также должно иметь провал вблизи прямого направления. Однако из-за рассеяния и влияния геометрических факторов он может быть незаметен.

Генерация высших комбинационных частот может быть связана с различными механизмами, обсуждавшимися Терхьюном [41], Гармайром, Пандарезе и Таунсом [50]. Направленные вперед высшие стоксовы линии излучения  $\omega_{ss} = \omega_L - 2\omega_v$ ,  $\omega_{sss} = \omega_L - 3\omega_v$  и т. д. можно получить с помощью указанного ранее процесса каскадного комбинационного рассеяния. В распределении по углам интенсивности излучения с частотой  $\omega_{ss}$  также имеется темное кольцо, характеризующееся волновым вектором  $\mathbf{k}_{ss}$ . Оно вызвано параметрической связью, существующей между четырьмя волнами. К ним относятся волна антистоксовой частоты, волновый вектор которой  $\mathbf{k}_a^{\text{макс}}$  совпадает с направлением яркого кольца, волна излучения лазера с волновым вектором  $\mathbf{k}_L$  и волна со стоксовой частотой, выбранная из направленного вперед конуса стоксовой компоненты так, чтобы удов-

летворялось соотношению  $\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_L = \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_{ss}$ . Величины, находящиеся в левой части этого соотношения, полностью определены и по величине и по направлению. Значения волновых векторов в правой части определяются линейной дисперсией вещества. Таким способом можно найти направление  $\mathbf{k}_{ss}$ . Появление соответствующего кольца вызывается нелинейным источником

$$\mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_{ss}) = \chi \mathbf{E}_a^* \mathbf{E}_L \mathbf{E}_s e^{i(\mathbf{k}_L + \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_a) \cdot \mathbf{r} - i\omega_{ss} t}.$$

Аналогичным образом появление яркого антистоксова кольца второго порядка будет вызываться нелинейным источником

$$\mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_{aa}) = \chi \mathbf{E}_a \mathbf{E}_L \mathbf{E}_s^* e^{i(\mathbf{k}_a + \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s) \cdot \mathbf{r} - i\omega_{aa} t}.$$

Процесс можно повторить; например, кольцо на частоте  $\omega_{aaa} = \omega_L + 3\omega_v$  будет создаваться источником

$$\mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_{aaa}) = \chi \mathbf{E}_{aa}^* \mathbf{E}_L \mathbf{E}_s e^{i(\mathbf{k}_{aa} + \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s) \cdot \mathbf{r} + i\omega_{aaa} t}$$

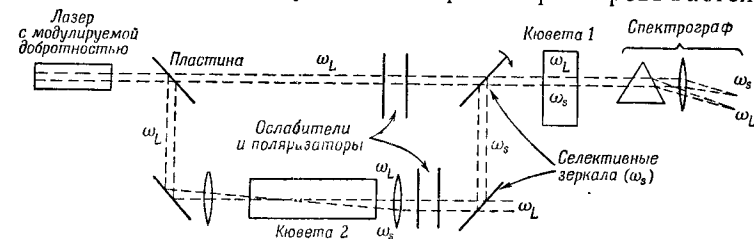
в направлении, определяемом векторами  $\mathbf{k}_{aaa}$  и  $\mathbf{k}_s$ , для которых выполняется соотношение согласования фазовых скоростей  $\mathbf{k}_{aaa} + \mathbf{k}_s = \mathbf{k}_{aa} + \mathbf{k}_L$ . Экспериментально наблюдалось 5—6 антистоксовых колец и столько же стоксовых колец высшего порядка. Это указывает на то, что волны достаточно интенсивны для того, чтобы смешиваться друг с другом много раз. Возможно этим же обусловливается большая спектральная ширина компонент, которая в 5—10 раз превышает ширину спонтанных линий. Кривые усиления на фиг. 20, обсуждавшиеся в гл. 4, § 6, показывают, что существует значительное усиление в интервале частот, равном по порядку половине ширины линии. В дополнение к возбуждению поляризации с частотой  $\omega_{aaa}$  фурье-компоненты с частотой  $\omega_{aa}$  могут снова смешиваться с излучением лазера  $\omega_L$  и компонентами частоты  $\omega_s$ , воссоздавая излучение частоты  $\omega_a$ . Однако ширина линии этого вновь созданного излучения будет определяться сверткой первоначального контура линии с самим собой. Если такую свертку повторить 5 раз, то ширина линий может достичь значения 5Г и более. Это рассуждение носит лишь качественный характер. Волны и их взаимодействия настолько интенсивны, что для получения количественных резуль-

татов потребовалось бы решить полную систему уравнений для всех связанных волн. Параметрическое описание может дать лишь качественную картину явления. Точное положение темных и ярких колец высших порядков можно определить, только используя метод связанных волн.

## § 11. Комбинационные восприимчивости

Возбуждение волн со стоксовыми и антистоксовыми частотами в сфокусированном лазерном луче высокой интенсивности является замечательным явлением, однако экспериментальные условия не обладают достаточной определенностью для того, чтобы проверить теорию и выяснить природу различных физических механизмов этого явления. Возникшую здесь ситуацию можно сравнить с изучением работы и характеристик электронной лампы. В первую очередь лампа исследуется как усилитель слабых сигналов, а не как мощный генератор. С этой точки зрения свойства веществ, используемых в комбинационном лазере, должны исследоваться в тонких кюветах такой толщины, при которой невозможно самовозбуждение колебаний на комбинационных частотах под действием интенсивного лазерного излучения с частотой  $\omega_L$ . В этом случае можно измерить усиление, если направить в кювету также излучение малой интенсивности с частотами  $\omega_s$  или  $\omega_a$ . Экспериментально всегда можно поддерживать усиление на уровне меньшем чем 2—3 раза. При этом не будет ни уменьшения интенсивности лазерного излучения, ни заметного возбуждения стоксовых и антистоксовых линий высших порядков. При такой постановке опыта можно независимо контролировать интенсивность, поляризацию, направление и частоту луча лазера и луча стоксовой частоты. В идеальном случае каждый из лучей состоял бы только из одной моды, т. е. был бы монохроматичным и имел бы только дифракционную расходимость. Такие эксперименты могли бы дать надежные значения комбинационных восприимчивостей и обеспечить детальную проверку теории, изложенной в гл. 2 и 4. Схема возможной экспериментальной установки приведена на фиг. 31.

Луч мощного лазера делится на две части, одна из которых используется для генерации излучения со стоксовой частотой в кювете для комбинационного рассеяния. После этого излучение лазера отфильтровывается,



Фиг. 31. Схема экспериментальной установки для измерения комбинационных восприимчивостей.

Усиление на стоксовой частоте определяется в тонкой кювете 1 в зависимости от интенсивности, направления и поляризации луча лазера и стоксовой компоненты, получаемой в кювете 2.

и стоксова компонента после соответствующего ослабления и выставления поляризации смешивается с оставшейся частью луча лазера, причем направление стоксовой компоненты можно менять по отношению к направлению луча. Затем эти два луча пропускаются через тонкую кювету, в которой находится образец исследуемого вещества. Таким методом можно измерить усиление как функцию направления, поляризации и интенсивности. Можно также исследовать генерацию антистоксовой компоненты вблизи от направления согласования фазовых скоростей.

Брет и Майер [51] провели такой эксперимент, хотя угол между направлениями лучей со стоксовой и антистоксовой частотами у них не варьировался. В их случае оба излучения с частотами  $\omega_L$  и  $\omega_s$  генерировались в комбинационном лазере, после чего лучи по отдельности ослаблялись селективными фильтрами. Направление поляризации в лучах задавалось, причем угол между направлениями поляризаций можно было изменять, пропуская излучение через пластинку заданной толщины, создававшей нужную разность фаз. Используя этот метод, они обнаружили, что усиление стоксовой компоненты в бензоле с поляризацией, перпендикулярной поляризации лазера, исчезающе мало по сравнению с тем

случае, когда обе поляризации параллельны. Это не значит, что компонента тензора  $\chi_{xxxy}$  очень мала по сравнению с  $\chi_{xxxx}$ . Экспоненциальный характер усиления приводит к тому, что различие между величинами этих компонент в 1,5—2 раза достаточно для того, чтобы отношение наблюдаемых интенсивностей стоксовых компонент с двумя возможными поляризациями было велико. Был обнаружен также важный эффект насыщения усиления, заключающийся в том, что усиление зависит от интенсивности усиливаемой стоксовой компоненты.

Терхьюн [52] исследовал параметрическое взаимодействие, приводящее к появлению излучения с частотой  $2\omega_L - (\omega_L - \omega_v) = \omega_L + \omega_v$  в тонких образцах различных кубических кристаллов и жидкостей. Фокусированный луч комбинационного лазера на бензоле содержал линейно поляризованный свет с частотами  $\omega_L$  и  $\omega_L - \omega_v$  с  $\omega_v/2\pi c = 992 \text{ см}^{-1}$ . Излучения со всеми другими частотами были отфильтрованы из луча. В пластинках, вырезанных из кубических кристаллов, свет распространялся вдоль оси [001]. Угол между осью [100] и направлением параллельных поляризаций излучений с частотами  $\omega_L$  и  $\omega_L - \omega_v$  обозначается через  $\theta$ . При  $\theta = 45^\circ$  интенсивность излучения с частотой  $\omega_L + \omega_v$  оказывается другой, чем при  $\theta = 0$  и  $90^\circ$ , что указывает на анизотропию тензора восприимчивости четвертого ранга в кубических кристаллах.

При изменении толщины кристаллов параметрическое взаимодействие обнаруживает типичные осцилляции. Длина когерентного взаимодействия для трех волн, распространяющихся в направлении оси  $z$ , составляет около 1 мм. Относительная интенсивность света с частотой  $\omega_L + \omega_v$  определяет величину компонент тензора восприимчивости четвертого ранга. Сигналом сравнения служил сигнал, выходящий из бензола. Эффект, наблюдаемый в бензоле, является, конечно, наиболее сильным, что связано с резонансом для комбинационной восприимчивости. В других веществах измеряется существенно нерезонансная компонента тензора нелинейной восприимчивости. Численные значения восприимчивостей

$$\chi_{xxxx}[\omega = -(\omega_L - \omega_{v, \text{бензол}}) + \omega_L + \omega_L] \quad (5.33)$$

для различных кристаллов и жидкостей приведены во втором столбце табл. 4. В третьем столбце даны отно-

Таблица 4

**Восприимчивость  $\chi_{xxxx}$  различных кубических кристаллов и жидкостей**

Восприимчивость  $\chi_{xxxx}$  соответствует формуле (5.33). Частота  $\omega_L$  равна частоте излучения рубинового лазера;  $\omega_v/2\pi c = 992 \text{ см}^{-1}$ .

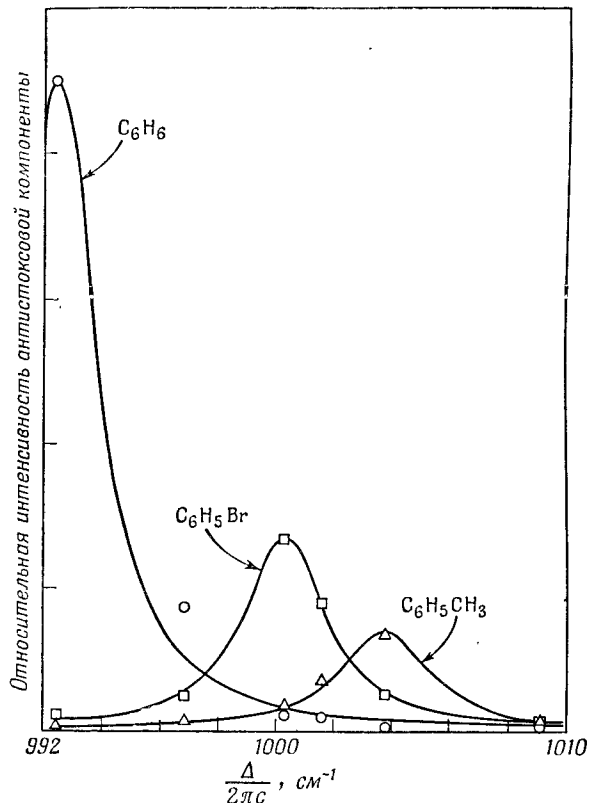
Коэффициент анизотропии дан в третьем столбце. Длина когерентного взаимодействия для параметрической генерации излучения с частотой  $\omega_L + \omega_v$  дана в четвертом столбце (по данным Терхьюна).

Вещество	$ \chi_{xxxx}  \cdot 10^{13}$ $\text{эрг}^{-1} \text{см}^3$	$\chi_{xxxx}$	$l_{\text{ког}}, \text{мм}$
		$\chi_{xyxy} + \chi_{xyyx}$	
LiF	0,24	$+0,74 \pm 0,10$	3,27
KI	0,29	0,54	0,45
CaF <sub>2</sub>	0,4	0,66	2,94
MgO	1,2	0,61	1,27
KCl	2,3	1,10	0,92
NaCl	2,1	0,78	0,88
KBr	3,6	0,91	0,67
Плавл. SiO <sub>2</sub>	0,8	1	1,45
C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> CH <sub>3</sub>	4,8	1	0,80
C <sub>6</sub> H <sub>5</sub> Br	7,2	1	0,65
C <sub>6</sub> H <sub>6</sub>	48 <sup>1)</sup>	1	0,70

<sup>1)</sup> Это резонансное значение вычислено по величине поперечного сечения комбинационного рассеяния. Оно используется при определении абсолютных нерезонансных значений восприимчивостей  $\chi_{xxxx}$ , приведенных в этом столбце для других веществ.

шения  $\chi_{xxxx}/(\chi_{xyxy} + \chi_{xyyx})$ , характеризующие анизотропию (ср. со сказанным в § 8). Длина когерентного взаимодействия, помещенная в последнем столбце, вычислена по известной величине линейной дисперсии среды. Комбинационная восприимчивость для бензола, определенная по величине поперечного сечения комбинацион-

ного рассеяния, использовалась в качестве опорного значения, так как абсолютные измерения сопряжены с указанными ранее трудностями.



Фиг. 32. Зависимость комбинационной восприимчивости  $|\chi_a^{1/2} \chi_g^{1/2}|$ , описывающей генерацию антистоксовой компоненты с частотой  $\omega_L + \Delta = \omega_L + \omega_L - (\omega_L - \Delta)$ , от  $\Delta$  вблизи частоты колебательного резонанса  $\omega_g$  (по данным Терхьюна).

Терхьюн [52] сумел также получить резонансные кривые комбинационной восприимчивости, используя комбинационные лазеры с кюветами, в которые помещались различные жидкости с почти равными колебательными резонансными частотами. Он использовал в гене-

раторе следующие жидкости: бензол (частота колебаний  $\Delta/2\pi c = 992,4 \text{ см}^{-1}$ ), анилин ( $996,8 \text{ см}^{-1}$ ), бромбензол ( $1000,3 \text{ см}^{-1}$ ), бензонитрил ( $1001,6 \text{ см}^{-1}$ ), толуол ( $1003,8 \text{ см}^{-1}$ ), фторбензол ( $1009,1 \text{ см}^{-1}$ ). Зависимость величины сигнала от частоты  $\omega_L + \Delta$  для бензола, бромбензола и толуола показана в виде кривых на фиг. 32. Терхьюн использовал также дейтерированный бензол с  $\Delta/2\pi c = 945 \text{ см}^{-1}$  для измерения нерезонансной части тензора комбинационной восприимчивости. Он нашел, что для бензола  $\chi^{NR}/(\chi_a \chi_s)^{1/2} = 0,05$ , для бромбензола 0,25 и для толуола 0,16. Для согласования с результатами этих измерений кривые фиг. 32 должны иметь несколько большую асимметрию.

Очевидно, что потребуется еще выполнить большую работу по тщательному количественному определению комплексных комбинационных восприимчивостей, их симметрии и дисперсионных свойств твердых тел, жидкостей и газов. Однако начало этой работе положено, и можно ожидать, что в ближайшем будущем она будет успешно продолжаться.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Franken P. A., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 7, 118 (1961).
2. Giordmaine J. A., Phys. Rev. Lett., 8, 19 (1962).
3. Maker P. D., Terhune R. W., Nisenoff M., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., 8, 21 (1962).
4. Terhune R. W., Maker P. D., Savage C. M., Appl. Phys. Lett., 2, 54 (1963).
5. Born M., Wolf E., Principles of Optics, London, 1959, p. 434.
6. Kleinman D. A., Phys. Rev., 128, 1761 (1962).
7. Ducuing J., Bloembergen N., Phys. Rev. Lett., 10, 474 (1963).
8. Bass M., Franken P. A., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 8, 18 (1962).
9. Smith A. W., Braslau N., IBM Journ. Res., 6, 361 (1962).
10. Ward J. F., Franken P. A., Phys. Rev., 133, A183 (1964).
11. Kaminow I. P., Phys. Rev. Lett., 6, 528 (1961).
12. Rigrod W. W., Kaminow I. P., Proc. IEEE, 51, 137 (1963).
13. Niebuhr K. E., Appl. Phys. Lett., 2, 136 (1963).
14. Ashkin A., Boyd G. D., Dziedzic J. M., Phys. Rev. Lett., 11, 14 (1963).
15. Ducuing J., Bloembergen N., Phys. Rev., 133, 1493 (1964).
16. Forrester A. T., Gudmundsen R. A., Johnson P. O., Phys. Rev., 99, 1961 (1955).

17. Miller R. C., Kleinman D. A., Savage A., Phys. Rev. Lett., **11**, 146 (1963).
18. Van der Ziel J. P., Bloembergen N., Phys. Rev., **135**, A1662 (1964).
19. Miller R. C., Phys. Rev., **131**, 95 (1963); **134**, A1313 (1964).
20. Miller R. C., Appl. Phys. Lett., **5**, 17 (1964).
21. Soref R. A., Moos H. W., Journ. Appl. Phys., **35**, 2152 (1964).
22. Bloembergen N., Chang R. K., Ducuing J., Lallemand P., Proceedings International Conference on Semiconductors, Paris, July 1964.
23. Savage A. (в печати).
24. Kleinman D. A., Phys. Rev., **126**, 1977 (1962).
25. Phillip H. R., Ehrenreich H., Phys. Rev., **129**, 1550 (1963).
26. Lax B., Mavroides J. G., Edwards D. F., Phys. Rev. Lett., **8**, 166 (1962).
27. Terhune R. W., Maker P., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., **8**, 21 (1962).
28. Pershan P. S., Phys. Rev., **130**, 919 (1963).
29. Giordmaine J. A., Proceedings Third Conference on Quantum Electronics, Paris, 1963; ed. P. Grivet, N. Bloembergen, New York, 1964, p. 1449.
30. Maker P. D., Terhune R. W., Savage C. M., Proceedings Third Conference on Quantum Electronics, Paris, 1963; ed. P. Grivet, N. Bloembergen, New York, 1964, p. 1559.
31. Kleinman D. A., Phys. Rev., **125**, 87 (1962). (Имеется перевод в сб. «Лазеры», ИЛ, 1963.)
32. Braunstein R., Phys. Rev., **125**, 475 (1962). (Имеется перевод в сб. «Лазеры», ИЛ, 1963.)
33. Kaiser W., Garrett C. G. B., Phys. Rev. Lett., **7**, 229 (1961).
34. Hopfield J. J., Worlock J. M., Park K., Phys. Rev. Lett., **11**, 414 (1953).
35. Singh S., Bradley L. T., Phys. Rev. Lett., **12**, 612 (1964).
36. Maker P. D., Terhune R. W., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., **12**, 507 (1964).
37. Giordmaine J. A., Howe J. A., Phys. Rev. Lett., **11**, 207 (1963).
38. Woodbury E. J., Ng W. K. Proc. IRE, **50**, 2367 (1962).
39. Eckhardt G., Hellwarth R. W., McClung F. J., Schwarz S. E., Weiner D., Woodbury E. J., Phys. Rev. Lett., **9**, 455 (1962).
40. Eckhardt G., Bortfeld D. P., Geller M., Appl. Phys. Lett., **3**, 36 (1963).
41. Terhune R. W., Solid State Design, **4**, 38 (November 1963).
42. Hellwarth R. W., Appl. Optics, **2**, 847 (1963).
43. Takuma H., Jennings D. A., Appl. Phys. Lett., **4**, 185 (1964).
44. Dennis J. H., Tannenwald P. E., Appl. Phys. Lett., **5**, 58 (1964).
45. Terhune R. W., Bull. Am. Phys. Soc., II, **8**, 359 (1963).
46. Stoicheff B. P., Phys. Lett., **7**, 186 (1963).
47. Zeiger H. J., Tannenwald P. E., Kern S., Herendeen R., Phys. Rev. Lett., **11**, 419 (1963).

48. Minck R. W., Terhune R. W., Rado W. G., Appl. Phys. Lett., **3**, 181 (1963).
49. Chiao R., Stoicheff B. P., Phys. Rev. Lett., **12**, 290 (1964).
50. Garmire E., Pandarese F., Townes C. H., Phys. Rev. Lett., **11**, 160 (1963).
51. Bret G., Mayer G., Compt. Rend., **258**, 3265 (1964).
52. Maker P., Terhune R., Phys. Rev., **137**, № 3A, A801 (1965).
- 53\*. Boyne H. S., Martin W. C., Journ. Opt. Soc. Am., **52**, 880 (1962).
- 54\*. Abella I. D., Proc. IRE, **50**, 1824 (1962).
- 55\*. Ахманов С. А., Ковригин А. И., Кулакова Н. К., ЖЭТФ, **48**, № 6, 1545 (1965).
- 56\*. Boyd G. D., Ashkin A., Dziedzic J. M., Kleinman D., Phys. Rev., **137**, A1305 (1965).
- 57\*. Johnson F., Nature, **204**, 985 (1964).
- 58\*. Ахманов С. А., Ковригин А. И., Пискаревский А. С., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, письма в редакцию, **2**, № 5, 223 (1965).
- 59\*. Bloembergen N., Chang R. K., Ducuing J., Quantum Electronics Conference, 28—30 June, 1965, Puerto Rico, San Juan. Dispersion of the nonlinear susceptibility in crystals with zinc-blende symmetry.
- 60\*. Boyd G. D., Miller R. C., Nassau K., Bond W. L., Savage A., Appl. Phys. Lett., **5**, 234 (1965).
- 61\*. Miller R. C., Boyd G. D., Savage A., Appl. Phys. Lett., **6**, 77 (1965).
- 62\*. Афанасьев А. М., Манькин Э. А., ЖЭТФ, **48**, № 2, 483 (1965).
- 63\*. Афанасьев А. М., Манькин Э. А., ЖЭТФ, **48**, № 3, 931 (1965).
- 64\*. Pershan P. S., Van der Ziel J. P., Malmstrom L. D., Quantum Electronics Conference, 28—30 June, 1965, Puerto Rico, San Juan. Optically induced magnetization resulting from the inverse Faraday effect.
- 65\*. Делоне Н. Б., Воронов Г. С., ЖЭТФ, письма в редакцию, **1**, № 2, 42 (1965).
- 66\*. Braunstein R., Oskman N., Phys. Rev., **134**, A499 (1965).
- 67\*. Басов Н. Г., Грасюк А. З., Зубарев И. Г., Катунин В. А., ЖЭТФ, письма в редакцию, **1**, № 4, 29 (1965).
- 68\*. Келдыш Л. В., ЖЭТФ, **47**, 1945 (1964).
- 69\*. Gold A., Webb V., Phys. Rev. Lett., **14**, 60 (1965).
- 70\*. Бункин Ф. В., Прохоров А. М., ЖЭТФ, **48**, № 4, 1084 (1965).
- 71\*. Бонч-Бруевич А. М., Ходовой В. А., Усп. физич. наук, **85**, № 1, 3 (1965).
- 72\*. Ахманов С. А., Хохлов Р. В., Проблемы нелинейной оптики, М., 1964.
- 73\*. Аскарьян Г. А., ЖЭТФ, **42**, 1567 (1962).
- 74\* Таланов В. И., Изв. ВУЗ'ов, Радиофизика, **7**, 564 (1962).
- 75\*. Chiao R., Garmire E., Townes C. H., Phys. Rev. Lett., **13**, 479 (1964).

- 76\*. Ахманов С. А., Ковригин А. И., Хохлов Р. В., Чунаев О. Н., ЖЭТФ, 45, 1336 (1963).
- 77\*. Ахманов С. А., Чиркин А. С., Изв. ВУЗ'ов, Радиофизика, 8, № 3, 569 (1965).
- 78\*. Bloembergen N., Shen Y., Phys. Rev., 137, № 6A, A1787 (1965).
- 79\*. Bloembergen N., Shen Y., Phys. Rev. Lett., 13, № 24, 720 (1964).
- 80\*. Bloembergen N., Lallemand P., Appl. Phys. Lett., 6, № 10, 210 (1965).
- 81\*. Lallemand P., Bloembergen N., Appl. Phys. Lett., 6, № 10, 212 (1965).
- 82\*. McClung F. J., Wagner W. G., Weiner D., Quantum Electronics Conference, 28—30 June, 1965, Puerto Rico, San Juan. Anomalies in stimulated Raman scattering conversion efficiencies.
- 83\*. Wagner W. G., Yatsiv S., Hellwarth R., Quantum Electronic Conference, 28—30 June, 1965, Puerto Rico, San Juan. Effect of laser beats on the spectrum of Stokes and anti-Stokes radiation in stimulated Raman scattering.
- 84\*. Martin J., Thomas E., Phys. Lett., 16, № 2, 132 (1965).
- 85\*. Ахманов С. А., Ковригин А. И., Романюк А. К., Кулакова Н. К., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, 48, № 4, 1202 (1965).
- 86\*. Платоненко В., Стаменов К. В., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, 49, № 10 (1965).

## ДОПОЛНИТЕЛЬНАЯ ЛИТЕРАТУРА

- 87\*. Степанов Б. И., Апанасевич П. А., Журн. прикл. спектр., 2, № 1, 37 (1965).  
Вынужденное комбинационное рассеяние в резонаторе первичного ОКГ.
- 88\*. Gulver W., Serri E., Journ. Appl. Phys., 35, 3421 (1964).  
Characteristics of an ideal Raman oscillator — amplifier.
- 89\*. Маш Д. И., Морозов В. В., Старунов В. С., Фабелинский И. Л., ЖЭТФ, письма в редакцию, 2, № 1, (1965).  
Вынужденное рассеяние света крыла линии Рэлея.
- 90\*. Ashkin A., Boyd G., Kleinman D., Appl. Phys. Lett., 6, № 9, 179 (1965).  
Phase matched second-harmonic generation in KDP without double refraction.
- 91\*. Kaiser W., Maier M., Giordamini, Appl. Phys. Lett., 6, № 2, 25 (1965).  
Vibrational interaction in mixed liquids during stimulated Raman action.
- 92\*. Зубов В. А., Сушинский М. М., Шувалов И. К., ЖЭТФ, 48, № 1, 370 (1965).  
Исследование вынужденного комбинационного рассеяния в смесях.
- 93\*. Ахманов С. А., Сухоруков А. П., Хохлов Р. В., ЖЭТФ, 50, № 2 (1966).

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Существует много других вопросов, которые следовало бы рассмотреть в пределах широкого диапазона тем, входящих в понятие нелинейной оптики. Краткость настоящей главы позволяет лишь напомнить о них, хотя это и несправедливо по отношению к ним.

Фотоэлектрический эффект представляет собой, по существу, нелинейный процесс с квадратичной характеристикой: измеряемый фототок пропорционален квадрату напряженности поля. Значительный интерес представляет нахождение частотной характеристики фотоэффекта. Если на светочувствительное вещество падают две световые волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , то возникает вопрос, какова будет компонента фототока на частоте  $\omega_1 - \omega_2$ ? Определяющим фактором в этом случае является однородное время затухания  $\tau$  возбужденного электронного состояния, и частотная характеристика большого класса явлений, связанных с фотоэлектричеством и фотопроводимостью, ведет себя как  $[1 + (\omega_1 - \omega_2)^2 \tau^2]^{-1/2} [1 - 3]$ .

Не обсуждались эксперименты по взаимодействию света с радиоволнами на СВЧ, хотя они привели к созданию многих важных устройств. Не рассматривались также нелинейные эффекты в плазме [4, 5] в диапазоне СВЧ и в далекой инфракрасной области.

Поглощение, зависящее от интенсивности, описывается соотношением (2.69). Решение волнового уравнения, в котором учитывается наличие поглощения, зависящего от мощности, показало бы, как изменяется затухание при прохождении волны очень большой интенсивности через насыщающееся вещество. Это явление ис-



пользуется в так называемых насыщающихся фильтрах. Такие фильтры становятся прозрачными при высоких интенсивностях и могут использоваться в качестве элементов, модулирующих добротность в импульсных лазерах [6].

Другие явления, хорошо известные по опытам с магнитным резонансом в диапазонах радиочастот и СВЧ, могут иметь свои аналогии в оптическом диапазоне. Можно рассмотреть случаи, когда импульсы света очень высокой интенсивности возбуждают достаточно узкие уровни энергии. Тогда будут наблюдаться зависящие от интенсивности смещения резонансной частоты и т. д.

Не обсуждались также важные теоретические вопросы, касающиеся взаимодействия света со светом в вакууме, нелинейного взаимодействия света с релятивистским электроном, квантовых флуктуаций и квантовых шумов в параметрических устройствах и устройствах, использующих явление комбинационного рассеяния. Единственным оправданием этого может служить то, что рассмотрение указанных вопросов увело бы нас слишком далеко от центральной темы настоящей монографии — изучения нелинейных восприимчивостей вещества.

## § 1. Нелинейности в лазерах

Ссылка на указанную особенность монографии не может служить оправданием того, что не рассматривается роль нелинейностей в работе лазеров. Поведение любого генератора определяется нелинейностью его характеристики. Амплитуда колебаний ограничивается эффектом насыщения населенностей уровней, между которыми происходит лазерный переход. Скоростные уравнения, определяющие изменение населенностей в лазерах различных типов, хорошо известны. Они соответствуют рассмотрению диагональных элементов матрицы плотности, проведенному в общих чертах в гл. 2. Нет необходимости повторять их здесь. Однако проведенное там рассмотрение справедливо только для неподвижных атомов или молекул. Качественно их можно применить к газовым лазерам, соответствующим образом учитывая каждый раз доплеровское уширение.

Недавно Лэмб [7] опубликовал теорию газового лазера, в которой матрица плотности зависит также от скорости и положения атома. Тот же вопрос рассмотрели в серии статей также Хакен и Зауерманн [8]. Когда лазер генерирует две моды, они две моды конкурируют между собой, в результате чего возникают интересные явления затягивания. Если газовый лазер генерирует одновременно три эквидистантные или почти эквидистантные продольные моды, то наблюдается эффект нелинейной связи. Он заключается в том, что волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  взаимодействуют и возбуждают волну нелинейной поляризации с частотой  $\omega_3 = 2\omega_2 - \omega_1$ . Если несинхронизованная частота генератора  $\omega'_3$  очень близка к  $\omega_3$ , то наблюдается затягивание и синхронизация генерируемых частот [9]. Лэмб развил детальную теорию этих нелинейностей. Он рассмотрел также устойчивость процесса генерации трех связанных мод.

В этой книге рассмотрены прежде всего бегущие волны. Исключая случай кольцевых лазеров, картина мод в генераторах обычно соответствует картине стоячей волны. Конечно, каждую стоячую волну можно рассматривать как две бегущие волны, но вследствие удваивания количества волн сложность проблемы в значительной степени увеличивается.

При существующих уровнях мощности процесс генерации гармоник или комбинационное рассеяние внутри резонатора газового лазера малоэффективен, однако это утверждение требует пересмотра, если излучение внутри резонатора фокусируется. Явление генерации гармоник в полупроводниковых лазерах (GaAs) достаточно известно [10, 11]. Его можно рассчитать с помощью обычной теории, используя заданную волну нелинейной поляризации.

## § 2. Другие нерешенные проблемы

В настоящей монографии рассматривались почти исключительно плоские волны с бесконечно большим поперечным сечением и плоские бесконечные границы. Такой подход согласуется с духом геометрической оптики, в которой знание хода узких лучей света позволяет

описать более сложные случаи. Например, правила образования изображения линзами выводятся из закона Снеллиуса, который получен в результате изучения преломления плоской волны на плоской границе раздела двух сред. Аналогичным образом можно проанализировать неоднородные волны источника и их интерференцию с однородными волнами в процессе прохождения света через нелинейные линзы, призмы, многослойные покрытия и т. д. Эффекты, обусловленные конечными размерами пучка, можно объяснить дифракцией в соответствии с принципами Кирхгофа и Гюйгенса.

Теорию дифракции необходимо распространить на нелинейные среды. В частности, следует более точно рассмотреть нарастание волны в фокальной области линзы. Наиболее простой способ (применимый в приближении заданного поля) заключается в получении решения для заданного распределения нелинейной поляризации. Задача же излучения гармоник сферами и цилиндрами малых размеров не представляет особых трудностей.

Все уравнения в этой книге были выведены для стационарного состояния (производные комплексных амплитуд по времени полагались равными нулю). Не вызывает сомнений, что стационарное состояние устанавливается быстро и, вероятно, существует даже для импульсов лазеров с модулируемой добротностью, длительность которых составляет всего  $10^{-8}$  сек. Вместе с тем, желательнее провести дальнейшее тщательное исследование проблем, связанных с переходными процессами. Кролль [12] выполнил недавно исследование переходного процесса для вынужденного рассеяния Мандельштама—Бриллюэна. В этом случае из-за относительно малой скорости звуковых волн длительность импульса лазера с модулируемой добротностью может оказаться недостаточной для того, чтобы успело установиться стационарное состояние. В случае процессов комбинационного рассеяния и параметрических процессов, в которых участвуют только световые волны, стационарные решения, по-видимому, являются хорошим приближением к существующей в действительности физической ситуации.

Весьма важной проблемой является вопрос о прочности веществ, подвергающихся действию предельно больших световых полей. Имеется много указаний на то, что это не столько оптическая проблема, сколько проблема, связанная с тепловыделением. При достаточно высокой интенсивности возникают некоторые нелинейные диссипативные процессы. Таковыми могут являться комбинационное рассеяние или рассеяние Мандельштама—Бриллюэна, вызывающее выделение колебательной энергии, или же это может быть многофотонное поглощение. В кристалле выделение тепла может легко начаться в области дефекта решетки или примеси. Эта энергия выделяется в объеме причудливой формы, обусловленной распределением интенсивности в фокусе, за очень короткий промежуток времени. В результате все сводится к проблеме гидродинамической ударной волны.

\* \*  
\*

Список перечисленных выше вопросов, рассмотрение которых незавершено, несомненно не является полным. Однако были сформулированы основные методы, с помощью которых можно найти решение этих и других проблем:

1. Основные нелинейные оптические свойства веществ можно описать, используя существующие классические или квантовомеханические представления о структуре вещества.

2. Эти нелинейные свойства можно описать с помощью тензоров комплексной восприимчивости увеличивающихся рангов.

3. Даже при наивысших достижимых плотностях излучения указанные нелинейности можно рассматривать как малые возмущения и ввести их в уравнения Максвелла, чтобы получить систему связанных волновых уравнений.

4. Обобщая методы теории параметрических усилителей бегущей волны, можно найти приближенные решения связанных нелинейных уравнений.

5. Эти решения приводят к обобщению на нелинейный случай хорошо известных законов оптического отражения, закона Снеллиуса, формул Френеля и т. д.

6. Сферу использования развитого метода можно расширить, включив в нее взаимодействие с фононами. Тот же метод применим для рассмотрения вынужденного рассеяния Манделъштама — Бриллюэна и комбинационного рассеяния, которые можно описать, вводя соответствующие восприимчивости.

7. Измерения нелинейных восприимчивостей, их симметрии и дисперсионных свойств как функции нескольких частот дают дополнительную информацию о структуре вещества.

Наконец, знание указанных свойств вещества приведет к созданию многих нелинейных устройств, которые в ультрафиолетовой, видимой и инфракрасной частях электромагнитного спектра будут выполнять те же функции, которые, как известно, выполняют нелинейные лампы и нелинейные элементы цепей на более низких частотах.

## П р и л о ж е н и я

### ЛИТЕРАТУРА

1. Pershan P. S., Bloembergen N., Appl. Phys. Lett., **2**, 117 (1963).
2. Lasher G. J., Nethercott A. H., Journ. Appl. Phys., **34**, 2122 (1963).
3. Svelto O., Coleman P. D., Di Domenico M., Jr., Pantell R. H., Journ. Appl. Phys., **34**, 3182 (1963).
4. Platzman P. M., Tzoar N., Phys. Rev. Lett., **12**, 573 (1964).
5. Kroil N. M., Rou A., Rostoker N., Phys. Rev. Lett., **13**, 83 (1964).
6. Bret G., Gires F., Compt. Rend., **258**, 4702 (1964).
7. Lamb W. E., Jr., Phys. Rev., **134**, A 1420 (1964).
8. Haken H., Sauer mann H., Zs. Phys., **173**, 261 (1963); **176**, 47 (1963).
9. Witteman W. J., Haisma J., Phys. Rev. Lett., **12**, 617 (1964).
10. Armstrong J. A., Nathan N. I., Smith A. W., Appl. Phys. Lett., **3**, 68 (1963).
11. Malmstrom L. D., Schlickman J. J., Kingston R. H., Journ. Appl. Phys., **35**, 248 (1964).
12. Kroil N. M., Journ. Appl. Phys., **36**, 34 (1965).

## ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ СВЕТОВЫХ ВОЛН В НЕЛИНЕЙНОМ ДИЭЛЕКТРИКЕ

*Дж. Армстронг, Н. Бломберген,  
Ж. Дюкуэнг, П. Першан*

J. A. Armstrong\*, N. Bloembergen\*, J. Ducuing\*\*,  
P. S. Pershan\*, Phys. Rev., **127**, 1918 (1962)

С помощью квантовомеханической теории возмущений вычислены индуцированный нелинейный электрический дипольный момент и моменты более высоких порядков атомной системы, облучаемой одновременно двумя или тремя световыми волнами. Учтены члены, квадратичные и кубичные по полю. Выведено важное пространственно-частотное перестановочное соотношение для нелинейной восприимчивости и проанализирована ее зависимость от частоты. Установлено соотношение между нелинейными микроскопическими свойствами и эффективной макроскопической нелинейной поляризацией, которую можно ввести в уравнения Максвелла для бесконечной однородной анизотропной нелинейной диэлектрической среды. Для нелинейного диэлектрика выведены соотношения для энергии и мощности, соответствующие соотношениям Мэнли — Роу в теории параметрических усилителей. Получены в явной форме решения системы уравнений для комплексных амплитуд, описывающих взаимодействие плоской световой волны с ее второй гармоникой или взаимодействие трех плоских электромагнитных волн, которые удовлетворяют энергетическому соотношению  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  и соотношению для импульсов  $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \Delta\mathbf{k}$ . Рассмотрена генерация третьей гармоники и взаимодействие между большим числом волн. Обсуждены возможности применения теории для исследования низкочастотного и высокочастотного эффекта Керра, модуляции света, генерации гармоник и параметрического преобразования света.

### § 1. Введение

Взаимодействие электромагнитных волн с веществом, состоящим из атомов, было рассмотрено с учетом членов высших порядков в теории возмущений уже в первые годы существования современной квантовой механики [1—3]. В последнее время снова возрос инте-

---

\* Division of Engineering and Applied Physics, Harvard University, Cambridge, Massachusetts.

\*\* Département de Physique Appliquée, Cie Gle de Télégraphie sans fil (Orsay), France.

рес к исследованию поглощения двух или большего числа световых квантов и рассеяния с участием трех или большего количества квантов [4—7]. Это связано с тем, что лазеры позволяют получать интенсивные потоки света, благодаря чему стало возможным экспериментальное наблюдение указанных процессов высокого порядка в лаборатории.

Франкен и др. [8] наблюдали возникновение второй гармоники света, соответствующее элементарным процессам аннигиляции двух световых квантов и рождения одного нового кванта с удвоенной энергией. Гарретт и Кайзер [9] наблюдали двухфотонное поглощение.

Грубая оценка интенсивности света, требуемой для наблюдения этих эффектов, может быть получена следующим образом. Если рассеяние обусловлено электрическими дипольными переходами, то интенсивность процесса рассеяния более высокого порядка меньше интенсивности рассеяния предыдущего порядка в  $(E_l/E_{ат})^2 \sim \sim \{eEa/(W_0 - W_n)\}^2$  раз. Здесь  $E_l$  — электрическое поле световой волны;  $E_{ат} \approx 3 \cdot 10^8$  в/см — среднее атомное электрическое поле, действующее на валентные электроны;  $a$  — радиус атома;  $W_0 - W_n$  — средняя энергия возбуждения атома. В тех случаях, когда данный процесс рассеяния, вызванный электрическими дипольными переходами, оказывается запрещенным (что определяется условиями четности), то в указанном соотношении появляется дополнительный множитель  $(a/\lambda)^2 \sim 10^{-7}$ .

В связи с тем, что можно с высокой степенью точности экспериментально отличать многофотонные процессы от процессов более низкого порядка, нелинейные эффекты легко удается наблюдать при  $(E_l/E_{ат})^2 \sim 10^{-10}$ , или  $E_l = 3 \cdot 10^3$  в/см. Это соответствует интенсивности света  $0,25$  Мвт/см<sup>2</sup>. Такие интенсивности можно получить даже в несфокусированных лазерных пучках. Сообщалось, что короткий импульс рубинового лазера, работавшего с ячейкой Керра в качестве затвора [10, 11], имел пиковую мощность  $10$  Мвт в пучке с поперечным сечением около  $0,5$  см<sup>2</sup>. В сфокусированных пучках можно получить более высокие интенсивности. Со временем будут доступны гораздо большие пиковые плотности мощности, чем те, о которых сообщалось до сих пор.

В экспериментах Франкена и других исследователей [8, 12—15], изучавших процесс возникновения гармоник светового излучения, первоочередную важность имели когерентные эффекты. Интенсивность оптических гармоник может возрастать как квадрат числа рассеивающих центров. Даже в газовой среде представляет интерес не столько некогерентное рассеяние отдельными молекулами, сколько когерентные эффекты, создаваемые эквивалентной сплошной средой с такой же средней плотностью. То же различие возникает и в линейной теории дисперсии. Некогерентное релеевское рассеяние обуславливает голубой цвет неба, а когерентное рассеяние определяет показатель преломления воздуха.

В опубликованных теоретических работах [4—7] подробно рассматривались некогерентные нелинейные процессы, в частности многофотонное поглощение. При обычном рассмотрении элементарных процессов рассеяния на отдельных молекулах вопрос о когерентности падающих и рассеянных фотонов остается нерешенным. С другой стороны, оптический показатель преломления лучше всего определяется полуклассическим методом [16]. Вычислив с помощью квантовомеханических методов среднее значение индуцированного дипольного момента атомной системы, можно возвратиться к макроскопической поляризации и классической теории Максвелла и Лоренца для сплошных сред [17, 18].

В настоящей статье мы выберем именно этот путь для определения нелинейной части поляризации. В § 2 выводятся квантовомеханические выражения для нелинейных индуцированных электрических дипольных моментов с точностью до членов, квадратичных и кубических относительно напряженности поля. Эти выражения иллюстрируются на примере ангармонического осциллятора. В § 3 устанавливается связь между микроскопическими нелинейными свойствами среды и величинами, характеризующими макроскопическое поле. Обсуждается также запаздывание и моменты более высоких порядков. В § 4 нелинейная поляризация вводится в уравнения Максвелла. Решения этих уравнений в явной форме для бесконечного нелинейного анизотропного диэлектрика даны в § 5—7. Они описывают взаимодей-

вие между основной волной и ее второй гармоникой, а также между тремя плоскими электромагнитными волнами, частоты которых связаны соотношением  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  (являющимся по существу законом сохранения энергии), а волновые векторы — соотношением  $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \Delta\mathbf{k}$ , где  $|\Delta\mathbf{k}| \ll |\mathbf{k}_3|$  (сохранение импульса). Эти решения могут рассматриваться как обобщение теории параметрического усилителя бегущей волны [19]. [Последняя относится к частому случаю, когда поток мощности в одной из волн (накачке) значительно больше, чем в двух других волнах.] В настоящей же статье все три волны считаются равноправными. В § 7 полученные выводы распространены на случай генерации третьей гармоники и взаимодействия между четырьмя волнами. Связь теории с экспериментом кратко обсуждается в § 8.

Многоквантовое поглощение и генерация гармоник, конечно, наблюдались и раньше в радиочастотном и СВЧ диапазонах электромагнитного спектра. Там эффекты распространения обычно не играют важной роли, за исключением случая параметрического усилителя бегущей волны. В оптической же области фазовые соотношения между волнами, распространяющимися в нелинейной среде, играют определяющую роль. Особый интерес представляет этот эффект на границе нелинейного диэлектрика. Хорошо известные законы отражения и преломления света в линейной среде можно распространить на нелинейную среду. Модифицированные законы Снеллиуса и Френеля для гармоник света будут рассмотрены в отдельной статье [20].

## § 2. Вывод квантовомеханических выражений для нелинейных источников

В настоящем параграфе для описания нелинейного взаимодействия нескольких монохроматических волн в стационарном поле излучения будет использована полуклассическая теория взаимодействия излучения с веществом (Клейн [21]). Крамерс [16] подробно рассмотрел вопрос о том, как, пользуясь этим полуклассическим ме-

тодом, можно построить теорию когерентного рассеяния и определить величину линейной диэлектрической проницаемости. Его метод будет распространен на более высокие порядки теории возмущений. Это естественным образом приведет к описанию нелинейных диэлектрических свойств среды.

### А. НЕЛИНЕЙНЫЕ ИСТОЧНИКИ, ЗАВИСЯЩИЕ ОТ $E^2$

Влияние излучения на систему заключается в том, что оно вызывает изменение средней величины плотности электронного тока. Плотность этого индуцированного тока рассматривается затем как источник рассеянного излучения. Для определенности будем считать, что поле представляет собой суперпозицию трех гармонических волн, частоты которых удовлетворяют соотношению  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ . Векторный потенциал поля падающего излучения в вакууме есть

$$\mathbf{A} = \sum_{i=1,2,3} \hat{\mathbf{a}}_i q_i \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t + \varphi_i), \quad (2.1)$$

где  $\hat{\mathbf{a}}_i$  — единичный вектор поляризации. Гамильтониан взаимодействий имеет вид

$$\mathcal{H}_{\text{вз}} = \sum_k \left[ -\frac{e}{mc} \mathbf{A}_k \cdot \mathbf{p}_k + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}_k \cdot \mathbf{A}_k \right], \quad (2.2)$$

причем суммирование производится по всем  $k$  электронам. Записывая  $\mathcal{H}_{\text{вз}}$  в такой форме, мы приняли кулоновскую калибровку

$$\text{div } \mathbf{A} = 0, \quad \mathbf{E} = -\text{Re} \left( \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \right), \quad (2.3)$$

которая подразумевает, что  $\mathbf{p}$  и  $\mathbf{A}$  коммутативны. Так как  $\mathbf{p}$  — эрмитов оператор, а  $\mathbf{A}$  — действительная величина, то  $\mathcal{H}_{\text{вз}}$  является эрмитовым оператором. Заметим, однако, что некоторые члены, например  $\mathbf{p} \cdot \hat{\mathbf{a}} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$ , могут и не быть эрмитовыми.

Волновые функции невозмущенной системы обозначим через  $\varphi_n$ , собственные значения энергии — через  $W_n$ . Для простоты примем, что функции  $\varphi_n$  являются произ-

ведениями одноэлектронных волновых функций  $\varphi_n = \prod_n \varphi_n(k)$ . Если нет постоянного магнитного поля (и не учитывается спин), то волновые функции  $\varphi_n$  без потери общности можно считать действительными. Обозначим волновую функцию возмущенного основного состояния через  $\psi_g$ . Эти волновые функции используются для вычисления величины плотности индуцированного электронного тока

$$\sum_k \{\rho \mathbf{v}_k\}_{gg} = \sum_k \psi_g^*(k) \left( \frac{e \mathbf{p}_k}{m} - \frac{e^2 \mathbf{A}_k}{mc} \right) \psi_g(k), \quad (2.4)$$

где сумма берется по  $k$  электронам. (Нелинейная часть выражения этого типа называется в дальнейшем нелинейным источником.)

Члены выражения (2.4), линейные по полю, детально исследованы Крамерсом, который показал, каким образом можно использовать их для определения линейной диэлектрической восприимчивости среды. В настоящей статье нас интересуют члены, квадратичные (и кубические) по полям  $\mathbf{A}_i$ . Для получения всех членов, квадратичных по  $\mathbf{A}_i$ , возмущенные волновые функции должны быть вычислены с точностью до второго порядка нестационарной теории возмущений [3]

$$\psi_g(t) = \sum_n \left[ \delta_{ng} + a_n^{(1)} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}) + a_n^{(1)} (\mathbf{A} \cdot \mathbf{A}) + a_n^{(2)} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{A}) \right] \varphi_n e^{-i\omega_n t}. \quad (2.5)$$

Из этого выражения видно, что среди коэффициентов разложения первого порядка имеются члены как линейные, так и квадратичные по  $\mathbf{A}_i$ .

Члены в (2.4), квадратичные по  $\mathbf{A}_i$ , можно сгруппировать в соответствии с их зависимостью от частоты. Так как поле падающего излучения содержит три различные частоты, то возмущенные волновые функции второго порядка будут иметь зависимость от времени с девятью различными частотами. Можно, например, рассмотреть нелинейный источник на частоте  $\omega_1$ , обусловленный взаимодействием полей с частотами  $\omega_3$  и  $\omega_2$ , или источник на частоте  $2\omega_1$ , обусловленный взаимодействием

ем поля частоты  $\omega_1$  с самим собой, и т. д. Продемонстрируем использование выражения (2.4) на примере вычисления нелинейного источника на частоте  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ , появляющегося в результате взаимодействия волн с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ .

Мы будем интересоваться только той частью нелинейного источника на частоте  $\omega_3$ , которая дает когерентный вклад в падающую волну с частотой  $\omega_3$ . Вычислим (2.4), сохраняя лишь те члены, которые зависят от времени как  $\exp(\pm i\omega_3 t)$  и пропорциональны  $q_1 q_2$ ,

$$\{\rho \mathbf{v}(\omega_3)\}_{gg} = \{\rho \mathbf{v}(\omega_3)\}_{gg}^+ e^{i\omega_3 t} + \{\rho \mathbf{v}(\omega_3)\}_{gg}^- e^{-i\omega_3 t}. \quad (2.6)$$

Можно считать, что выражение (2.6) определяет величину  $\{\rho \mathbf{v}\}_{gg}^\pm$ . Выражение для плотности индуцированного тока (2.6) содержит вклады от производных по времени всех мультипольных моментов возмущенного распределения электронов. Однако если ввести соответствующее запаздывание этой плотности тока, т. е. умножить член выражения (2.6), пропорциональный  $\exp(\pm i\omega_3 t)$ , на  $\exp(\pm i\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r})$  и взять затем среднюю величину результирующего выражения, то источник с частотой  $\omega_3$  принимает форму производной по времени от *эффективного* дипольного момента  $\mathfrak{P}_{\text{эфф}}^{\text{NL}}(\omega_3)$ ,

$$\mathfrak{P}_{\text{эфф}}^{\text{NL}}(\omega_3) = 2\text{Re} [\mathfrak{P}_{\text{эфф}}^{\text{NL}}(\omega_3) e^{-i\omega_3 t}]. \quad (2.7)$$

Выражение для  $\mathfrak{P}_{\text{эфф}}^{\text{NL}}(\omega_3) \exp(-i\omega_3 t)$  в явной форме имеет вид (для удобства мы опускаем суммирование по электронам)

$$\begin{aligned} \mathfrak{P}_{\text{эфф}}^{\text{NL}}(\omega_3) e^{-i\omega_3 t} &= \langle g | \{\rho \mathbf{v}(\omega_3)\}^- \cdot e^{-i\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r}} | g \rangle e^{-i\omega_3 t} = \\ &= \frac{iq_1 q_2}{\omega_3} \left( \frac{e^3}{4m^3 c^2 \hbar^2} \right) e^{i(\varphi_1 + \varphi_2 - \varphi_3)} e^{-i\omega_3 t + i\varphi_3} [\mathfrak{A} + \mathfrak{B}], \end{aligned} \quad (2.8)$$

где

$$\begin{aligned} \mathfrak{A} &= -m\hbar \sum_{j'} \left( \frac{(e^{i(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}} \hat{\mathbf{a}}_2)_{j'g}}{\omega_{j'g} - \omega_1} (e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} \hat{\mathbf{a}}_1 \cdot \mathbf{p})_{j'g} + \right. \\ &\quad \left. + \frac{(e^{i(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \cdot \mathbf{r}} \hat{\mathbf{a}}_2)_{j'g} (e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} \hat{\mathbf{a}}_1 \cdot \mathbf{p})_{j'g}^*}{\omega_{j'g} + \omega_1} \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{(e^{i(k_1 - k_3) \cdot r} \hat{a}_1)_{gj'} (e^{ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{j'g}}{\omega_{j'g} - \omega_2} + \\
& + \frac{(e^{i(k_1 - k_3) \cdot r} \hat{a}_1)_{j'g} (e^{-ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{j'g}^*}{\omega_{j'g} + \omega_2} + \\
& + \frac{(\hat{a}_1 \cdot \hat{a}_2) (e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{gj'} (e^{i(k_1 + k_2) \cdot r})_{j'g}}{\omega_{j'g} - \omega_3} + \\
& + \frac{(\hat{a}_1 \cdot \hat{a}_2) (e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{j'g} (e^{-i(k_1 + k_2) \cdot r})_{j'g}^*}{\omega_{j'g} + \omega_3} \Big\}, \quad (2.9)
\end{aligned}$$

и

$$\begin{aligned}
\mathfrak{H} = \sum_{j, j'} & \left\{ \frac{(e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{gj'} (e^{ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{j'j} (e^{ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{jg}}{(\omega_{j'g} - \omega_3) (\omega_{jg} - \omega_2)} + \right. \\
& + \frac{(e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{j'g} (e^{-ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{j'j}^* (e^{-ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{jg}^*}{(\omega_{j'g} + \omega_3) (\omega_{jg} + \omega_2)} + \\
& + \frac{(e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{gj'} (e^{ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{j'j} (e^{ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{jg}}{(\omega_{j'g} - \omega_3) (\omega_{jg} - \omega_1)} + \\
& + \frac{(e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{j'g} (e^{-ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{j'j}^* (e^{-ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{jg}^*}{(\omega_{j'g} + \omega_3) (\omega_{jg} + \omega_1)} + \\
& + \frac{\frac{1}{2} (e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{j'j} (e^{-ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{j'g}^* (e^{ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{jg}}{(\omega_{j'g} + \omega_1) (\omega_{jg} - \omega_2)} + \\
& + \frac{\frac{1}{2} (e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p}^*)_{j'j} (e^{ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{j'g} (e^{-ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{jg}^*}{(\omega_{j'g} - \omega_1) (\omega_{jg} + \omega_2)} + \\
& \left. + \frac{\frac{1}{2} (e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p})_{j'j} (e^{ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{jg} (e^{-ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{j'g}^*}{(\omega_{j'g} + \omega_2) (\omega_{jg} - \omega_1)} + \right\}
\end{aligned}$$

$$+ \frac{\frac{1}{2} (e^{-ik_3 \cdot r} \mathbf{p}^*)_{j'j} (e^{-ik_1 \cdot r} \hat{a}_1 \cdot \mathbf{p})_{jg}^* (e^{ik_2 \cdot r} \hat{a}_2 \cdot \mathbf{p})_{j'g}}{(\omega_{j'g} - \omega_2) (\omega_{jg} + \omega_1)}} \Big\}. \quad (2.10)$$

Аналогичные выражения определяют эффективные нелинейные дипольные моменты на частотах  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Правильность выражений (2.7)–(2.10) можно проверить, выписав не зависящую от времени часть энергии возмущения третьего порядка  $(\mathcal{H}_{вз})_{gg}$ , которая кубична по напряженности поля  $q$ . Эта энергия содержит в принципе вклады от всех мультипольных моментов системы.

Каждый член в выражениях (2.9) и (2.10) содержит по крайней мере один матричный элемент вида  $(\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}_{kl})$ . Комплексные экспоненты в выражении (2.1) для  $\mathbf{A}$  можно разложить по матричным элементам всех мультипольных моментов атомной системы. Если существует центр симметрии, то волновые функции  $\varphi_j$  будут иметь определенную четность. В этом случае члены в  $\mathfrak{H}_{\varphi\varphi}^{NL}$ , соответствующие электрическим диполям (т. е. члены нулевого порядка по  $\mathbf{k}$ ), исчезнут. Однако члены, соответствующие электрическим квадруполям (и магнитным диполям), линейные по  $\mathbf{k}$ , дадут конечный результат.

Предположим теперь, что атомная система не имеет центра инверсии. В этом случае члены нулевого порядка по  $\mathbf{k}$  в  $\mathfrak{H}_{\varphi\varphi}^{NL}$  будут доминировать над всеми остальными, и мы можем положить все множители вида  $\exp(\pm i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  равными единице. В результате выражение сильно упрощается, ибо, как показано Гепперт-Майер [2], возмущение  $\mathcal{H}_{вз}$  теперь можно записать в виде

$$\mathcal{H}_{вз} = -\mathfrak{P} \cdot \mathbf{E}(t), \quad (2.11)$$

где  $\mathfrak{P}$  — оператор полного электрического дипольного момента молекулы, а  $\mathbf{E}(t)$  — полное (действительное) локальное электрическое поле. Снова рассмотрим случай трех волн, частоты которых связаны прежним соотношением, и запишем электрическое поле в виде

$$\mathbf{E}(t) = \sum_{i=1,2,3} \mathbf{E}_i \cos(\omega_i t + \varphi_i). \quad (2.12)$$

Далее, так как  $\mathbf{A}$  имеет теперь только диагональные матричные элементы, мы можем написать  $(\rho\nu)_{op} =$



$= (\partial \mathfrak{P} / \partial t)_{op}$ ; теперь необходимо только вычислить  $\langle g | \mathfrak{P} | g \rangle$ , сохраняя, как и раньше, лишь члены, пропорциональные  $E_i E_j$  и зависящие от времени с частотой  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  или  $\omega_3$ . Используя те же волновые функции второго порядка, найдем для  $(\mathfrak{P}_\alpha)_{gg}^{NL}$  следующее выражение:

$$\begin{aligned} (\mathfrak{P}_\alpha)_{gg} = & \cos(\omega_1 t + \varphi_3 - \varphi_2) \sum_{i,j'} \{ \mathfrak{P}_{aj'j} (\mathfrak{P}_{j'g} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3) A_{jj'} + \\ & + \mathfrak{P}_{ajg} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3) B_{jj'} + \mathfrak{P}_{aj'g} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2) C_{jj'} \} + \\ & + \cos(\omega_2 t + \varphi_3 - \varphi_1) \sum_{i,j'} \{ \mathfrak{P}_{aj'g} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3) A_{jj'} + \\ & + \mathfrak{P}_{aj'j} (\mathfrak{P}_{j'g} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3) B_{jj'} + \mathfrak{P}_{aj'g} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1) C_{jj'} \} + \\ & + \cos(\omega_3 t + \varphi_1 + \varphi_2) \sum_{i,j'} \{ \mathfrak{P}_{aj'g} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2) A_{jj'} + \\ & + \mathfrak{P}_{aj'g} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1) B_{jj'} + \mathfrak{P}_{aj'j} (\mathfrak{P}_{j'g} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2) C_{jj'} \}, \end{aligned} \quad (2.13)$$

где

$$\begin{aligned} A_{jj'} = & \frac{1}{2\hbar^2} \left[ \frac{1}{(\omega_{jg} + \omega_2)(\omega_{j'g} + \omega_3)} + \frac{1}{(\omega_{jg} - \omega_2)(\omega_{j'g} - \omega_3)} \right], \\ B_{jj'} = & \frac{1}{2\hbar^2} \left[ \frac{1}{(\omega_{jg} + \omega_1)(\omega_{j'g} + \omega_3)} + \frac{1}{(\omega_{jg} - \omega_1)(\omega_{j'g} - \omega_3)} \right], \\ C_{jj'} = & \frac{1}{2\hbar^2} \left[ \frac{1}{(\omega_{jg} + \omega_1)(\omega_{j'g} - \omega_2)} + \frac{1}{(\omega_{jg} - \omega_1)(\omega_{j'g} + \omega_2)} \right]. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Использован тот факт, что волновые функции предполагаются действительными.

Заметим, что каждая фурье-компонента  $(\mathfrak{P}_\alpha^{NL})_{gg}$  может быть записана в виде тензора третьего ранга (с числом компонент  $3 \times 9$ ), действующего на несимметричный тензор второго ранга. Этот тензор второго ранга является произведением электрических полей двух разных частот

$$\mathfrak{P}_i^{NL}(\omega_1) = \cos(\omega_1 t + \varphi_3 - \varphi_2) \sum_{i,k} \beta_{ijk}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) E_{3j} E_{2k},$$

$$\mathfrak{P}_i^{NL}(\omega_2) = \cos(\omega_2 t + \varphi_3 - \varphi_1) \sum_{i,k} \beta_{ijk}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) E_{3j} E_{1k}, \quad (2.15)$$

$$\mathfrak{P}_i^{NL}(\omega_3) = \cos(\omega_3 t + \varphi_1 + \varphi_2) \sum_{i,k} \beta_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_{1j} E_{2k}.$$

Сравнение (2.13) и (2.14) с (2.15) позволяет получить явные квантовомеханические выражения для  $\beta_{ijk}(\omega)$ . Исследование этих формул приводит к следующим важным пространственно-частотным перестановочным соотношениям

$$\begin{aligned} \beta_{ijk}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) &= \beta_{kji}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) = \\ &= \beta_{jik}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2). \end{aligned} \quad (2.16)$$

Частоты можно переставлять произвольно, если одновременно координатные индексы  $i, j$  и  $k$  переставляются таким образом, что данная частота всегда связана с одним и тем же индексом. Благодаря этим соотношениям число констант, требующихся для описания микроскопической нелинейной поляризации, обусловленной существованием трех волн в системе с симметрией класса  $C_1$ , уменьшается с 81 до 27.

Рассмотрим теперь частный случай — генерацию второй гармоники:  $\omega_1 = \omega_2 = 1/2\omega_3$ . Так как теперь справедливы соотношения  $2\omega_1 = 2\omega_2 = \omega_3$ ,  $\omega_3 - \omega_1 = \omega_1$  и  $\omega_3 - \omega_2 = \omega_2$ , а также  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ , то при вычислении волновой функции второго порядка нужно рассмотреть большее число членов. Результат, однако, сводится просто к умножению выражения (2.13) для  $\mathfrak{P}_\alpha^{NL}$  на 2. Кроме того, поскольку величина  $\mathfrak{P}_\alpha^{NL}$  рассчитывалась для поля  $E_1 \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + E_2 \cos(\omega_2 t + \varphi_2) + E_3 \cos(\omega_3 t + \varphi_3) = 2E_1 \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + E_3 \cos(\omega_3 t + \varphi_3)$ , то как  $E_1$ , так и  $E_2$  в выражении (2.13) нужно заменить на  $E_1/2$ . Заменяя далее в (2.14)  $\omega_2$  на  $\omega_1$  и  $\omega_3$  на  $\omega_2$ , получаем следующее выражение для нелинейной поляризации в случае генерации второй гармоники:

$$\begin{aligned} (\mathfrak{P}_\alpha)_{gg} = & \cos(\omega_1 t + \varphi_2 - \varphi_1) \sum_{i,j'} \{ \mathfrak{P}_{aj'g} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2) A'_{jj'} + \\ & + \mathfrak{P}_{aj'j} (\mathfrak{P}_{j'j} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1) B'_{jj'} + \mathfrak{P}_{aj'j} (\mathfrak{P}_{j'g} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2) A'_{j,j'} \} + \end{aligned}$$

$$+ \cos(2\omega_1 t + 2\varphi_1) \sum_{j,j'} \left\{ \mathfrak{P}_{aj'g} (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1) A'_{j,i'} + \right. \\ \left. + \mathfrak{P}_{aj'i} (\mathfrak{P}_{j'g} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1) \frac{B'_{j,i'}}{2} \right\}, \quad (2.17)$$

где

$$A'_{j,i'} = \frac{1}{2\hbar^2} \left[ \frac{1}{(\omega_{jg} + \omega_2)(\omega_{j'g} + \omega_1)} + \frac{1}{(\omega_{jg} - \omega_2)(\omega_{j'g} - \omega_1)} \right], \quad (2.18) \\ B'_{j,i'} = \frac{1}{2\hbar^2} \left[ \frac{1}{(\omega_{jg} + \omega_1)(\omega_{j'g} - \omega_1)} + \frac{1}{(\omega_{jg} - \omega_2)(\omega_{j'g} + \omega_1)} \right].$$

### Б. НЕЛИНЕЙНЫЕ ИСТОЧНИКИ, ЗАВИСЯЩИЕ ОТ $E^3$

Если включить в расчеты члены следующего порядка теории возмущений, можно найти нелинейные источники третьего порядка по электрическим полям. Например, при взаимодействии с системой падающей волны, имеющей частоту  $\omega_1$ , возникает поляризация на частоте  $3\omega_1$ . Это процесс генерации третьей гармоники. В общем случае мы имеем дело с падающим излучением, являющимся суперпозицией четырех монохроматических волн, частоты которых различны и удовлетворяют соотношению  $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_4$ . Для простоты снова ограничимся электродипольным приближением:  $\exp(\pm i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) = 1$ . Квантовомеханическое выражение для фурье-компоненты  $\mathfrak{P}^{NL}$  (с частотой  $\omega_4$ ), пропорциональной  $E_1 E_2 E_3$ , имеет следующий вид:

$$\mathfrak{P}_I^{NL}(\omega_4) = \frac{1}{4\hbar^3} \cos(\omega_4 t + \varphi_1 + \varphi_2 + \varphi_3) \times \\ \times \sum_{k,j'j} \left\{ \frac{\mathfrak{P}_{lgk} (\mathfrak{P}_{kj'} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3)}{(\omega_{kg} \pm \omega_4)(\omega_{j'g} \pm \omega_2 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_3)} + \right. \\ \left. + \frac{\mathfrak{P}_{lgk} (\mathfrak{P}_{kj'} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3)}{(\omega_{kg} \pm \omega_4)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_3)} + \right. \\ \left. + \frac{\mathfrak{P}_{lgk} (\mathfrak{P}_{kj'} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2)}{(\omega_{kg} \pm \omega_4)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_2)(\omega_{jg} \pm \omega_2)} + \right. \\ \left. + \frac{\mathfrak{P}_{lgk} (\mathfrak{P}_{kj'} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2)}{(\omega_{kg} \pm \omega_4)(\omega_{j'g} \pm \omega_2 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_2)} \right\}$$

$$+ \frac{\mathfrak{P}_{lgk} (\mathfrak{P}_{kj'} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1)}{(\omega_{kg} \pm \omega_4)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_1)} + \\ + \frac{\mathfrak{P}_{lgk} (\mathfrak{P}_{kj'} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1)}{(\omega_{kg} \pm \omega_4)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_2)(\omega_{jg} \pm \omega_1)} + \\ + \frac{\mathfrak{P}_{lkj'} (\mathfrak{P}_{kg} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3)}{(\omega_{kg} \mp \omega_1)(\omega_{j'g} \pm \omega_2 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_3)} + \\ + \frac{\mathfrak{P}_{lkj'} (\mathfrak{P}_{kg} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_3)}{(\omega_{kg} \mp \omega_2)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_3)} + \\ + \frac{\mathfrak{P}_{lkj'} (\mathfrak{P}_{kg} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2)}{(\omega_{kg} \mp \omega_3)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_2)(\omega_{jg} \pm \omega_2)} + \\ + \frac{\mathfrak{P}_{lkj'} (\mathfrak{P}_{kg} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_2)}{(\omega_{kg} \mp \omega_1)(\omega_{j'g} \pm \omega_2 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_2)} + \\ + \frac{\mathfrak{P}_{lkj'} (\mathfrak{P}_{kg} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1)}{(\omega_{kg} \mp \omega_2)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_1)} + \\ + \frac{\mathfrak{P}_{lkj'} (\mathfrak{P}_{kg} \cdot \mathbf{E}_3) (\mathfrak{P}_{j'i} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{jg} \cdot \mathbf{E}_1)}{(\omega_{kg} \mp \omega_3)(\omega_{j'g} \pm \omega_1 \pm \omega_2)(\omega_{jg} \pm \omega_1)} \Big\}, \quad (2.19)$$

где для краткости мы воспользовались обозначением

$$\frac{1}{(\omega_{kg} \mp \omega_1)(\omega_{j'g} \pm \omega_2 \pm \omega_3)(\omega_{jg} \pm \omega_3)} = \\ = \frac{1}{(\omega_{kg} - \omega_1)(\omega_{j'g} + \omega_2 + \omega_3)(\omega_{jg} + \omega_3)} + \\ + \frac{1}{(\omega_{kg} + \omega_1)(\omega_{j'g} - \omega_2 - \omega_3)(\omega_{jg} - \omega_3)} \text{ и т. д.}$$

Выражение (2.19) определяет  $\mathfrak{P}_I^{NL}(\omega_4)$  как

$$\mathfrak{P}_I^{NL}(\omega_4) = \cos(\omega_4 t + \varphi_1 + \varphi_2 + \varphi_3) \times \\ \times \sum_{m,n,p} \gamma_{lmnp}(\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) E_{1m} E_{2n} E_{3p}, \quad (2.20)$$

где все частоты различны. Компоненты тензора  $\gamma_{lmnp}$  не обращаются в нуль в том случае, когда система об-

ладает центром инверсии, а волновые функции — хорошо определенной четностью. В случае симметрии класса  $C_1$  тензор  $\gamma_{lmnp}$  имеет  $3 \times 27$  компонент. Значения  $\gamma$  для трех других компонент поляризации (как функции трех различных полей) получаются из  $\gamma(\omega_4)$  с помощью перестановок, подобных тем, которые используются для трех волн

$$\begin{aligned} \gamma_{lmnp} (4 = 1 + 2 + 3) &= \gamma_{mnp} (1 = 4 - 2 - 3) = \\ &= \gamma_{nlmp} (2 = 4 - 1 - 3) = \gamma_{plmn} (3 = 4 - 1 - 2). \end{aligned} \quad (2.21)$$

Различные случаи, когда четыре частоты удовлетворяют дополнительным соотношениям, удобнее рассматривать отдельно, а не как частные случаи выражения (2.19). Наиболее важное значение имеет случай, когда  $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = 1/3\omega_4$ . Примем, что поле падающего излучения имеет вид  $E = E_1 \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + E_2 \cos(3\omega_1 t + \varphi_2)$ , и вычислим в  $\mathfrak{P}^{\text{NL}}(3\omega_1)$  член, пропорциональный  $E_1^3$ , а в  $\mathfrak{P}^{\text{NL}}(\omega_1)$  — член, пропорциональный  $E_1^2 E_2$ . Соответствующие выражения имеют вид

$$\begin{aligned} \mathfrak{P}_l^{\text{NL}}(3\omega_1) &= \frac{\cos(3\omega_1 t + 3\varphi_1)}{4\hbar^3} \times \\ &\times \sum_{k,j',j} \left\{ \frac{\mathfrak{P}_{lgk}(\mathfrak{P}_{kj'} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_1)}{(\omega_{kg} \pm 3\omega_1)(\omega_{j'g} \pm 2\omega_1)(\omega_{jg} \pm \omega_1)} + \right. \\ &+ \left. \frac{\mathfrak{P}_{lkj'}(\mathfrak{P}_{kg} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_1)}{(\omega_{kg} \mp \omega_1)(\omega_{j'g} \pm 2\omega_1)(\omega_{jg} \pm \omega_1)} \right\}. \quad (2.22) \\ \mathfrak{P}_l^{\text{NL}}(\omega_1) &= \frac{\cos(\omega_1 t + 2\varphi_1 - \varphi_2)}{4\hbar^3} \times \\ &\times \sum_{k,j',j} \left\{ \frac{\mathfrak{P}_{lgk}(\mathfrak{P}_{kj'} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_2)}{(\omega_{kg} \pm \omega_1)(\omega_{j'g} \pm 2\omega_1)(\omega_{jg} \pm 3\omega_1)} + \right. \\ &+ \frac{\mathfrak{P}_{lgk}(\mathfrak{P}_{kj'} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_2)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_1)}{(\omega_{kg} \pm \omega_1)(\omega_{j'g} \pm 2\omega_1)(\omega_{jg} \mp \omega_1)} + \\ &+ \left. \frac{\mathfrak{P}_{lgk}(\mathfrak{P}_{kj'} \cdot E_2)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_1)}{(\omega_{kg} \mp \omega_1)(\omega_{j'g} \pm 2\omega_1)(\omega_{jg} \pm \omega_1)} + \right. \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &+ \frac{\mathfrak{P}_{lkj'}(\mathfrak{P}_{kg} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_2)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_1)}{(\omega_{kg} \pm \omega_1)(\omega_{j'g} \pm 2\omega_1)(\omega_{jg} \mp \omega_1)} + \\ &+ \frac{\mathfrak{P}_{lkj'}(\mathfrak{P}_{kg} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_2)}{(\omega_{kg} - \omega_1)(\omega_{j'g} - 2\omega_1)(\omega_{jg} - 3\omega_1)} + \\ &+ \frac{\mathfrak{P}_{lkj'}(\mathfrak{P}_{kg} \cdot E_2)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_1)}{(\omega_{kg} + 3\omega_1)(\omega_{j'g} - 2\omega_1)(\omega_{jg} - \omega_1)} + \\ &+ \frac{\mathfrak{P}_{lkj'}(\mathfrak{P}_{kg} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_2)}{(\omega_{kg} + \omega_1)(\omega_{j'g} + 2\omega_1)(\omega_{jg} + 3\omega_1)} + \\ &+ \left. \frac{\mathfrak{P}_{lkj'}(\mathfrak{P}_{kg} \cdot E_2)(\mathfrak{P}_{j'j} \cdot E_1)(\mathfrak{P}_{jg} \cdot E_1)}{(\omega_{kg} + 3\omega_1)(\omega_{j'g} + 2\omega_1)(\omega_{jg} + \omega_1)} \right\}. \quad (2.23) \end{aligned}$$

## В. НЕЛИНЕЙНАЯ ИОННАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ

В предыдущем рассмотрении мы имели дело с поляризацией  $\mathfrak{P}^{\text{NL}}$ , обусловленной только движением электронов внутри атомов или молекул. В общем случае электрическая поляризация системы содержит также ионный вклад, обусловленный вынужденными колебаниями заряженных ионов. Если ионы колеблются в поле, потенциал которого ангармоничен, они дают вклад в  $\mathfrak{P}^{\text{NL}}$ .

В случае генерации второй гармоники нелинейная ионная поляризация вычисляется следующим образом. Используется упрощенная модель колебаний системы: заданная молекула рассматривается как совокупность трех независимых одномерных ангармонических осцилляторов. В отсутствие излучения гамильтониан системы имеет вид

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}' &= \frac{1}{2} \sum_{i=x,y,z} \left( \frac{p_i^2}{m_i} + m_i \omega_{0i}^2 r_i^2 \right) - \\ &- \frac{1}{3} \sum_{i=x,y,z} (\lambda_i r_i^3) - \frac{1}{4} \sum_{i=x,y,z} \eta_i r_i^4. \end{aligned} \quad (2.24)$$

В дипольном приближении взаимодействие системы с излучением описывается гамильтонианом

$$\mathcal{H}_{\text{вз}} = - \sum_{i=x,y,z} e_i t_i E_i(t),$$

где

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_1 \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + \mathbf{E}_2 \cos(2\omega_1 t + \varphi_2).$$

Существует два способа вычисления  $\langle \mathfrak{P}_i^{\text{NL}} \rangle$ . В одном из них используется теория возмущений четвертого порядка, в которой матричные элементы гамильтониана  $\mathcal{H}'$  учитываются один раз, а гамильтониана  $\mathcal{H}_{\text{вз}}$  — три раза. В другом способе сначала с помощью  $\mathcal{H}'$  вычисляются волновые функции ангармонических осцилляторов до первого порядка по  $\lambda_i$  [22]. Затем эти возмущенные волновые функции подставляются в выражение (2.17). В результате и в том и в другом случае получается следующее выражение для той части  $\mathfrak{P}_x^{\text{NL}}$ , которая обусловлена действием  $E_{1x} E_{1x}$ .

$$\begin{aligned} \mathfrak{P}_{xxx}^{\text{нон}}(\omega_2 = \omega_1 + \omega_1) E_{1x}^2 \cos(2\omega_1 t + 2\varphi_1) = \\ = \frac{1}{2} \left( \frac{e_x}{m_x} \right)^3 \lambda_x \frac{E_{1x}^2 \cos(2\omega_1 t + 2\varphi_1)}{(\omega_{0x}^2 - \omega_1^2)^2 (\omega_{0x}^2 - 4\omega_1^2)}. \end{aligned} \quad (2.25)$$

К этому выражению мы пришли квантовомеханическим путем, но точно такой же результат для рассматриваемой части  $\mathfrak{P}_x^{\text{NL}}$  можно получить, пользуясь чисто классическим методом вычислений.

Изложим теперь кратко классический расчет и применим его для исследования генерации третьей гармоники ангармоническим осциллятором. Квантовомеханический расчет в явном виде не производился, но результаты его были бы почти наверняка идентичны с теми, которые приведены ниже. Рассмотрим ангармонический осциллятор, совершающий колебания в направлении  $x$ , описываемый  $x$ -составляющей выражения (2.24). Запишем классические уравнения движения этого осциллятора в вынуждающем поле  $E_{1x} \cos(\omega_1 t + \varphi_1)$ . Предположим, что решение для  $x$  можно представить в виде

$$x = x_1 \cos(\omega_1 t + \varphi_1) + x_2 \cos(2\omega_1 t + 2\varphi_1) + x_3 \cos(3\omega_1 t + 3\varphi_1).$$

Легко найти, что

$$\begin{aligned} \mathfrak{P}_x^{\text{NL}}(3\omega_1) = e_x x_3(t) = E_1^3 \cos(3\omega_1 t + 3\varphi_1) \left( \frac{e_x}{m} \right)^4 \times \\ \times \left[ \frac{\lambda_x^2}{2m} \frac{1}{(\omega_1^2 - \omega_{0x}^2)^3 (\omega_0^2 - 4\omega_1^2) (\omega_0^2 - 9\omega_1^2)} + \right. \\ \left. + \frac{\eta_x}{4} \frac{1}{(\omega_1^2 - \omega_{0x}^2)^3 (\omega_{0x}^2 - 9\omega_1^2)} \right]. \end{aligned} \quad (2.26)$$

Так как для обычных колебаний отношение  $(2\lambda^2/m\eta)[1/(\omega_{0x}^2 - 4\omega_1^2)]$  составляет  $10^{-2} - 10^{-3}$ , если  $\omega_1$  — оптическая частота, то в выражении (2.26) следует удержать лишь второй член.

### § 3. Соотношения между величинами, связанными с макроскопическими полями в нелинейных диэлектриках

#### А. ГАЗЫ

Когда оптический показатель преломления близок к единице, различие между микроскопическим полем, действующим на отдельную молекулу, и макроскопическим полем пренебрежимо мало. Такая ситуация точно осуществляется только в газах. На молекулы действует электромагнитное поле, описываемое соотношениями (2.1) и (2.3). Эффективная нелинейная поляризация в элементе объема газа с центром в точке  $\mathbf{r}_0$  получается в результате усреднения эффективного дипольного момента молекулы, описываемого выражениями (2.7) — (2.10), по всем заполненным состояниям  $g$ , взятым с соответствующим статистическим весом, и умножения на число молекул  $N$  в единице объема. Вводя  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3$  и  $\Delta\varphi = \varphi_1 + \varphi_2 - \varphi_3$ , получаем для эффективной нелинейной поляризации в точке  $\mathbf{r}_0$

$$\begin{aligned} \mathfrak{P}^{\text{NL}}(\omega_3) = \frac{1}{2} \text{Re} \left[ NZ^{-1} \frac{i q_1 q_2 e^3}{\omega_3 c^2 m^3 \hbar^2} e^{i(\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_0 + \Delta\varphi)} e^{i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r}_0 - \omega_3 t + \varphi_3)} \times \right. \\ \left. \times \sum_g [\mathfrak{P} + \mathfrak{B}]_{gg} e^{-W_g/kT} \right], \end{aligned} \quad (3.1)$$

где  $Z$  — статистическая сумма, а  $[\mathfrak{P} + \mathfrak{B}]_{gg}$  определяется выражениями (2.9) и (2.10).

Нелинейная поляризация на частоте  $\omega_3$  будет, вообще говоря, иметь компоненту, параллельную электрическому полю

$$\mathbf{E}_3 = \operatorname{Re} \left\{ \frac{i\omega_3 q_3 \hat{\mathbf{a}}_3}{c} e^{i(\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r}_0 - \omega_3 t + \varphi_3)} \right\} \quad (3.2)$$

и находящуюся с ним в фазе, и компоненту, параллельную полю  $\mathbf{E}_3$ , но отличающуюся от него по фазе на  $90^\circ$ .

Реактивная компонента поляризации,  $P^{NL}(\omega_3, \text{реакт.})$ , находящаяся в фазе с полем, будет изменять эффективную диэлектрическую проницаемость для волны с частотой  $\omega_3$  на величину  $\Delta \epsilon_3^{NL} = P^{NL}(\omega_3, \text{реакт.}) q_3^{-1} \omega_3^{-1} c$ . Активная компонента поляризации  $P^{NL}(\omega_3, \text{акт.})$ , отличающаяся по фазе от поля, приводит к нарастанию или ослаблению интенсивности волны, имеющей частоту  $\omega_3$ . Этот факт имеет первостепенное практическое значение. Он объясняет генерацию гармоник света, смещение и т. д.

Выражения (2.9) и (2.10) учитывают влияние всех мультипольных моментов молекулы. Так как газ является изотропной средой, то среднее значение нелинейного источника окажется равным нулю, если сохранить только электрические дипольные члены, т. е. если положить  $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  равными единице во всех матричных элементах. Заметим, что для электрических диполей  $[\mathfrak{A} + \mathfrak{B}]$  является действительной величиной. Если, однако, один из трех матричных элементов соответствует электрическому квадруполью (или магнитному диполью), а другие два — электрическим диполям, то между  $P_{\text{эфф}}^{NL}$  и тремя векторами ( $\hat{\mathbf{a}}_1$ ,  $\hat{\mathbf{a}}_2$  и линейной комбинацией  $\mathbf{k}_1$ ,  $\mathbf{k}_2$  и  $\mathbf{k}_3$ ) существует связь, описываемая тензором четвертого ранга. В этом случае  $[\mathfrak{A} + \mathfrak{B}]$  является чисто мнимой величиной.

Компоненты  $P_{\text{эфф}}^{NL}(\omega_3)$ , составляющие прямые углы с  $\hat{\mathbf{a}}_3$ , будут создавать (или ослаблять) либо волны с частотой  $\omega_3$ , имеющие то же направление  $\mathbf{k}_3$ , но другую поляризацию, либо волны с частотой  $\omega_3$ , имеющие другое направление  $\mathbf{k}_3$ . Кроме того, компоненты поляризации с разностной частотой  $\omega_2 - \omega_1$  будут создавать волны этой же частоты, но другой поляризации. Эти новые волны интерferируют со старыми, порождают другие вол-

ны и т. д. Вряд ли оправдано ограничиваться рассмотрением трех или четырех волн. Тем не менее это можно сделать, если существует только один набор волн, для которых  $\Delta \mathbf{k} = 0$  или по крайней мере немного меньше, чем для других возможных наборов. Хотя вначале могут возникнуть несколько волн, продолжать нарастать будет только одна волна, для которой  $\Delta \mathbf{k} = 0$ . Для других волн знак фазового множителя  $\exp(-i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_0)$  изменится после того, как эти волны пройдут некоторое расстояние  $\Delta \mathbf{r}$ .

В этой точке член  $P^{NL}(\text{акт.})$  в выражении (2.8) изменит знак, и нарастание сменится ослаблением. Указанный процесс будет подробно проанализирован в следующих параграфах.

Два примера, приводимых ниже, иллюстрируют эти замечания и показывают, каким образом такие ситуации могут возникнуть даже в газовой среде. Примем, что существенны только электродипольные матричные элементы. В этом случае необходимо учитывать члены до четвертого порядка по амплитудам электрического поля  $q\omega/c$ .

Рассмотрим сначала случай, когда на газ действует сильное постоянное электрическое поле. Для  $P_{\text{эфф}}^{NL}$  в выражении (2.19) можно ограничиться членами до четвертого порядка. Однако теперь одна из частот, например  $\omega_1$ , равна нулю. Введем новые обозначения для частот и полей:  $E_1 \rightarrow E_{\text{пост}}$ ,  $\omega_2 \rightarrow \omega'_1$ ,  $\omega_3 \rightarrow \omega_2$  и  $\omega_4 \rightarrow \omega_3 = \omega'_1 + \omega_2$ .

Примем, что все эти поля поляризованы в направлении  $x$ . Учитывая свойства симметрии тензора четвертого ранга в изотропной среде (усреднение по всем ориентациям молекул), получаем из (2.19) выражение для  $x$ -компоненты индуцированной поляризации. При условии, что все три волны распространяются в направлении  $z$ , для нелинейной поляризации находим

$$P^{NL}(\omega_3) = NZ^{-1} \sum_g [ |g_g e^{-W_g/kT} E_0 E_1 E_2 [\cos(k_3 z - \omega_3 t) \cos(\Delta k z + \Delta \varphi) - \sin(k_3 z - \omega_3 t) \sin(\Delta k z + \Delta \varphi)]; \quad (3.3)$$

величина  $\{ \}_{gg}$  действительна и равна

$$\frac{1}{4\hbar^3} \sum_{k, j', j} P_{xgk} P_{xkj'} P_{xj'j} P_{xjg} \{ \}_{kj'j},$$

где  $\{ \}_{kj'j}$  дается соотношением (2.19), в котором все числители положены равными единице и введены новые обозначения частот. Частоты  $\omega_1$  и  $\omega_2$  можно выбрать по отношению к известным резонансным частотам молекул таким образом, чтобы за счет линейной дисперсии фазовые скорости оказались согласованными

$$|\Delta k| = |k_3 - k_1 - k_2| \ll |k_1|.$$

Для других комбинаций частот, например  $\omega_1 - \omega_2$ ,  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  или  $\omega_3 + \omega_1$ ,  $\omega_3$ ,  $\omega_1$  и т. д., фазовые скорости не согласованы. В этом случае проблема фактически сводится к рассмотрению трех линейно поляризованных волн, приведенных выше. Можно выбрать частоты  $\omega_1$  и  $\omega_2$  так, чтобы они были несколько ниже колебательной полосы поглощения молекулы, например HCl. Затем нужно произвести суммирование в выражении (3.3) по состояниям ангармонического осциллятора. Благодаря дисперсии, связанной с колебательным поглощением, может выполняться условие согласования фаз  $k_1 + k_2 = k_3$ . Экспериментально согласование можно облегчить, изменяя давление или вводя примеси других молекул. Хотя величина нелинейной поляризации в газе, очевидно, много меньше, чем в конденсированной среде, линейная поляризация здесь также невелика. В газе можно обеспечить согласование фазовых скоростей на гораздо больших расстояниях. В газе отношение нелинейной поляризации к линейной, как нетрудно показать, может быть сделано более благоприятным, чем в конденсированной среде, так как в последней обычно имеется много атомов или ионов, которые не дают заметного вклада в нелинейность, но обуславливают значительную часть линейного показателя преломления.

Пусть точка  $z$  и начальные фазы волн  $\varphi_1$ ,  $\varphi_2$  и  $\varphi_3$  выбраны так, что  $\Delta kz + \Delta\varphi = 0$ . Тогда нелинейная поляризация находится в фазе с электрическим полем, и дает вклад в нелинейную, диэлектрическую проницае-

мость. Будем считать амплитуды  $E_1$  и  $E_2$  двух световых волн с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  фиксированными. В этом случае мы получим фиксированную амплитуду  $P^{NL}(\omega_3)$ , временной множитель которой находится в фазе с волной, имеющей частоту  $\omega_3$  и амплитуду  $E_3$ . Если амплитуда этой волны изменяется от 0 до  $E_3$ , то усредненная по времени запасенная энергия изменяется из-за нелинейности среды на величину  $1/2 P^{NL}(\omega_3) E_3$ . Множитель  $1/2$  появляется в результате усреднения  $\cos^2 \omega_3 t$  по времени. Поэтому нелинейность вызовет изменение диэлектрической проницаемости для волны с частотой  $\omega_3$ , если присутствуют волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ .

Если  $\Delta kz + \Delta\varphi = \pi/2$ , то нелинейный вклад в диэлектрическую проницаемость отсутствует. В этом случае фаза нелинейной поляризации отличается точно на  $90^\circ$  от фазы волны с частотой  $\omega_3$ . Нелинейная поляризация совершает над волной положительную или отрицательную работу. Работа, совершенная за единицу времени нелинейной поляризацией вещества над волной, может быть записана в виде

$$W_3 = \frac{\omega_3}{2\pi} \int_{\text{период}} E_3 \frac{dP^{NL}(\omega_3)}{dt} dt = \frac{1}{2} \omega_3 E_3 P^{NL}(\omega_3, \text{акт.}) \quad (3.4)$$

Вследствие этого амплитуда волны  $E_3$  будет изменяться.

Если вначале имелись две волны  $\omega_1$  и  $\omega_2$  и фазовые скорости были полностью согласованы,  $\Delta k = 0$ , то начнет нарастать волна с частотой  $\omega_3$  и фазой  $\varphi_3 = \varphi_2 + \varphi_1 + \pi/2$ . Пока эта фаза сохраняется, реактивная компонента нелинейной поляризации равна нулю. Возрастание амплитуды в этом частном случае, а также в общем случае произвольных начальных амплитуд и фаз и отличных от нуля значений  $\Delta k$  будет рассмотрено в § 5—7.

Обсудим теперь другой пример, к которому легко применить тот же формализм, — генерацию волны третьей гармоники в газе. Пусть имеется линейно поляризованная волна  $E_x \cos(k_1 z - \omega_1 t)$ . Возникающая при этом поляризация на частоте  $\omega_3 = 3\omega_1$  дается выражением (2.26).

В отсутствие постоянного поля четные гармоники не генерируются. Другие поляризации также отсутствуют.

Примем, что пятая гармоника имеет плохое согласование фаз. В результате проблема сводится к взаимодействию двух электромагнитных волн. Подробные решения для амплитуд и фаз будут даны в § 7. Энергетические соотношения, подобные обсуждавшимся выше, выводятся легко. В выражение для свободной энергии единичного объема газа, на который одновременно действует волна основной частоты и третья гармоника, линейно поляризованная в том же направлении, входит член, пропорциональный  $E_1^3 E_3$ . Согласования фаз в принципе можно достигнуть, используя резонансную дисперсию вблизи полос поглощения молекул. Если основная частота выбрана немного меньшей частоты полосы поглощения, то ангармонический осциллятор дает очень большой резонансный знаменатель. Тогда в соответствии с выражением (2.26) нелинейность будет пропорциональна  $(\omega_{колеб}^2 - \omega_1^2)^{-3}$ .

#### Б. ИЗОТРОПНЫЕ И КУБИЧЕСКИЕ КОНДЕНСИРОВАННЫЕ СРЕДЫ

В конденсированной среде каждый атом или ион  $j$  находится в действующем поле  $\mathbf{E}_{loc}$ , которое отлично от поля  $\mathbf{E}$ , входящего в уравнение Максвелла. Лоренц показал, что в жидкости или в кристалле с кубической симметрией действующее поле равно

$$\mathbf{E}_{loc} = \mathbf{E} + \frac{4}{3} \pi \mathbf{P}_{полн} = \mathbf{E} + \frac{4}{3} \pi \mathbf{P}^L + \frac{4}{3} \pi \mathbf{P}^{NL}. \quad (3.5)$$

Вектор электрической индукции  $\mathbf{D}$ , входящий в уравнения Максвелла, есть

$$\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}^L + 4\pi \mathbf{P}^{NL}. \quad (3.6)$$

Линейную поляризацию можно выразить с помощью линейной поляризуемости  $\alpha$  в виде

$$\mathbf{P}^L = N\alpha \mathbf{E}_{loc}. \quad (3.7)$$

Из выражений (3.5) и (3.7) следует, что

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^L &= \frac{N\alpha}{1 - \frac{4}{3}\pi N\alpha} \mathbf{E} + \frac{N\alpha}{1 - \frac{4}{3}\pi N\alpha} \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}^{NL} = \\ &= \frac{\epsilon - 1}{4\pi} \mathbf{E} + \frac{\epsilon - 1}{3} \mathbf{P}^{NL}. \end{aligned}$$

Подстановка этого соотношения в выражение (3.6) дает

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} + \frac{\epsilon + 2}{3} 4\pi \mathbf{P}^{NL} = \epsilon \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}^{NLS}. \quad (3.8)$$

Отсюда следует важный результат, заключающийся в том, что эффективный нелинейный источник в  $(\epsilon + 2)/3$  раза превышает нелинейную поляризацию, которая определяется выражением

$$\mathbf{P}_3^{NL} = N\beta \mathbf{E}_{loc} \mathbf{E}_{loc} = N\beta \frac{\epsilon_1 + 2}{3} \frac{\epsilon_2 + 2}{3} \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2. \quad (3.9)$$

Указанное различие обусловлено энергией взаимодействия между нелинейным дипольным моментом, расположенным в одном узле решетки, и линейным дипольным моментом, находящимся в другом узле. Присутствие нелинейного дипольного момента в одном узле изменяет действующее поле и, следовательно, линейный дипольный момент в других узлах решетки. Это в свою очередь вызывает изменение электрической индукции. Взаимодействие между нелинейными дипольными моментами, расположенными в различных узлах, не учтено в выражении (3.9), что допустимо в рамках настоящей статьи, в которой нелинейность рассматривается как малое возмущение. Как указано во введении, нелинейная часть в  $eE_1 a / (W_0 - W_n)$  фаз меньше линейной поляризации. Комбинируя соотношения (3.8) и (3.9), получаем следующее выражение для макроскопической нелинейной восприимчивости:

$$\begin{aligned} \chi^{NL}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) &= N\beta(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \times \\ &\times \frac{\epsilon(\omega_1) + 2}{3} \frac{\epsilon(\omega_2) + 2}{3} \frac{\epsilon(\omega_3) + 2}{3}. \end{aligned} \quad (3.10)$$

Полученное выражение легко обобщить и получить соотношения более высоких порядков, справедливые для четырех или большего числа волн. Заметим, что для макроскопических величин  $\chi$  справедливы те же пространственно-частотные соотношения, что и для микроскопических величин  $\beta$  [см. (2.16)]. Для конденсированных диэлектриков полностью справедливы те соображения относительно запасенной энергии и мощности, переданной между вол-

нами, которые были приведены в п. «а» для газов при условии, что величина  $P^{NLS}$  определяется выражением (3.8). С такой оговоркой обсуждение примеров для газов без изменений применимо к жидкостям и кубическим кристаллам, обладающим центрами симметрии.

В кубических кристаллах со структурой ZnS, у которых отсутствует центр инверсии, конечное взаимодействие между тремя волнами будет иметь место даже в том случае, когда сохраняются только электрические дипольные матричные элементы, и на кристалл не действует внешнее постоянное электрическое поле. Тензор третьего ранга  $\chi_{ijk}$  имеет отличные от нуля компоненты, если все три индекса различны (например  $\chi_{xyz}$ ). В таких кристаллах легко генерируется вторая световая гармоника, но здесь трудно скорректировать линейную дисперсию так, чтобы достигнуть согласования фазовых скоростей волны основной частоты и волны на частоте гармоники. Джордмейн [13], а также Мейкер, Терхьюн и др. [14] показали, каким образом возможно осуществить такое согласование для обыкновенного и необыкновенного луча в анизотропных кристаллах. Более сложные нелинейные связи, существующие в этих кристаллах, будут рассмотрены в следующем параграфе. Следует, однако, иметь в виду, что основные физические идеи остаются при этом неизменными.

#### В. АНИЗОТРОПНЫЕ КРИСТАЛЛЫ

Общий случай произвольного числа атомов в элементарной ячейке кристалла произвольной симметрии можно исследовать тем же методом. Вместо одной скалярной поляризуемости и одного скалярного лоренцевского множителя, равного  $4\pi/3$ , мы имеем теперь много различных тензоров, которые обсуждаются в § 9. Приведем здесь выражения (9.11) и (9.13), которые понадобятся нам в дальнейшем:

$$\chi(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) = \sum_i \beta^{(i)}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) : N^{(i)}(\omega_3) N^{(i)}(\omega_2) N^{(i)}(\omega_1), \quad (3.11)$$

$$P^{NLS}(\omega_3) = \chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : E_1 E_2. \quad (3.12)$$

Макроскопическая нелинейная восприимчивость (3.11), очевидно, удовлетворяет тем же пространственно-частотным перестановочным соотношениям (2.16), которые справедливы для отдельных микроскопических нелинейных поляризуемостей  $\beta^{(i)}$ . Тензоры второго ранга  $\mathbf{N}$  определены в § 9.

Заметим, что тензор третьего ранга макроскопической нелинейной восприимчивости обладает свойствами точечной симметрии кристаллической решетки в целом, тогда как индивидуальные нелинейные поляризуемости обладают свойствами симметрии отдельных узлов решетки. Это относится и к тензорам более высокого ранга.

Пространственно-частотные перестановочные соотношения позволяют найти нелинейную часть *средней по времени плотности свободной энергии диэлектрика*

$$F = U - TS - EP, \quad (3.13)$$

$$dF = -SdT - PdE.$$

Эту величину можно определить, тогда как мгновенная величина свободной энергии не имеет смысла, поскольку в среде с дисперсией полная поляризация не определяется однозначно полным полем, взятым в данный момент времени. Нелинейная часть, пропорциональная  $E_1 E_2 E_3$ , дается интегралом, взятым в девятимерном пространстве от начала координат до точки  $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2, \mathbf{E}_3$ :

$$F^{NL} = -\frac{1}{2} \int_0^{\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2, \mathbf{E}_3} d\mathbf{E}_3 \cdot \chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 +$$

$$+ d\mathbf{E}_2 \cdot \chi(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_1 +$$

$$+ d\mathbf{E}_1 \cdot \chi(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_2. \quad (3.14)$$

В силу пространственно-частотных перестановочных соотношений это выражение не зависит от пути интегрирования [23]. Имеем

$$F^{NL} = -\frac{1}{2} \mathbf{E}_3 \cdot \mathbf{P}^{NLS}(\omega_3) = -\frac{1}{2} \mathbf{E}_2 \times$$

$$\times \mathbf{P}^{NLS}(\omega_2) = -\frac{1}{2} \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{P}^{NLS}(\omega_1). \quad (3.15)$$



Множитель  $1/2$  получается в результате усреднения по времени. Все величины представляют собой амплитуды. Нелинейную поляризацию на каждой из трех частот можно получить, взяв от  $F^{NL}$  частные производные по компонентам  $E_1$ ,  $E_2$  и  $E_3$  соответственно. Для частного случая, когда имеется только линейно поляризованная волна основной частоты  $E_1 \cos \omega_1 t$  и линейно поляризованная волна гармоники  $E_2 \cos 2\omega_1 t$ , можно написать

$$F^{NL} = -\frac{1}{2} \chi E_1^2 E_2. \quad (3.16)$$

Амплитуды нелинейной поляризации имеют вид

$$\begin{aligned} P^{NLS}(\omega_1) &= 2\chi E_1 E_2, \\ P^{NLS}(\omega_2) &= \chi E_1^2. \end{aligned} \quad (3.17)$$

Множитель 2 снова введен для того, чтобы получать амплитуды из усредненной по времени свободной энергии. Эти соотношения можно легко обобщить на случай, когда имеется зависимость от четвертой и более высоких степеней  $E$ .

Плотность энергии поля, обусловленного нелинейностью среды, равна

$$\begin{aligned} U_{\text{полев}}^{NL} &= \frac{1}{2} \int \mathbf{E} \cdot d\mathbf{P}^{NLS}(\text{реакт.}) = \\ &= \frac{1}{2} \sum_{i=1,2,3} \mathbf{E}_i \cdot \mathbf{P}_i^{NLS}(\text{реакт.}) - \frac{1}{2} \int \sum_i \mathbf{P}_i^{NLS} \cdot d\mathbf{E}_i = \\ &= -3F^{NL} + F^{NL} = -2F^{NL}. \end{aligned} \quad (3.18)$$

Такое же соотношение справедливо для волны основной частоты и второй гармоники. Если учитываются члены, кубические по амплитудам поля, то усредненная по времени энергия поля равна взятой с минусом удвоенной свободной энергии вещества. Для членов четвертого порядка получается

$$U^{NL}(E_1, E_2, E_3, E_4) = -3F^{NL}(E_1, E_2, E_3, E_4). \quad (3.19)$$

Активные компоненты нелинейной поляризации не дают вклада в свободную энергию, но, как показывает соот-

ношение (3.4), они ответственны за произведенную работу. Необходимо заметить, что знаки компонент  $P^{NLS}$  с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , отличающихся по фазе на  $90^\circ$  от полей  $E$  на тех же частотах, противоположны знаку  $P^{NLS}$  ( $\omega_3$ , акт.). Суммарная работа, произведенная недиссипативным диэлектриком над электромагнитными волнами, равна нулю. То же относится к полной работе, выполненной волнами над средой,

$$\sum_i \omega_i \int_{\text{Период}} \mathbf{E}_i \cdot \frac{d\mathbf{P}_i dt}{dt} = - \sum_i \omega_i \int_{\text{Период}} \mathbf{P}_i \cdot \frac{d\mathbf{E}_i}{dt} dt = 0. \quad (3.20)$$

Эти рассуждения, касающиеся усредненной по времени свободной энергии при наличии трех электромагнитных волн, можно распространить на случаи, когда имеют место эффекты, вызванные магнитными диполями и электрическими квадрупольями. Например, для кристалла, обладающего инверсионной симметрией, усредненная по времени свободная энергия имеет вид [24]

$$\begin{aligned} F^{NL} &= \mathbf{E}_3 \cdot \chi_{EHH}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \mathbf{H}_1 \mathbf{H}_2 + \\ &+ \mathbf{E}_2 \cdot \chi_{EHH}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \mathbf{H}_3 \mathbf{H}_1 + \\ &+ \mathbf{E}_1 \cdot \chi_{EHH}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \mathbf{H}_3 \mathbf{H}_2, \end{aligned} \quad (3.21)$$

причем выполняются следующие пространственно-частотные перестановочные соотношения:

$$\chi_{E_i H_j H_k}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{H_j E_i H_k}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) \text{ и т. д.} \quad (3.22)$$

Члены, линейные по  $H$ , отсутствуют, если только операция обращения времени не является элементом симметрии кристалла (как это имеет место в ферромагнетиках и антиферромагнетиках).

В настоящей статье мы все время считаем, что типы колебаний невырождены и линейно поляризованы. Случай вырожденных, а также циркулярно поляризованных типов колебаний, мы не рассматриваем. Когда через изотропное вещество проходит циркулярно поляризованный свет, то устанавливается направление времени и становятся важными члены, линейные по  $H$ . Следует отметить,

что нелинейные эффекты, связанные с фарадеевым вращением, исключены из проводимого нами рассмотрения.

В анизотропных кристаллах с центром симметрии отличные от нуля магнитоэлектрические дипольные члены самого низкого порядка квадратичны по  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$ . Эти члены, вообще говоря, малы, но они могут оказаться важными при возникновении второй гармоники или взаимодействии между тремя волнами в присутствии большого статического магнитного поля.

В отсутствие внешнего постоянного электрического и магнитного поля в кристаллах с центром симметрии остается еще член, кубический по амплитудам поля. Он относится к смешанному дипольно-квадрупольному типу и соответствует вкладу в усредненную по времени свободную энергию, равному

$$\begin{aligned} F^{NL} = & k_3 \mathbf{E}_3 : \mathbf{Q} (\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 + \\ & + k_2 \mathbf{E}_2 : \mathbf{Q} (\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_1 + \\ & + k_1 \mathbf{E}_1 : \mathbf{Q} (\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : \mathbf{E}_3 \mathbf{E}_2. \end{aligned} \quad (3.23)$$

#### § 4. Связь между электромагнитными волнами

Уравнения Максвелла в нелинейной диэлектрической среде без потерь можно записать для каждой частотной компоненты в виде

$$\nabla \times \mathbf{E} = - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (4.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = + \frac{1}{c} \frac{\partial \epsilon \cdot \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{P}^{NLS}}{\partial t}. \quad (4.2)$$

Нелинейный источник был определен выше. Уравнение энергетического баланса можно написать, приравнявая поток энергии в элемент объема  $V$ , ограниченный поверхностью  $\sigma$ , к сумме изменения энергии, запасенной нелинейной средой, и работы, выполненной нелинейной поляризацией над линейной волной с частотой  $\omega_3$ ,

$$\begin{aligned} - \frac{c}{4\pi} \iint \mathbf{E}_3 \times \mathbf{H}_3 \cdot \hat{\mathbf{n}} d\sigma = & \frac{1}{8\pi} \frac{\partial}{\partial t} \iiint \{ \mathbf{E}_3 \cdot \epsilon (\omega_3) \cdot \mathbf{E}_3 + \\ & + \mathbf{H}_3 \cdot \mu (\omega_3) \cdot \mathbf{H}_3 \} dV + \iiint \mathbf{E}_3 \cdot \frac{d\mathbf{P}^{NLS}(\omega_3)}{dt} dV. \end{aligned} \quad (4.3)$$

Все величины в этом выражении действительны и подобны соответствующим величинам для частот  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Если уравнения, записанные для трех частот, усреднить по целому числу периодов и сложить, то алгебраическая сумма последних членов справа обратится в нуль в соответствии с соотношением (3.20). В результате получится обычное уравнение баланса энергии для диэлектрика без потерь. Слева имеем полный поток мощности через поверхность  $\sigma$ . Более интересно обсудить вектор Пойнтинга и баланс энергии для каждой частоты отдельно.

Рассмотрим волну

$$\mathbf{E}_3 = \text{Re} \left[ \hat{\mathbf{a}}_3 A_3(z) e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} \right] = \hat{\mathbf{a}}_3 \rho_3(z) \cos [k_3 z - \omega_3 t + \varphi_3(z)]. \quad (4.4)$$

В линейной среде комплексная амплитуда плоской волны постоянна. В нелинейной среде эта комплексная амплитуда будет изменяться из-за взаимодействия с другими волнами с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Волновая нормаль взята в направлении оси  $z$ , которая ориентирована совершенно произвольно по отношению к кристаллографическим осям. В анизотропных кристаллах вектор поляризации  $\hat{\mathbf{a}}_3$  может составлять некоторый угол с направлением  $z$ . Энергия распространяется в направлении  $z'$  в плоскости, определяемой векторами  $\hat{\mathbf{a}}_3$  и  $\hat{\mathbf{z}}$ , причем вектор  $\hat{\mathbf{z}}$  перпендикулярен  $\hat{\mathbf{a}}_3$ . Геометрические соотношения между макроскопическими параметрами поля подробно рассмотрены Борном и Вольфом [25]. Угол между  $z'$  и  $z$  обозначен ими через  $\alpha$ .

Из выражения (4.1) следует, что при  $\mu = 1$  магнитное поле, перпендикулярное  $\mathbf{E}$  и  $\hat{\mathbf{z}}$ , равно по величине  $|H| = \rho_3 k_3 c \omega_3^{-1} \cos \alpha$ .

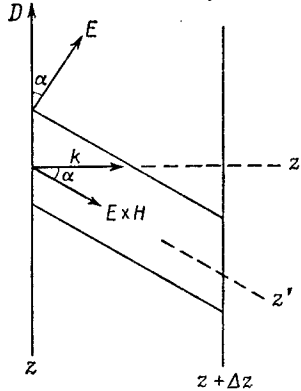
Рассмотрим цилиндр, показанный на фиг. 1, ограниченный плоскостями  $z$  и  $z + \Delta z$  и имеющий поперечное сечение  $1 \text{ см}^2$ . Если выражение (4.3) проинтегрировать по времени по целому числу периодов и по пространству в пределах указанного цилиндра, то получим

$$\frac{k_3 c^2}{4\pi \omega_3} \cos^2 \alpha \frac{d(\rho_3^2)}{dz} \Delta z = \omega_3 \rho_3 \hat{\mathbf{a}}_3 \cdot \mathbf{P}^{NLS}(\omega_3, \text{акт.}) \Delta z. \quad (4.5)$$

Подставляя сюда вместо  $\mathbf{P}^{\text{NLS}}$  выражение (3.12), приходим к дифференциальному уравнению для амплитуды волны с частотой  $\omega_3$

$$\frac{d\rho_3}{dz} = \frac{2\pi\omega_3^2}{k_3 c^2} \frac{(\hat{\mathbf{a}}_3 \cdot \boldsymbol{\chi}^{\text{NL}} : \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_2)}{\cos^2 \alpha_3} \rho_1 \rho_2 \sin(\Delta k z + \Delta \varphi). \quad (4.6)$$

Обозначение для разности фаз между тремя волнами дано в § 3. Здесь сделано предположение, что результирующий вектор  $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$  направлен по оси  $z$ . Далее мы будем считать, что фазовые скорости трех волн почти параллельны друг другу, за исключением случая точного согласования  $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$ , когда волновые векторы могут иметь произвольные направления. Эффекты, возникающие из-за небольшого рассогласования фазовых скоростей вдоль направлений  $x$  и  $y$ , не будут учитываться.



Фиг. 1. Распространение света в анизотропном кристалле.

Нормаль к поверхности волнового фронта направлена по оси  $z$ , поток энергии идет в направлении распространения луча  $z'$ .

В этом случае лучевые скорости будут, конечно, также почти параллельны друг другу. Физическое взаимодействие между пучками света конечного поперечного сечения происходит вдоль направления потока энергии  $z'$ . Этот вывод указывает на важность члена  $(\cos \alpha)^{-2}$  с физической точки зрения. Он также показывает, что истинным источником является компонента нелинейной поляризации, параллельная вектору электрического поля. Существует, конечно, другая волна, также распространяющаяся вдоль оси  $z$  и имеющая иной вектор поляризации  $\hat{\mathbf{a}}_3$ . Примем, что фазовая скорость этой волны сильно рассогласована,  $\Delta k' \gg \Delta k$ . Поэтому мы не будем учитывать эту волну, равно как и волны других частот.

В уравнении (4.6) не учитывается влияние реактивной компоненты  $\mathbf{P}^{\text{NLS}}$ , которая изменяет фазу  $\varphi(z)$ . Пред-

ставляет интерес произвести полный учет влияния  $\mathbf{P}^{\text{NLS}}$  несколько другим способом, исходя из волнового уравнения. Для  $\mathbf{E}_3$  и  $\mathbf{P}_3^{\text{NLS}}$  используем комплексные обозначения в соответствии с выражением (4.4). Это, безусловно, можно сделать после того, как выполнена нелинейная операция нахождения действительных значений активной и реактивной компонент  $\mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_3)$ . Комбинируя уравнения Максвелла (4.1) и (4.2), получаем волновое уравнение с нелинейным источником

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 (\epsilon \mathbf{E})}{\partial t^2} = - \frac{4\pi}{c} \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{\text{NLS}}}{\partial t^2}. \quad (4.7)$$

Если приравнять левую часть этого уравнения нулю, то мы будем иметь однородное уравнение, которому в линейной среде удовлетворяет волна (4.4), где  $A(z)$  — постоянная величина. Неоднородное уравнение может быть удовлетворено, если  $A(z)$  удовлетворяет другой системе дифференциальных уравнений, получающейся в результате прямой подстановки. В физически реализуемых ситуациях относительное изменение амплитуды на расстоянии, равном длине волны, мало, так как нелинейная восприимчивость очень мала по сравнению с линейной частью. Поэтому можно пренебречь членами с второй производной от амплитуды  $\partial^2 A / \partial z^2 \ll k \partial A / \partial z$ . Умножая уравнение (4.7) скалярно на  $\hat{\mathbf{a}}_3$  и подставляя вместо  $\mathbf{E}$  выражение (4.4), получаем дифференциальное уравнение для комплексной амплитуды

$$\begin{aligned} & + 2\hat{\mathbf{a}}_3 \cdot (\nabla A_3) \times [\nabla \times \hat{\mathbf{a}}_3 e^{i k_3 z - \omega_3 t}] = \\ & = \frac{4\pi\omega_3^2}{c^2} \hat{\mathbf{a}}_3 \cdot \boldsymbol{\chi} : \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_2 A_1 A_2 e^{i(k_1 + k_2)z - i(\omega_1 + \omega_2)t} \end{aligned}$$

Это уравнение можно преобразовать следующим образом:

$$\begin{aligned} & + 2\hat{\mathbf{a}}_3 \times [\nabla \times \hat{\mathbf{a}}_3 e^{i k_3 z - \omega_3 t}] \cdot \nabla A_3 = \frac{4\pi\omega_3^2}{c^2} (\hat{\mathbf{a}}_3 \cdot \boldsymbol{\chi} : \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_2) \times \\ & \times A_1 A_2 e^{i(k_1 + k_2)z - i\omega_3 t} + i k_3 \cos^2 \alpha_3 \frac{\partial A_3(z)}{\partial z} = \\ & = \frac{2\pi\omega_3^2}{c^2} (\hat{\mathbf{a}}_3 \cdot \boldsymbol{\chi} : \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_2) A_1 A_2 e^{i \Delta k z}. \quad (4.8) \end{aligned}$$

Компонента  $\mathbf{E}$ , взятая в направлении другого вектора поляризации, подчиняется такому же уравнению, но с большим значением  $\Delta k$ . Третью компоненту  $\mathbf{E}$  удобнее всего найти из условия

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \nabla \cdot \mathbf{E} + 4\pi \nabla \cdot \mathbf{P}^{\text{NLS}} = 0.$$

Если взять производную от уравнения (4.8) по направлению волновой нормали и найти действительную часть, то в результате снова получим уравнение (4.6). Аналогичные дифференциальные уравнения можно вывести для  $A_1(z)$  и  $A_2(z)$ . Заметим, что для получения  $A_1 \exp(i\omega_1 t)$  надо скомбинировать  $A_3 \exp(i\omega_3 t)$  с  $A_2^* \exp(-i\omega_2 t)$ , и т. д. Пространственно-частотные перестановочные соотношения позволяют ввести действительную постоянную

$$K = \frac{2\pi}{c^2} \hat{\mathbf{a}}_2 \cdot \boldsymbol{\chi}(\omega_3) : \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_2 = \frac{2\pi}{c^2} \hat{\mathbf{a}}_2 \cdot \boldsymbol{\chi}(\omega_2) : \hat{\mathbf{a}}_3 \hat{\mathbf{a}}_1 = \\ = \frac{2\pi}{c^2} \hat{\mathbf{a}}_1 \cdot \boldsymbol{\chi}(\omega_1) : \hat{\mathbf{a}}_3 \hat{\mathbf{a}}_2,$$

и система уравнений для амплитуд принимает вид

$$\frac{dA_1^*}{dz} = - \frac{i\omega_1^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} A_3^* A_2 e^{i(\Delta k z + \Delta \varphi)}, \\ \frac{dA_2^*}{dz} = - \frac{i\omega_2^2 K}{k_2 \cos^2 \alpha_2} A_3^* A_1 e^{i(\Delta k z + \Delta \varphi)}, \\ \frac{dA_3}{dz} = + \frac{i\omega_3^2 K}{k_3 \cos^2 \alpha_3} A_1 A_2 e^{i(\Delta k z + \Delta \varphi)}.$$

(4.9)

Аналогичным образом получаются уравнения, описывающие изменения амплитуды и фазы второй гармоники, взаимодействующей с основной волной

$$\frac{dA_1^*}{dz} = - \frac{i2\omega^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} A_2^* A_1 e^{i(2k_1 - k_2)z}, \\ \frac{dA_2}{dz} = + \frac{i4\omega^2 K}{k_2 \cos^2 \alpha_2} A_1^2 e^{i(2k_1 - k_2)z}.$$

(4.10)

Эти уравнения можно обобщить на более высокие степени амплитуд поля. Например, амплитудные уравне-

ния, описывающие генерацию третьей гармоники, имеют вид

$$\frac{dA_1^*}{dz} = - \frac{i3\omega^2}{k_1 \cos^2 \alpha_1} [CA_3^* A_1^2 e^{i(3k_1 - k_3)z} + \\ + C' A_1^* A_1 A_1^* + C'' A_1^* A_3 A_3^*], \\ \frac{dA_3}{dz} = + \frac{i9\omega^2}{k_3 \cos^2 \alpha_3} [CA_1^3 e^{i(3k_1 - k_3)z} + \\ + 3C'' A_3 A_1 A_1^* + C''' A_3 A_3 A_3^*],$$

(4.11)

где постоянная  $C$  равна

$$C = \frac{2\pi}{c^2} \hat{\mathbf{a}}_3 \cdot \boldsymbol{\chi}'(\omega_3 = \omega_1 + \omega_1 + \omega_1) : \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_1 = \\ = \frac{2\pi}{c^2} \hat{\mathbf{a}}_1 \cdot \boldsymbol{\chi}''(\omega_1 = \omega_3 - \omega_1 - \omega_1) : \hat{\mathbf{a}}_3 \hat{\mathbf{a}}_1 \hat{\mathbf{a}}_1.$$

(4.11a)

Входящий сюда тензор четвертого ранга  $\boldsymbol{\chi}'$  выражается через нелинейную поляризуемость  $\boldsymbol{\chi}'$  более высокого порядка, которая определяется из соотношения (2.22). Величины  $C'$ ,  $C''$  и  $C'''$  можно связать с нелинейной поляризуемостью аналогичным способом. Они входят в члены, чисто реактивные по своей природе. Из обозначений ясно, что, например, член  $C'' A_1^* A_3 A_3^* = \partial A_1^* / \partial z$  соответствует вкладу, вносимому в когерентное рассеяние квантовым процессом, в котором фотоны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_3$  рассеиваются одновременно. Поток мощности при этом не изменяется. Действительно, эти реактивные члены описывают низкочастотный эффект Керра. Постоянная распространения волны с частотой  $\omega_3$  изменяется под влиянием члена, пропорционального  $C^{\text{пост}} E_{\text{пост}}^2$  аналогично тому, как она изменяется под действием члена  $C'' A_1 A_1^* + C''' A_3 A_3^*$ . Этот вопрос будет обсуждаться в § 7.

Генерирование третьей гармоники является частным случаем взаимодействия между четырьмя электромагнитными волнами. Если, например, для них справедливы следующие соотношения между частотами и волновыми векторами:

$$\omega_4 + \omega_1 = \omega_2 + \omega_3, \quad \Delta k = +k_2 + k_3 - k_1 - k_4,$$

то система амплитудных уравнений имеет вид

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= + \frac{i\omega_1^2 C}{k_1 \cos^2 \alpha_1} A_2 A_3 A_4^* e^{i \Delta k z} + \frac{i\omega_1^2}{k_1 \cos^2 \alpha_1} A_1 \sum_{j=1}^4 C_{1j} A_j A_j^*, \\ \frac{dA_2^*}{dz} &= - \frac{i\omega_2^2 C}{k_2 \cos^2 \alpha_2} A_1^* A_3 A_4^* e^{i \Delta k z} - \frac{i\omega_2^2}{k_2 \cos^2 \alpha_2} A_2^* \sum_{j=1}^4 C_{2j} A_j A_j^*, \\ \frac{dA_3^*}{dz} &= - \frac{i\omega_3^2 C}{k_3 \cos^2 \alpha_3} A_1^* A_2 A_4^* e^{i \Delta k z} - \frac{i\omega_3^2}{k_3 \cos^2 \alpha_3} A_3^* \sum_{j=1}^4 C_{3j} A_j A_j^*, \\ \frac{dA_4}{dz} &= + \frac{i\omega_4^2 C}{k_4 \cos^2 \alpha_4} A_1^* A_2 A_3 e^{i \Delta k z} + \frac{i\omega_4^2}{k_4 \cos^2 \alpha_4} A_4 \sum_{j=1}^4 C_{4j} A_j A_j^*. \end{aligned} \quad (4.12)$$

Снова в правую часть входят чисто реактивные члены, соответствующие эффекту Керра.

Некоторые интегралы этих комплексных амплитудных уравнений можно получить сразу же, умножая уравнения соответственно на  $A_1^*$ ,  $A_2$ ,  $A_3$  и  $A_4^*$  и добавляя комплексно сопряженные выражения. Правые части становятся равными. Заметим, что составляющую вектора Пойнтинга вдоль волновой нормали можно записать в виде

$$\begin{aligned} |S_1| \cos \alpha_1 &= \frac{c \cos \alpha_1}{8\pi} |(\mathbf{E}_1 \times \mathbf{H}_1^* + \mathbf{E}_1^* \times \mathbf{H}_1)| = \\ &= \frac{k_1 c^2 \cos^2 \alpha_1}{4\pi \omega_1} A_1 A_1^*, \end{aligned} \quad (4.13)$$

аналогичные соотношения получаются и для других частот. Таким методом получаются соотношения Мэнли — Роу [26], хорошо известные в теории параметрических усилителей [19]. Величины

$$\begin{aligned} |S_1| \frac{\cos \alpha_1}{\omega_1} + |S_2| \frac{\cos \alpha_2}{\omega_2}, \\ |S_1| \frac{\cos \alpha_1}{\omega_1} + |S_3| \frac{\cos \alpha_3}{\omega_3}, \end{aligned} \quad (4.14)$$

$$|S_1| \frac{\cos \alpha_1}{\omega_1} - |S_4| \frac{\cos \alpha_4}{\omega_4}$$

сохраняются в процессе взаимодействия. Физическая интерпретация заключается в следующем. Если число квантов, проходящих через  $1 \text{ см}^2$  волнового фронта в  $1 \text{ сек}$  в волне с частотой  $\omega_1$ , увеличивается на некоторое количество, то число квантов в волне с частотой  $\omega_4$  также увеличивается на то же количество, а в волнах с частотами  $\omega_2$  и  $\omega_3$  уменьшается на ту же величину [27]. Соотношения Мэнли — Роу, соответствующие уравнениям (4.9) — (4.11), получаются с помощью такого же метода. Для нахождения полного решения системы нелинейных дифференциальных уравнений необходимо вернуться к действительным величинам. Это будет выполнено в следующих параграфах.

## § 5. Генерация второй гармоники. Точное решение

Используя те же обозначения, что и в (4.4), можно записать комплексные уравнения (4.10), описывающие генерацию второй гармоники, в виде уравнений для их действительных и мнимых частей

$$\frac{d\rho_1}{dz} = - \frac{2\omega^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \rho_1 \rho_2 \sin \theta, \quad (5.1a)$$

$$\frac{d\rho_2}{dz} = \frac{4\omega^2 K}{k_2 \cos^2 \alpha_2} \rho_1^2 \sin \theta, \quad (5.1b)$$

$$\frac{d\theta}{dz} = \Delta k - 4\omega^2 K \left( \frac{\rho_2}{k_1 \cos^2 \alpha_1} - \frac{\rho_1^2}{\rho_2 k_2 \cos^2 \alpha_2} \right) \cos \theta, \quad (5.1b)$$

где  $\theta = 2\varphi_1(z) - \varphi_2(z) + \Delta k z$  и  $\Delta k = 2k_1 - k_2$ . Из первых двух уравнений получается соотношение Мэнли — Роу, которое для случая двух волн эквивалентно условию сохранения потока мощности в диэлектрике без потерь:

$$W = \frac{c^2}{8\pi\omega} \left( k_1 \rho_1^2 \cos^2 \alpha_1 + \frac{1}{2} k_2 \rho_2^2 \cos^2 \alpha_2 \right). \quad (5.2)$$

Подставляя уравнения (5.1а) и (5.1б) в уравнение (5.1в), получаем

$$\frac{d\theta}{dz} = \Delta k + \frac{\cos \theta}{\sin \theta} \frac{d \ln(\rho_1^2 \rho_2)}{dz}. \quad (5.3)$$

Дальнейшее упрощение можно получить с помощью подстановок

$$\begin{aligned} u &= \left( \frac{c^2 k_1 \cos^2 \alpha_1}{8\pi\omega W} \right)^{1/2} \rho_1, \\ v &= \left( \frac{c^2 k_2 \cos^2 \alpha_2}{16\pi\omega W} \right)^{1/2} \rho_2, \\ \zeta &= \frac{2\omega^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \left( \frac{16\pi\omega W}{c^2 k_2 \cos^2 \alpha_2} \right)^{1/2} z. \end{aligned} \quad (5.4)$$

Уравнения (5.1) и (5.3) принимают вид

$$\begin{aligned} \frac{du}{d\zeta} &= -uv \sin \theta, \\ \frac{dv}{d\zeta} &= u^2 \sin \theta, \\ \frac{d\theta}{d\zeta} &= \Delta s + \frac{\cos \theta}{\sin \theta} \frac{d \ln(u^2 v)}{d\zeta}, \end{aligned} \quad (5.5)$$

где

$$\Delta s = \frac{\Delta k}{\left( \frac{2\omega^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \right) \left( \frac{16\pi\omega W}{c^2 k_2 \cos^2 \alpha_2} \right)^{1/2}}, \quad (5.6)$$

а соотношение (5.2) записывается следующим образом:

$$1 = u^2 + v^2. \quad (5.7)$$

#### А. СОГЛАСОВАННЫЕ ФАЗОВЫЕ СКОРОСТИ.

Когда волны основной частоты и второй гармоники имеют одинаковые фазовые скорости, т. е.  $2k_1 = k_2$  и  $\Delta k = \Delta s = 0$ , то можно сразу проинтегрировать третье из уравнений (5.5) и получить вторую постоянную интегрирования

$$\begin{aligned} u^2 v \cos \theta = \Gamma &= \frac{2k_1}{k_2} \left( \frac{c^2 k_2}{16\pi\omega W} \right)^{3/2} \rho_1^2(0) \rho_2(0) \cos^2 \alpha_1 \cos \alpha_2 \times \\ &\times \cos[\varphi_2(0) - 2\varphi_1(0)]. \end{aligned} \quad (5.8)$$

Из соотношений (5.5), (5.7) и (5.8) получается

$$\frac{dv^2}{d\zeta} = \pm 2[v^2(1-v^2)^2 - \Gamma^2]^{1/2}, \quad (5.9)$$

где выбор знака «+» или «-» определяется знаком  $\sin \theta$  для  $z = 0$ . Общее решение уравнения (5.9) можно записать в виде эллиптического интеграла

$$\zeta = \pm \frac{1}{2} \int_{v^2(0)}^{v^2(\zeta)} \frac{d(v^2)}{[v^2(1-v^2)^2 - \Gamma^2]^{1/2}}. \quad (5.10)$$

Так как величина  $v$  действительна и равна или меньше 1, то  $v^2$  может изменяться лишь между двумя наименьшими положительными корнями уравнения  $v^2(1-v^2)^2 - \Gamma^2 = 0$ . Обозначим эти два корня через  $v_a$  и  $v_b$ ,  $v_a \leq v_b$ . Тогда  $v$  колеблется между  $v_a$  и  $v_b$  с периодом, который дается выражением

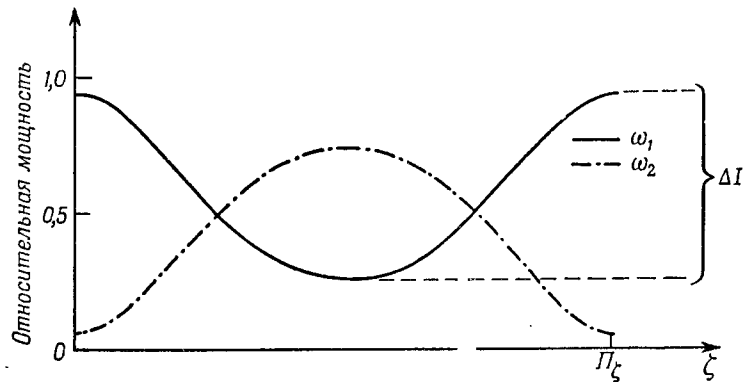
$$P_\zeta = \int_{v_a^2}^{v_b^2} \frac{d(v^2)}{[v^2(1-v^2)^2 - \Gamma^2]^{1/2}}. \quad (5.11)$$

Типичное решение показано графически на фиг. 2. Частный случай краевого условия  $\Gamma = 0$  означает, что  $v_a^2 = 0$ ,  $v_b^2 = 1$ ,  $P_\zeta \rightarrow \infty$ . В этом случае интегрирование выражения (5.10) производится элементарно и дает

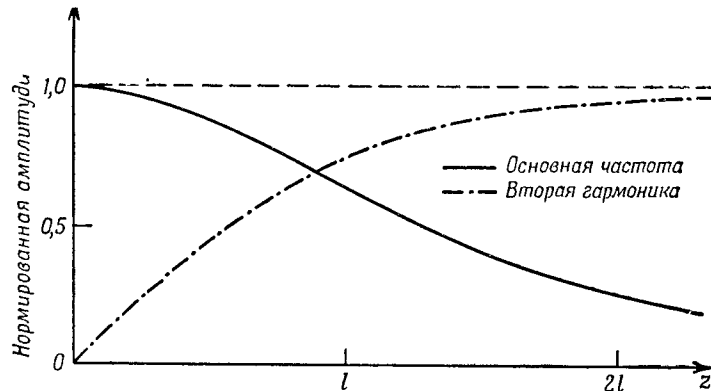
$$v_{\Gamma=0}(\zeta) = \text{th}(\zeta + \zeta_0), \quad (5.12)$$

$$u_{\Gamma=0}(\zeta) = \text{sch}(\zeta + \zeta_0).$$

Постоянная интегрирования  $\zeta_0$  равна нулю, если при  $z = 0$  амплитуда второй гармоники равна нулю, т. е.  $\rho_2(0) = 0$ . Такое краевое условие часто используется. Соответствующее решение представлено на фиг. 3. Следует иметь в виду, однако, что корректное рассмотрение граничных условий на поверхности диэлектрика приводит к отличному от нуля, но достаточно малому значению  $\rho_2(0)$ . Для большинства кристаллов величины  $\cos^2 \alpha_1$  и  $\cos^2 \alpha_2$  близки к единице. Характеристическую



Фиг. 2. Изменение относительной мощности волны основной частоты и волны второй гармоники для произвольных краевых условий.



Фиг. 3. Кривые, характеризующие нарастание нормированной амплитуды волны второй гармоники и уменьшение нормированной амплитуды волны основной частоты при точном согласовании фазовых скоростей в случае, когда амплитуда волны второй гармоники на границе равна нулю.

длину нелинейного взаимодействия  $l$  можно определить следующим выражением:

$$l^{-1} \approx 2\omega^2 K k_1^{-1} \rho_1(0). \quad (5.13)$$

На этом расстоянии около 75% мощности основной частоты преобразуется во вторую гармонику.

Если  $\rho_1(0)$ , т. е. амплитуда волны основной частоты при  $z = 0$  стремится к нулю, то  $\zeta_0 \rightarrow -\infty$ . Интенсивность субгармоники мала в системе с бегущей волной. Однако она может быть существенно повышена за счет обратной связи (амплитуда  $\rho_1$  при  $z = 0$  определяется шумами). Такой случай рассмотрен Кингстоном [28].

Выражения (5.12) справедливы при  $\rho_1(0) \neq 0$ ,  $\rho_2(0) \neq 0$ , если выполняется условие  $\varphi_2(0) - 2\varphi_1(0) = \pm\pi/2$ . При точном согласовании эта разность фаз будет сохраняться.

Если  $\sin \theta(0) = +1$ , то будет усиливаться вторая гармоника, если же  $\sin \theta(0) = -1$ , то усиливается основная волна. Когда сначала усиливается основная волна ( $\zeta_0 < 0$ ), вторая гармоника уменьшается до нуля, а затем возрастает до тех пор, пока вся мощность не окажется сосредоточенной в ней. Когда сначала усиливается вторая гармоника ( $\zeta_0 > 0$ ), она монотонно растет, стремясь достигнуть уровня, соответствующего полному преобразованию мощности.

Если ввести величину

$$y^2 = \frac{v^2 - v_a^2}{v_b^2 - v_a^2}$$

и обозначить третий корень кубического уравнения  $v^2(1 - v^2)^2 - \Gamma^2 = 0$  через  $v_c^2 \geq v_b^2 \geq v_a^2$ , то выражение (5.10) можно записать в виде

$$\zeta = \frac{\pm 1}{(v_c^2 - v_a^2)^{1/2}} \int_{y(0)}^{y(\zeta)} \frac{dy}{[(1 - y^2)(1 - \gamma^2 y^2)]^{1/2}}, \quad (5.14)$$

где

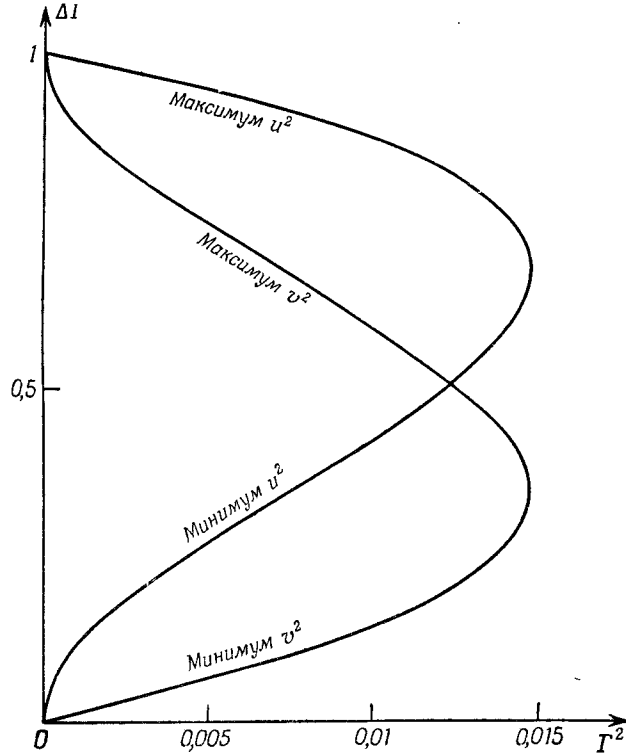
$$\gamma^2 = \frac{v_b^2 - v_a^2}{v_c^2 - v_a^2}.$$

Величина  $y$  определяется как эллиптическая функция Якоби от  $\zeta$ . Нормированные амплитуды  $u$  и  $v$  можно записать в следующем виде [29]:

$$\begin{aligned} v^2 &= v_a^2 + (v_b^2 - v_a^2) \operatorname{sn}^2[(v_c^2 - v_a^2)^{1/2}(\zeta + \zeta_0), \gamma], \\ u^2 &= 1 - v_a^2 - (v_b^2 - v_a^2) \operatorname{sn}^2[(v_c^2 - v_a^2)^{1/2}(\zeta + \zeta_0), \gamma], \end{aligned} \quad (5.14a)$$

где  $\zeta_0$  определяется условием при  $z = 0$  [т. е. значением  $y(0)$ ] и величиной  $\gamma$ .

Результаты проведенного анализа суммированы на фиг. 4. Площадь, ограниченная кривыми  $u^2$  и  $v^2$ , определяет интервал изменения этих величин при разных



Фиг. 4. Зависимость диапазона изменения мощности  $\Delta l$  в волне основной частоты и волне второй гармоники при точном согласовании фазовых скоростей от параметра  $\Gamma^2$  [см. выражение (5.8)].

значениях  $\Gamma^2$ . Заметим, что соотношения (5.7) и (5.8) дают для максимального значения  $\Gamma_{\text{макс}}^2 = 4/27 = 0,148$ .

#### Б. НЕТОЧНОЕ СОГЛАСОВАНИЕ ФАЗОВЫХ СКОРОСТЕЙ

Если фазовые скорости волны основной частоты и второй гармоники согласованы неточно, т. е.  $\Delta k \neq 0$  и поэтому  $\Delta s \neq 0$ , то уравнения (5.5) все же можно проин-

тегрировать методом вариации параметра в решении однородного уравнения. Таким способом находим более общее решение

$$vu^2 \cos \theta + \frac{1}{2} \Delta s v^2 = \Gamma_{\Delta s}, \quad (5.15)$$

где  $\Gamma_{\Delta s}$  можно выразить через величину  $\Gamma$ , которая определена соотношением (5.8)

$$\Gamma_{\Delta s} = \Gamma + \frac{1}{2} \Delta s v^2(0). \quad (5.16)$$

Обобщением выражения (5.10) является выражение

$$\zeta = \pm \frac{1}{2} \int_{v^2(0)}^{v^2(\zeta)} \frac{d(v^2)}{\left[ v^2(1-v^2)^2 - \left\{ \Gamma - \frac{1}{2} \Delta s [v^2 - v^2(0)] \right\}^2 \right]^{1/2}}. \quad (5.17)$$

Все сказанное ранее о соотношении (5.10) и решениях для  $\Delta k = 0$  можно теперь перенести на выражение (5.17). Решения для  $\Delta k \neq 0$  даются формулами (5.13) и (5.14) с тем же определением  $y^2$ . Три корня  $v_c^2 \geq v_b^2 \geq v_a^2 \geq 0$  являются теперь корнями уравнения

$$v^2(1-v^2)^2 - \left\{ \Gamma - \frac{1}{2} \Delta s [v^2 - v(0)^2] \right\}^2 = 0. \quad (5.18)$$

Для важного случая  $\rho_1(0) \gg \rho_2(0)$  при  $\Delta k/k_1 \ll 1$ , и  $\cos^2 \alpha_1 = \cos^2 \alpha_2 \approx 1$  полезны следующие приближения:

$$\Gamma \approx \frac{\rho_2(0)}{\rho_1(0)} \cos [\varphi_2(0) - 2\varphi_1(0)], \quad (5.19)$$

$$\Delta s \approx \frac{\Delta k}{(2 \cdot 10^2 K/k_1) \rho_1(0)} \approx \Delta k l, \quad (5.20)$$

где  $l$  определяется выражением (5.13). Корни уравнения (5.18) можно, вообще говоря, найти графически. Для простого случая  $\rho^2(0) = 0$  [ $\Gamma = 0$  и  $v(0) = 0$ ]

$$v_a^2 = 0, \quad v_b^2 = \frac{1}{v_c^2} = \left[ \frac{1}{\Delta s/4 + [1 + (\Delta s/4)^2]^{1/2}} \right]^2, \quad (5.21)$$



а период дается эллиптическим интегралом

$$P_{\zeta} = \frac{2}{v_c} \int_0^{\pi/2} \frac{dt}{[1 - (v_b/v_c)^2 \sin^2 t]^{1/2}}. \quad (5.22)$$

Если условие согласования фазовых скоростей приближенно выполнено, т. е.

$$\Delta s \approx \Delta kl \ll 1, \quad (5.23)$$

то величины  $v_b$  и  $P_{\zeta}$ , определяемые соотношениями (5.21) и (5.22), относительно мало зависят от  $\Delta s$  и происходит существенное преобразование мощности. На фиг. 5 приведены соответствующие примеры для нескольких значений рассогласования фазовых скоростей.

При  $\Delta s \gg 1$  наилучшее приближение к точному значению выражения (5.17) можно получить, возвращаясь к уравнениям (5.1). Наиболее важным экспериментальным случаем является неточное согласование, при котором  $\rho_2$  всегда остается малой величиной. В этом случае  $\rho_1$  можно рассматривать как интеграл движения.

Если амплитуда второй гармоники при  $z = 0$  равна нулю, то приближенные решения уравнений (5.16) и (5.1в) имеют вид

$$\theta = \frac{\Delta kz}{2} + \frac{\pi}{2}, \quad (5.24a)$$

$$\rho_2(z) = \frac{4\rho_1(0)}{\Delta kl} \sin \frac{\Delta kz}{2}.$$

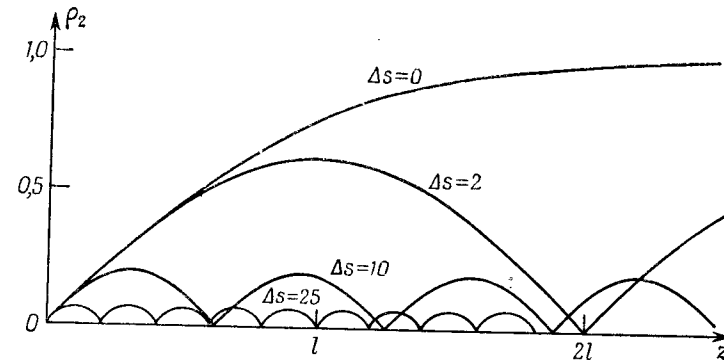
Заметим, что изменение фазы с расстоянием определяется величиной  $\Delta kz/2$ , а не  $\Delta kz$ . Фазовая скорость волны второй гармоники, возбуждаемой при  $z = 0$  в процессе нелинейного взаимодействия, не равна скорости однородной<sup>1)</sup> волны с частотой  $2\omega$ . Если, однако, при  $z = 0$  вторая гармоника достаточно велика, так что  $\Delta k\rho_2(0) \gg \rho_1(0)/l$ , то ее фазовая скорость равна фазовой скорости волны с частотой  $2\omega$

$$\theta = \Delta kz + \theta_0 + \frac{1}{2}\pi, \quad (5.24б)$$

$$\rho_2(z) = \rho_2(0) + \frac{2}{\Delta kl} \rho_1(0) [\sin(\theta_0 + \Delta kz) - \sin \theta_0],$$

<sup>1)</sup> Под однородными волнами понимаются волны, являющиеся решениями однородного волнового уравнения.—Прим. ред.

Мощность  $\rho_2^2(z)$  имеет период  $1/\Delta k$  независимо от значения  $\rho_2(0)$ . При  $0 < \theta < \pi$  мощность передается от волны с частотой  $\omega$  к волне с частотой  $2\omega$ . Когда волны пройдут вдоль  $z$  расстояние  $\pi/\Delta k$ , мощность начинает передаваться в обратном направлении от волны с частотой  $2\omega$  к волне с частотой  $\omega$ . В любом случае мощность второй гармоники не достигает больших значений. Именно этим оправдывается пренебрежение более высокими



Фиг. 5. Кривые, характеризующие изменение нормированной амплитуды волны второй гармоники  $\rho_2$  при различных величинах рассогласования фазовых скоростей.

гармониками в системе амплитудных уравнений. Вообще фазовые скорости этих гармоник и волны основной частоты рассогласованы сильнее, чем приблизительно согласованные фазовые скорости волны основной частоты и второй гармоники. Поэтому высшие гармоники будут нарастать до амплитуд, много меньших амплитуды волны второй гармоники.

#### В. СРЕДА С ПОТЕРЯМИ

Затухание, или потери, можно, конечно, ввести в уравнения Максвелла (4.1) и (4.2) и в волновое уравнение (4.7) таким же способом, как это делается в случае линейной среды. При получении гармоник нужно принимать в расчет даже очень малые потери, но тем не

менее представляет интерес рассмотреть случай, когда длина поглощения сравнима или меньше определенной ранее длины взаимодействия  $l$ .

Для диэлектрика с потерями амплитудные уравнения (5.1) должны быть заменены следующими:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_1}{dz} + b_1\rho_1 &= -\frac{2\omega^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \rho_1 \rho_2 \sin \theta, \\ \frac{d\rho_2}{dz} + b_2\rho_2 &= \frac{4\omega^2 K}{k_2 \cos^2 \alpha_2} \rho_1^2 \sin \theta, \\ \frac{d\theta}{dz} &= \frac{\cos \theta}{\sin \theta} \frac{d \ln(\rho_1^2 \rho_2)}{dz}. \end{aligned} \quad (5.25)$$

Для частного случая  $b_1 = b_2 = b$  точное решение можно найти с помощью подстановок

$$\begin{aligned} y &= \frac{1}{b}(1 - e^{-bz}), \\ R_1 &= \rho_1 e^{bz}, \\ R_2 &= \rho_2 e^{bz}. \end{aligned} \quad (5.26)$$

Для  $\Delta k = 0$  получаем

$$\begin{aligned} \frac{dR_1}{dy} &= -\frac{2\omega^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} R_1 R_2 \sin \theta, \\ \frac{dR_2}{dy} &= \frac{4\omega^2 K}{k_2 \cos^2 \alpha_2} R_1^2 \sin \theta, \\ \frac{d\theta}{dy} &= \frac{\cos \theta}{\sin \theta} \frac{d \ln(R_1^2 R_2)}{dy}. \end{aligned} \quad (5.27)$$

Далее решение ищется, как и в случае среды, без потерь. Для того чтобы происходило заметное преобразование мощности, необходимо выполнение условия  $b \ll l^{-1}$ .

## § 6. Три связанные волны. Точное решение

Общие амплитудные уравнения (4.9) можно записать в виде уравнений для их действительных и мнимых частей, подобно тому, как это было сделано с уравнениями

(5.1) для второй гармоники

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_1}{dz} &= -\frac{\omega_1^2 K}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \rho_2 \rho_3 \sin \theta, \\ \frac{d\rho_2}{dz} &= -\frac{\omega_2^2 K}{k_2 \cos^2 \alpha_2} \rho_3 \rho_1 \sin \theta, \\ \frac{d\rho_3}{dz} &= \frac{\omega_3^2 K}{k_3 \cos^2 \alpha_3} \rho_1 \rho_2 \sin \theta, \\ \frac{d\theta}{dz} &= \Delta k + K \left( \frac{\omega_3^2}{k_3 \cos^2 \alpha_3} \frac{\rho_1 \rho_2}{\rho_3} - \frac{\omega_2^2}{k_2 \cos^2 \alpha_2} \frac{\rho_3 \rho_1}{\rho_2} - \frac{\omega_1^2}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \frac{\rho_2 \rho_3}{\rho_1} \right) \cos \theta, \end{aligned} \quad (6.1)$$

где

$$\theta = \Delta k z + \varphi_3(z) - \varphi_2(z) - \varphi_1(z) \text{ и } \Delta k = k_3 - k_2 - k_1.$$

Поток мощности через единицу площади в направлении, параллельном направлению распространения, равен

$$W = \frac{c^2}{8\pi} \left[ \frac{k_1 \cos^2 \alpha_1}{\omega_1} \rho_1^2 + \frac{k_2 \cos^2 \alpha_2}{\omega_2} \rho_2^2 + \frac{k_3 \cos^2 \alpha_3}{\omega_3} \rho_3^2 \right]. \quad (6.2)$$

Сделаем следующие подстановки, которые значительно упрощают дальнейшие расчеты:

$$\begin{aligned} u_1 &= \left( \frac{c^2 k_1 \cos^2 \alpha_1}{8\pi \omega_1^2 W} \right)^{1/2} \rho_1, \\ u_2 &= \left( \frac{c^2 k_2 \cos^2 \alpha_2}{8\pi \omega_2^2 W} \right)^{1/2} \rho_2, \\ u_3 &= \left( \frac{c^2 k_3 \cos^2 \alpha_3}{8\pi \omega_3^2 W} \right)^{1/2} \rho_3, \end{aligned} \quad (6.3)$$

$$\zeta = K \left( \frac{8\pi W}{c^2} \right)^{1/2} \left[ \frac{\omega_1^2 \omega_2^2 \omega_3^2}{k_1 k_2 k_3 \cos^2 \alpha_1 \cos^2 \alpha_2 \cos^2 \alpha_3} \right]^{1/2} z.$$

Уравнения (6.1) принимают вид

$$\begin{aligned}\frac{du_1}{d\zeta} &= -u_2u_3 \sin \theta, \\ \frac{du_2}{d\zeta} &= -u_3u_1 \sin \theta, \\ \frac{du_3}{d\zeta} &= u_1u_2 \sin \theta, \\ \frac{d\theta}{d\zeta} &= \Delta S + K \operatorname{ctg} \frac{d \ln (u_1u_2u_3)}{d\zeta},\end{aligned}\quad (6.4)$$

где  $\Delta S = \Delta k z / \zeta$ .

Условие сохранения потока мощности (6.2) выражается соотношением

$$\omega_1 u_1^2 + \omega_2 u_2^2 + \omega_3 u_3^2 = 1. \quad (6.5)$$

Мы можем определить три другие константы  $m_1, m_2, m_3$ :

$$\begin{aligned}m_1 &= u_2^2 + u_3^2, \\ m_2 &= u_3^2 + u_1^2, \\ m_3 &= u_1^2 - u_2^2,\end{aligned}\quad (6.6)$$

которые представляют собой векторные соотношения Мэнли — Роу, взятые в направлении распространения.

Последнее из уравнений (6.4) можно сразу проинтегрировать; это дает

$$\cos \theta = \frac{\Gamma + \frac{1}{2} \Delta S u_3^2}{u_1 u_2 u_3}. \quad (6.7)$$

Используя выражение (6.7) для исключения  $\sin \theta$  из уравнений (6.4), получаем

$$\frac{du_3^2}{d\zeta} = \pm 2 \left[ (u_1 u_2 u_3)^2 - \left( \Gamma + \frac{1}{2} \Delta S u_3^2 \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (6.8)$$

Пользуясь соотношениями Мэнли — Роу (6.6), находим

$$\zeta = \pm \frac{1}{2} \int_{u_3^2(0)}^{u_3^2(\zeta)} \frac{d(u_3^2)}{\left[ u_3^2 (m_2 - u_3^2) (m_1 - u_3^2) - \left( \Gamma + \frac{1}{2} \Delta S u_3^2 \right)^2 \right]^{1/2}}. \quad (6.9)$$

Уравнение

$$u_3^2 (m_2 - u_3^2) (m_1 - u_3^2) - \left( \Gamma + \frac{1}{2} \Delta S u_3^2 \right)^2 = 0 \quad (6.10)$$

имеет три корня для  $u_3^2$ ; обозначим их  $u_{3c}^2 \geq u_{3b}^2 \geq u_{3a}^2 \geq 0$ . Вводя величину

$$y^2 = \frac{u_3^2 - u_{3a}^2}{u_{3b}^2 - u_{3a}^2}, \quad (6.11)$$

получаем эллиптический интеграл Якоби в стандартной форме; теперь выражение (6.9) можно записать в виде

$$\zeta = \frac{\pm 1}{(u_{3c}^2 - u_{3a}^2)^{1/2}} \int_{y(0)}^y \frac{dy}{[(1-y^2)(1-\gamma^2 y^2)]^{1/2}}, \quad (6.12)$$

где

$$\gamma^2 = \frac{u_{3b}^2 - u_{3a}^2}{u_{3c}^2 - u_{3a}^2}.$$

Общее решение для интенсивности трех волн имеет вид

$$\begin{aligned}u_3^2(\zeta) &= u_{3a}^2 + (u_{3b}^2 - u_{3a}^2) \operatorname{sn}^2 \left[ (u_{3c}^2 - u_{3a}^2)^{1/2} (\zeta + \zeta_0), \gamma \right], \\ u_2^2(\zeta) &= u_2^2(0) + u_3^2(0) - u_{3a}^2 - (u_{3b}^2 - u_{3a}^2) \operatorname{sn}^2 \left[ (u_{3c}^2 - u_{3a}^2)^{1/2} (\zeta + \zeta_0), \gamma \right], \\ u_1^2(\zeta) &= u_1^2(0) + u_3^2(0) - u_{3a}^2 - (u_{3b}^2 - u_{3a}^2) \operatorname{sn}^2 \left[ (u_{3c}^2 - u_{3a}^2)^{1/2} (\zeta + \zeta_0), \gamma \right].\end{aligned}\quad (6.13)$$

#### А. ТОЧНОЕ СОГЛАСОВАНИЕ, $\Delta k = 0$

Простейший представляющий физический интерес случай мы получаем, когда  $\rho_1(0) \gg \rho_2(0) > 0$  и  $\rho_3(0) = 0$ . Это соответствует очень сильной накачке на частоте  $\omega_1$ , преобразующей сигнал с частотой  $\omega_2$  в сигнал с частотой  $\omega_3$ . Если воспользоваться величинами, входя-

щами в (6.12) и (6.13), то для рассматриваемого случая получаем

$$u_{3c}^2 = m_1 \gg m_2 = u_{3b}^2, \quad u_{3a}^2 = 0, \quad \gamma^2 \ll 1.$$

Соотношение (6.12) можно проинтегрировать непосредственно; это дает

$$u_3(\zeta) = m_2^{1/2} \sin(m_1^{1/2} \zeta). \quad (6.14)$$

Если положить  $\cos^2 \alpha_1 = \cos^2 \alpha_2 = \cos^2 \alpha_3 = 1$ , то амплитуда электрического поля оказывается равной

$$\rho_3(z) = \left(\frac{\omega_3}{\omega_2}\right)^{1/2} \rho_2(0) \sin \frac{\pi z}{l}, \quad (6.15)$$

где длина взаимодействия  $l$  рассматриваемого процесса дается выражением

$$l^{-1} = \pi^{-1} K \omega_2 \omega_3 (k_2 k_3)^{-1/2} \rho_1(0). \quad (6.16)$$

Для периода изменения энергии имеем в этом случае

$$\Pi_z = l.$$

Типичное решение представлено на фиг. 6.

При  $\omega_3 \gg \omega_2$  имеется усиление по мощности при преобразовании фотонов низкой частоты в фотоны более высокой частоты. Расстояние, на котором достигается максимальное усиление, обратно пропорционально амплитуде накачки на частоте  $\omega_1$ . Этот случай обычно встречается в параметрических преобразователях.

Если при  $z = 0$  имеется одинаковое число фотонов с частотой  $\omega_1$  и  $\omega_2$  и отсутствуют фотоны с частотой  $\omega_3$ , то решение становится очень простым. Эти крайние условия эквивалентны следующим равенствам:  $m_1 = m_2$ ,  $m_3 = 0$ ,  $\Gamma = 0$ . Пространственный масштаб взаимодействия бесконечен. Числа фотонов с частотой  $\omega_1$  и  $\omega_2$  убывают с одинаковыми скоростями

$$u_1 = u_2 = u_1(0) \operatorname{sch} \frac{z}{l},$$

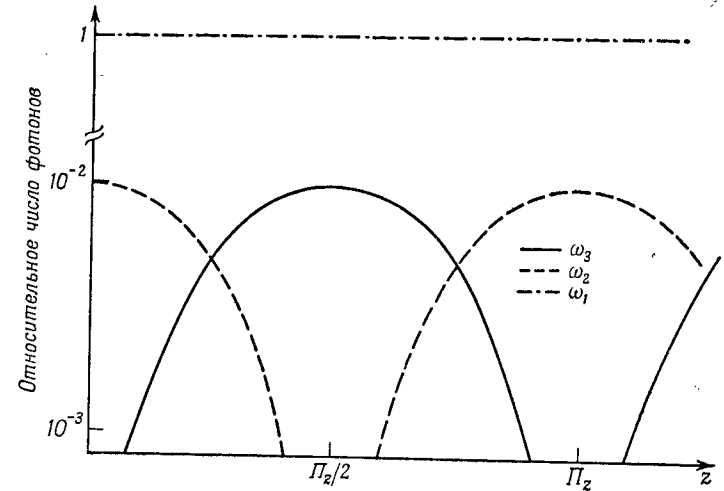
$$u_3 = u_1(0) \operatorname{th} \frac{z}{l}.$$

Таким образом, этот частный случай аналогичен генерации второй гармоники при точном согласовании.

Если  $m_1 \neq m_2$ , то передача энергии между волнами происходит с периодом по  $\zeta$ , равным [ср. соотношения (5.11) и (6.9)]

$$\Pi_\zeta = 2 \int_0^{(m_1)^{1/2}} \frac{du_3}{[(m_2 - u_3^2)(m_1 - u_3^2)]^{1/2}}.$$

Когда в одной из волн фотоны исчерпываются, направление передачи энергии меняется на обратное.



Фиг. 6. Зависимость относительного числа фотонов в трех бегущих волнах от  $z$  при точном согласовании фазовых скоростей ( $\omega_2 = \omega_3 + \omega_1$ ,  $k_3 = k_2 + k_1$ ).

Волна с частотой  $\omega_1$  содержит очень большое число квантов и может рассматриваться как накачка в параметрическом преобразователе (преобразование осуществляется либо вверх от  $\omega_2$  к  $\omega_3$ , либо вниз от  $\omega_3$  к  $\omega_2$ ). При  $z = 0$  имеем  $n_3 = 0$ ,  $n_1 = 100 n_2$ .

Рассмотрим теперь другой случай, когда при  $z = 0$  в волне с самой высокой частотой  $\omega_3$  содержится очень большое число фотонов, много меньше фотонов имеется в волне с частотой  $\omega_1$ , а фотоны с частотой  $\omega_2$  отсутствуют, т. е.  $u_3(0) \gg u_1(0)$ ,  $u_2(0) = 0$ . Соотношения

Мэнли — Роу [см. (6.6)] принимают вид

$$\begin{aligned} m_1 &= u_3^2(0) + u_1^2(0), \\ m_2 &= u_3^2(0), \\ m_3 &= u_1^2(0). \end{aligned}$$

Таким образом,

$$u_{3c}^2 = u_3^2(0) + u_1^2(0), \quad u_{3b}^2 = u_3^2(0), \quad u_{3a}^2 = 0.$$

Усиленный сигнал с частотой  $\omega_1$  в соответствии с выражением (6.13) равен

$$u_1^2(\zeta) = u_1^2(0) + u_3^2(0) \left\{ 1 - \operatorname{sn}^2 \left[ u_3(0) (\zeta - \zeta_0), \left( \frac{u_3^2(0)}{u_3^2(0) + u_1^2(0)} \right)^{1/2} \right] \right\}. \quad (6.17)$$

Если мы определим длину  $l$  соотношением

$$l^{-1} = K \omega_1 \omega_2 (k_1 k_2)^{-1/2} \rho_3(0), \quad (6.18)$$

то выражение (6.17) можно переписать в виде

$$\begin{aligned} \rho_1^2(z) &= \rho_1^2(0) + \frac{\omega_1}{\omega_3} \rho_3^2(0) \left[ 1 - \operatorname{sn}^2 \left( \frac{z - z_0}{l}, \right. \right. \\ &\quad \left. \left. 1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_3}{\omega_1} \frac{\rho_1^2(0)}{\rho_3^2(0)} \right) \right], \end{aligned} \quad (6.19)$$

где использовано неравенство  $\rho_3(0) \gg \rho_1(0)$ . Этот случай иллюстрируется кривыми на фиг. 7.

Чтобы удовлетворить краевому условию  $\rho_2(0) = 0$ , следует положить  $z_0/l$  равным половине периода эллиптической функции Якоби  $\operatorname{sn}$ .

Для  $\rho_3(0) \gg \rho_1(0)$  полупериод можно аппроксимировать выражением [30]

$$\frac{z_0}{l} = \frac{1}{2} \ln \frac{16 \omega_1 \rho_3^2(0)}{\omega_3 \rho_1^2(0)}. \quad (6.20)$$

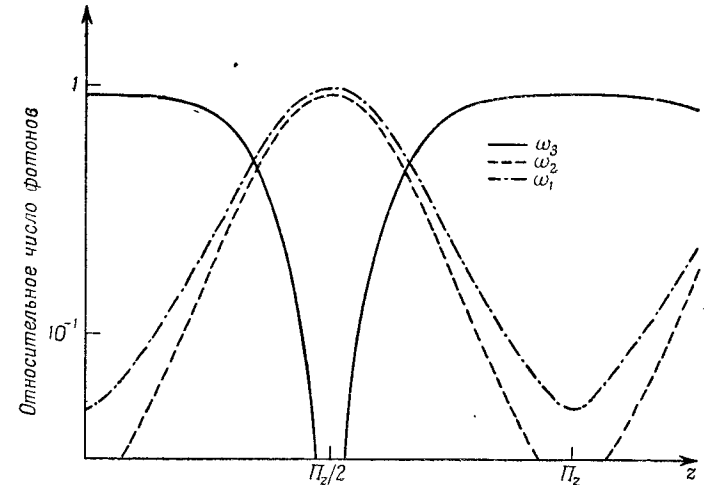
Таким образом, максимально возможное значение мощности, переданной сигналу с частотой  $\omega_1$ , достигается на длине  $z_0$ , определяемой выражением

$$z_0 = \frac{K}{2} \omega_1 \omega_2 (k_1 k_2)^{-1/2} \rho_3(0) \ln \frac{16 \omega_1 \rho_3^2(0)}{\omega_3 \rho_1^2(0)}, \quad (6.21)$$

а период изменения энергии равен

$$\Pi_z = 2z_0.$$

Интересно сравнить длину  $z_0$ , необходимую для осуществления заметной передачи мощности от волны с частотой  $\omega_3$  к волне с частотой  $\omega_1$ , с длиной, нужной для



Фиг. 7. Зависимость относительного числа фотонов в трех бегущих волнах от  $z$  при точном согласовании фазовых скоростей ( $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$ ,  $k_3 = k_2 + k_1$ ).

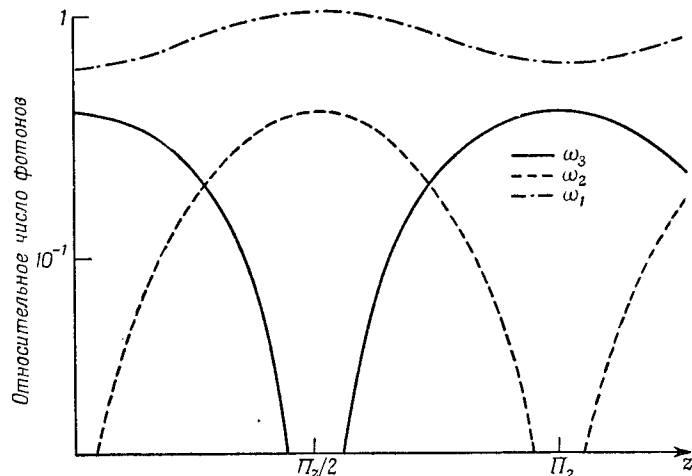
Волна с частотой  $\omega_3$  содержит большое число квантов при  $z = 0$  и может рассматриваться как накачка параметрического усилителя. При  $z = 0$  имеем  $n_2 = 0$ ,  $n_3 = 20 n_1$ .

получения значительной интенсивности второй гармоники на частоте  $2\omega_3$ . Последняя длина приблизительно равна величине, определяемой соотношением (6.18), в чем можно убедиться, сравнивая это соотношение с выражением (5.13). Таким образом, формула (6.20) непосредственно дает отношение указанных пространственных масштабов. Если  $16 \omega_1 \rho_3^2(0) / \omega_3 \rho_1^2(0) = 10^6$ , то  $z_0/l$  равно приблизительно 7,5. Эффективное преобразование частоты оказывается задачей, не намного более трудной, нежели эффективная генерация второй гармоники.

Соотношение (6.17) описывает также параметрическое усиление с учетом конечной мощности накачки. Это

решение можно, например, использовать для оценки степени нелинейности усиления.

Если при  $z = 0$  числа фотонов в волнах с частотами  $\omega_3$  и  $\omega_1$  являются величинами одного порядка, изменение энергии волн с расстоянием снова имеет колебательный



Фиг. 8. Зависимость относительного числа фотонов в трех бегущих волнах от  $z$  при точном согласовании фазовых скоростей.

Волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_3$  содержат одинаковые по порядку величины количества фотонов. При  $z = 0$  имеем  $n_2 = 0$ ,  $n_1 = 1,5 n_3$ .

характер. Когда число квантов в одной из волн значительно уменьшается, происходит изменение направления передачи энергии. На фиг. 8 дано решение для краевого условия  $u_1^2(0) = 1,5 u_3^2(0)$ ,  $u_2^2(0) = 0$ .

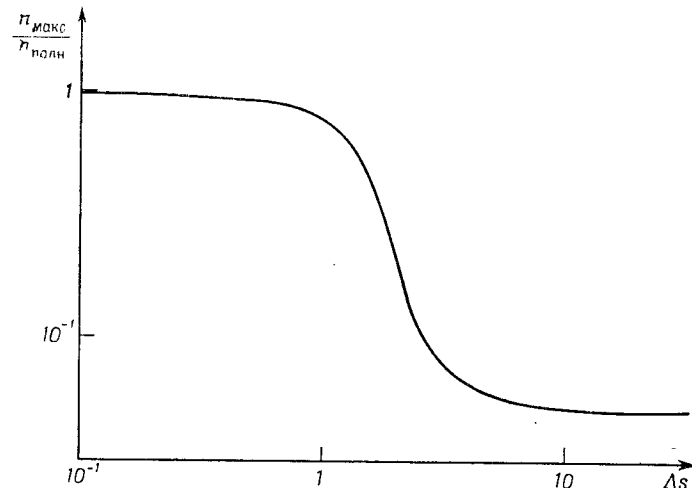
В этом случае период изменения энергии равен

$$\Pi_z = 2 \frac{z}{\xi} \int_0^{(m_2)^{1/2}} \frac{du_3}{(m_2 - u_3^2)^{1/2} (m_1 - u_3^2)^{1/2}},$$

где отношение  $z/\xi$  определяется выражением (6.3). Рассмотренные случаи иллюстрируют обобщение теории обычных параметрических усилителей.

## Б. НЕТОЧНОЕ СОГЛАСОВАНИЕ

Общее решение (6.13) описывает также важный для эксперимента случай, когда  $\Delta k \neq 0$ . При этом направление передачи энергии между волнами изменяется на обратное, когда сдвиг фаз между волнами становится



Фиг. 9. Зависимость отношения максимального числа фотонов с частотой  $\omega_1$ , равного  $n_{1 \text{ макс}}$ , к полному числу падающих фотонов  $n(0)$  от  $\Delta s$ .

При  $z = 0$  имеем  $n_3(0)/n_1(0) = 20$ ,  $n_2(0) = 0$ .

равным  $180^\circ$ . Соображения, высказанные при обсуждении генерации второй гармоники в случае рассогласования фазовых скоростей, можно полностью применить и к рассмотрению взаимодействия между тремя волнами. При сильном рассогласовании получается синусоидальное изменение амплитуд, аналогичное описываемому выражением (5.24) и хорошо известное в теории обычных параметрических преобразователей бегущей волны. Влияние рассогласования на процесс с краевым условием  $u_3(0) \gg u_1(0)$ ,  $u_2(0)$  показано на фиг. 9. Максимальное число фотонов, которое можно получить в волне с частотой  $\omega_1$ , ограничивается степенью рассогласования  $\Delta s$ .

### В. СРЕДА С ПОТЕРЯМИ

Влияние потерь можно учесть в уравнениях (6.1) так же, как они учитывались в § 5 при исследовании задачи о двух волнах. Результат заключается в том, что параметрические эффекты могут проявиться лишь в том случае, когда «длина затухания» мала по сравнению с характерной длиной взаимодействия волн с различными частотами.

### § 7. Четыре взаимодействующие волны. Генерация третьей гармоники

Уравнения (4.12), описывающие общий случай взаимодействия четырех волн, и уравнения (4.11), относящиеся только к генерации третьей гармоники, можно исследовать тем же методом, который использовался в последних двух параграфах для изучения взаимодействия трех волн и исследования генерации второй гармоники. Мы отметим только несколько важных особенностей, которые возникают при обобщении теории на случаи взаимодействия более высоких порядков.

Действительные и мнимые части уравнений (4.11), описывающих процесс генерации третьей гармоники, имеют вид

$$\frac{d\rho_1}{dz} = -\frac{3\omega^2 C \rho_1^2 \rho_3}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \sin \theta, \quad (7.1a)$$

$$\frac{d\rho_3}{dz} = \frac{9\omega^2 C \rho_1^3}{k_3 \cos^2 \alpha_3} \sin \theta, \quad (7.1b)$$

$$\frac{d\theta}{dz} = \Delta k + \frac{\cos \theta}{\sin \theta} \frac{d \ln(\rho_3 \rho_1^3)}{dz} + 9\omega^2 \left( \frac{3C''}{k_3 \cos^2 \alpha_3} - \frac{C'}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \right) \rho_1^2 + 9\omega^2 \left( \frac{C''}{k_3 \cos^2 \alpha_3} - \frac{C''}{k_1 \cos^2 \alpha_1} \right) \rho_3^2. \quad (7.1b)$$

Единственный эффект, обусловленный существованием в уравнениях (4.11) членов, в которые входят постоянные  $C'$ ,  $C''$  и  $C'''$ , заключается в изменении фазовых скоростей двух волн с частотами  $\omega$  и  $3\omega$  по сравнению с их значениями в случае малых сигналов. Это вызвано тем,

что средние по времени от  $E_1^2$  и  $E_3^2$  приводят к эффекту Керра, пропорциональному квадрату напряженности электрического поля. Указанное обстоятельство верно также и в том случае, когда имеется только одна волна, например с частотой  $\omega$ , распространяющаяся в нелинейной среде. При достаточно больших интенсивностях фазовая скорость зависит от амплитуды волны.

Пусть фазовые скорости рассогласованы настолько, что величина  $\Delta k$  больше любого из двух последних членов уравнения (7.1b). В этом случае можно принять, что изменение фазы дается выражением

$$\frac{d\theta}{dz} \approx \Delta k + \operatorname{ctg} \theta \frac{d \ln(\rho_3 \rho_1^3)}{dz}.$$

Действительно,  $C$  имеет тот же порядок величины, что и  $C'$ ,  $C''$  и  $C'''$ , а  $\rho_1$  никогда не отличается слишком сильно от своего краевого значения и может приближенно рассматриваться как интеграл движения.

Далее обсуждение будет идти точно так же, как оно производилось при рассмотрении генерации второй гармоники [описываемой соотношением (5.24)]. Если третья гармоника генерируется при  $z = 0$  вследствие нелинейного взаимодействия, то скорость распространения ее отличается от скорости обычной волны с частотой  $3\omega$ . Решения имеют вид

$$\theta \approx \frac{\Delta k z}{2} + \frac{\pi}{2}, \quad (7.2)$$

$$\rho_3(z) = \frac{9\omega^2 C \rho_1^3(0)}{k_3 \cos^2 \alpha_3} \frac{\sin(\Delta k z / 2)}{\Delta k / 2}. \quad (7.3)$$

Если значение  $\rho_3(0)$  достаточно велико, то  $\theta = \Delta k z + \pi/2 + \theta_0$  и  $\rho_3$  определяется интегрированием уравнения (7.1b). Сделаем следующие подстановки:

$$u = \left( \frac{c^2}{8\pi W} \frac{k_1}{\omega_1} \cos^2 \alpha_1 \right)^{1/2} \rho_1, \quad v = \left( \frac{c^2}{8\pi W} \frac{k_3}{3\omega_1} \cos^2 \alpha_3 \right)^{1/2} \rho_3, \quad (7.4)$$

$$\zeta = C \frac{8\pi W}{c^2} \frac{3\omega_1 (3\omega_1^4)^{1/2}}{(k_1^3 k_3 \cos^6 \alpha_1 \cos^2 \alpha_3)^{1/2}} z,$$

где  $W$  — полный поток мощности, аналогичный тому, который определяется соотношением (5.2). Тогда уравнения (7.1) сводятся к системе

$$\frac{du}{dz} = -u^2 v \sin \theta, \quad (7.5a)$$

$$\frac{dv}{dz} = u^3 \sin \theta, \quad (7.5б)$$

$$\frac{d\theta}{dz} = \Delta s + \operatorname{ctg} \theta \frac{d \ln (u v^3)}{dz} + a u^2 + b v^2, \quad (7.5в)$$

где  $a$ ,  $b$ ,  $\Delta s$  можно получить непосредственно, если сделать соответствующие подстановки. Уравнение (7.5в) можно проинтегрировать; при этом получим

$$u v^3 \cos \theta = \Gamma + \frac{(-a+b)u^4}{4} + \frac{\Delta s + b}{2} v^2. \quad (7.6)$$

Закон сохранения энергии имеет вид

$$u^2 + v^2 = 1. \quad (7.7)$$

Подставляя выражения (7.6) и (7.7) в уравнение (7.5б), получаем интегральное уравнение

$$\zeta = \pm \frac{1}{2} \times \times \int_{v^2(0)}^{v^2(\zeta)} \frac{dv^2}{[v^2(1-v^2)^3 - [\Gamma + 1/4(b-a)(1-v^2)^2 + 1/2(\Delta s + b)v^2]^2]^{1/2}}. \quad (7.8)$$

Если мощность третьей гармоники при  $z = 0$  равна нулю, то  $v(0) = 0$  и  $\Gamma = 1/4(a-b)$ . Решение для  $v^2$  будет осциллировать между двумя корнями уравнения

$$v^2 \left\{ (1-v^2)^3 - v^2 \left[ \frac{1}{2}(\Delta s + a) + \frac{1}{4}(b-a)v^2 \right]^2 \right\} = 0. \quad (7.9)$$

Один из корней уравнения (7.9)  $v^2 = 0$ , что является нижним пределом  $v^2$ . Следующий корень будет меньше единицы, если только не имеет места равенство  $a = b = \Delta s$ . Физически это означает, что нельзя согласовать фазовые скорости двух волн, если не выполняется указанное равенство. Так как  $\rho_1^2$  и  $\rho_3^2$  изменяются, то под влиянием квадратичного эффекта Керра меняются фазо-

вые скорости двух волн. Без точного согласования фазовых скоростей нельзя осуществить полную передачу мощности от волны с частотой  $\omega$  к волне с частотой  $3\omega$ . Однако эти соображения носят чисто академический характер, так как указанный процесс начинает играть существенную роль лишь после того, как возникнет достаточно интенсивная волна на частоте гармоник. Для любых взаимодействий, в которых участвует более трех волн, имеет место такой же эффект.

## § 8. Применения теории к анализу экспериментальных ситуаций

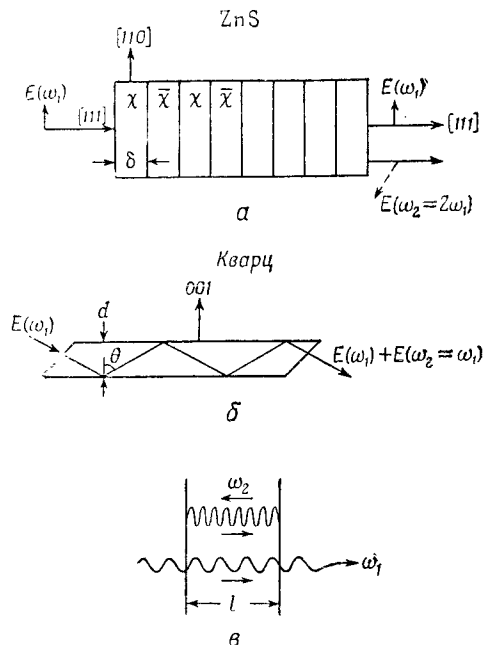
### А. ГЕНЕРАЦИЯ ГАРМОНИК И СУБГАРМОНИК

В настоящее время наиболее изученным нелинейным эффектом является генерация второй гармоники. Анализ, проведенный в § 5, показывает, что в принципе можно преобразовать всю падающую мощность во вторую гармонику. Так как для КДР величина  $\chi_{xyz}^{NL}$  составляет около  $10^{-11}$  ед. CGSE [14], то для амплитуды падающего излучения  $\rho_1(0) = 30$  кВ/см длина взаимодействия  $l$  [см. (5.13)] есть величина порядка  $10^3$  см. При согласованных фазовых скоростях на пути  $z = 1$  см преобразуется только около  $10^{-8}$  от мощности падающего излучения. Конечно, можно значительно увеличить мощность в импульсе и получить напряженности, достигающие  $10^6$  в/см. Но даже и в этом случае требуемое согласование фазовых скоростей на длине взаимодействия, конечно, не будет достигнуто для всех лучей, находящихся в пределах телесного угла, занятого пучком. Поэтому после того как волны прошли расстояние  $d = \pi(\Delta k)^{-1}$ , необходимо применять схемы фазовой коррекции.

Сдвиг фаз на  $180^\circ$  в  $\theta = \Delta k z + 2\varphi_1 - \varphi_2$  можно получить несколькими способами. Можно, например, пропустить волну сквозь фазовый корректор, изготовленный в виде пластины из диспергирующего линейного диэлектрика. С экспериментальной точки зрения более выгодно пропустить световые волны сквозь другой кристалл КДР, ориентация которого обратна ориентации первого кри-



сталла (фиг. 10). В «перевернутом» кристалле знак тензора восприимчивости третьего ранга и вследствие этого



Фиг. 10. Три варианта схем, предназначенных для осуществления фазовой коррекции в случае, когда фазовые скорости волны основной частоты и второй гармоники согласованы неточно.

*a* — свет проходит через стопу кристаллических пластинок, каждая из которых имеет толщину  $\delta = \pi(k_2 - 2k_1)^{-1}$  и повернута по отношению к предыдущей так, что является ее инвертированным отображением. Нелинейная восприимчивость  $\chi_{\chi\omega\omega}$  при переходе от одной пластинки к другой меняет знак. Линейные оптические свойства не изменяются. Эта схема может, конечно, быть применима также к пьезоэлектрическим кристаллам, симметрия которых отлична от кубической; *b* — волны основной частоты и второй гармоники испытывают многократные полные отражения в кристалле толщиной  $d = (k_2 - 2k_1)^{-1}(2\delta_1 - \delta_2)\cos\theta$ . При каждом отражении  $E_1$  и  $E_2$  испытывают скачок фазы на  $180^\circ$ , в результате чего произведение  $E_2 E_1^2$  меняет знак; *в* — бегущая

волна на частоте  $\omega_1$  возбуждает резонатор интерферометра, который содержит нелинейный диэлектрик. Резонатор настроен на частоту  $\omega_2$  и имеет длину  $l = \pi\lambda_2/2 < (k_2 - 2k_1)^{-1}l$ . Обратная волна гармоники не взаимодействует с волной накачки. Однако при каждом прямом прохождении она имеет фазу, при которой происходит усиление.

знак константы взаимодействия изменяется на обратный. Такую фазовую коррекцию можно повторять всякий раз после прохождения светом в кристалле пути длиной  $d$ .

Более простой способ получения того же результата заключается в использовании отражения обеих световых волн после прохождения ими расстояния  $d$ . Каждая из них испытывает при отражении скачок фазы на  $180^\circ$ , в результате чего  $\Delta\theta = 2\Delta\phi_1 - \Delta\phi_2$  изменяется на  $180^\circ$ . В этом случае меняется на обратное направление световых волн в пространстве, а не ориентация кристалла.

Другая схема фазовой коррекции заключается в использовании многократного отражения одного из лучей света в резонаторе с высокой добротностью  $Q$ . Пусть, например, вторая гармоника отражается, пройдя путь  $d = \pi(\Delta k)^{-1}$ , равный расстоянию между пластинами интерферометра Фабри—Перо. После того как вторая гармоника вернется назад к передней пластине и снова отразится от нее, она опять окажется в фазе сама с собой и с падающей бегущей волной основной частоты. Эффективная длина взаимодействия и к. п. д. преобразования возрастают в  $Q$  раз. Если резонатор одновременно настроен на основную частоту и частоту второй гармоники, то его максимальная длина равна  $d = \pi Q^{-1}(\Delta k)^{-1}$ . Когда многократное отражение испытывают обе волны, размер резонатора уменьшается, но выигрыша в максимально достижимой величине коэффициента преобразования не получается. Ясно, что очень сильное увеличение коэффициента преобразования могло бы привести к почти полному превращению излучения основной частоты во вторую гармонику. Однако максимально достигнутая до настоящего времени величина коэффициента преобразования, судя по опубликованным сообщениям, равна  $10^{-6}$ .

Кингстон [28] показал, каким образом лазерный пучок может возбуждать резонатор, настроенный на частоту субгармоники. В этом случае вторая гармоника отдает мощность волне основной частоты. В соответствии с классическими уравнениями (4.10) этот процесс не может начаться развиваться при  $A_1 = 0$ . Колебания с основной частотой или с частотой субгармоники возникают из нулевых колебаний или при спонтанном излучении двух квантов субгармоники, сопровождающем исчезновение одного кванта в лазерном пучке. Этот процесс установления колебаний аналогичен такому же процессу в генераторе с

самовозбуждением, который начинает работать с уровня шумов. Классические уравнения для комплексных амплитуд (4.9) — (4.12) имеют форму, которая позволяет легко проквантовать их. Важность нулевых колебаний и квантовых шумов обсуждается в очень интересной статье Люиселла, Ярива и Сигмена [31]. Их метод можно применить к нашим уравнениям.

## Б. ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ЧАСТОТЫ

Аналогичным образом можно рассмотреть фазовую коррекцию и эффективную длину взаимодействия между тремя волнами. Важным применением могла бы явиться генерация миллиметровых волн или далекого инфракрасного излучения при смешении колебаний двух лазеров, которое приводит к биениям. Такие биения можно получить, используя излучение двух рубиновых лазеров, имеющих разные температуры, или две зеемановские компоненты излучения одного лазера, находящегося в сильном магнитном поле. Соотношения Мэнли — Роу показывают, что при пиковой мощности в импульсе рубинового лазера, равной  $10 \text{ Мвт}$ , и длительности импульса  $10^{-8} \text{ сек}$  можно получить за время этого импульса мощность порядка  $10 \text{ кВт}$  на длине волны  $0,7 \text{ мм}$  при условии точного согласования фазовых скоростей. Коэффициент связи пропорционален  $\chi_{xyz}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2)$ . Эта величина может значительно отличаться от соответствующей величины для удвоения, потому что в том случае, когда одна из частот лежит ниже полосы инфракрасного поглощения, смещения ионов играют более заметную роль.

Интересная ситуация возникает в том случае, когда необходимо обнаружить слабый когерентный световой сигнал с частотой  $\omega_s$ . При этом можно воспользоваться преимуществами параметрического преобразования частоты вверх с помощью мощного лазерного пучка (накачки) с частотой  $\omega_p$ . Выходное излучение преобразователя имеет суммарную частоту  $\omega_1 = \omega_s + \omega_p$ . Если осуществлено точное согласование фазовых скоростей, то вся мощность сигнала преобразуется в мощность волны с частотой  $\omega_1$ . Если частота  $\omega_s$  находится в инфракрасной

области, а  $\omega_p$  — в красной, то  $\omega_1$  может соответствовать зеленой или даже голубой части, что позволяет с большой эффективностью регистрировать это излучение с помощью фотоумножителя. Указанное устройство не обладает шумами в том смысле, что в отсутствие сигнала не будет и выходного излучения с частотой  $\omega_1$ . Шум, обусловленный спонтанным излучением, отсутствует, так как кванты излучения накачки не могут самопроизвольно создать квант с частотой  $\omega_1$ , иначе будет нарушен закон сохранения энергии. В указанном смысле такое устройство лучше лазерного усилителя, у которого эффективная шумовая температура спонтанного излучения равна  $\hbar\omega/k$ , т. е. всегда отлична от нуля. Эффективная длина взаимодействия в данном случае определяется соотношением (6.16).

## В. ЛИНЕЙНЫЙ ЭЛЕКТРООПТИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ НА НУЛЕВОЙ ЧАСТОТЕ И НА СВЕРХВЫСОКИХ ЧАСТОТАХ

Теория электрооптического эффекта была создана уже в первые годы существования квантовой механики [32]. Она содержится в нашей теории как частный случай, когда одна из частот равна нулю:  $\omega_3 = \omega_2 = \omega$ ,  $\omega_1 = 0$ . Рассмотрим, например, геометрию, используемую в кристалле КДР. Постоянное электрическое поле  $E_{\text{пост}}$  прикладывается по направлению тетрагональной оси  $z$ . Световая волна, линейно поляризованная по оси  $x$ , распространяется в направлении  $z$ . Наличие нелинейного коэффициента связи  $\chi_{yxz}(\omega_3 = \omega_2 + 0)$  будет приводить к возбуждению волны той же частоты и с тем же волновым вектором, линейно поляризованной в направлении  $y$ . Систему амплитудных уравнений можно записать для этого случая в виде [ср. с уравнением (5.1)]

$$\frac{d\rho_x(\omega)}{dz} = K\rho_y(\omega)E_{\text{пост}}\sin(\varphi_x - \varphi_y),$$

$$\frac{d\rho_y(\omega)}{dz} = -K\rho_x(\omega)E_{\text{пост}}\sin(\varphi_x - \varphi_y).$$

Они описывают изменение поляризации волны за счет электрооптического эффекта, происходящее по мере того, как волна перемещается в направлении  $z$ . При обычном

описании этого эффекта говорят, что одноосный кристалл при наложении постоянного поля становится двуосным. Нормальные типы поляризации для волны, распространяющейся вдоль оси  $z$ , соответствуют линейным поляризациям вдоль новых осей  $x'$  и  $y'$ , образующих углы  $45^\circ$  с кристаллическими осями  $x$  и  $y$ . Постоянные распространения этих волн отличаются друг от друга на величину, пропорциональную  $E_{\text{пост}}$ .

Рассмотрение электрооптического эффекта представляет особый интерес в том случае, когда постоянное поле заменено сверхвысокочастотным. Недавно был предложен вариант СВЧ модулятора света бегущей волны [33]. Хотя излагаемая теория, строго говоря, в данном случае не вполне применима, тем не менее ею можно воспользоваться для приближенного рассмотрения. В волноводе может существовать продольная компонента поля СВЧ. Кроме того, размеры волновода нетрудно подобрать таким образом, чтобы фазовая скорость поля СВЧ  $E_{zm} \sim E_z \cos(\omega_m t - k_1 z)$ , распространяющегося в нем, была согласована с фазовой скоростью световой волны  $E_x \cos(\omega_2 t - k_2 z)$ . Эта волна все еще рассматривается, конечно, как волна в свободном пространстве.

Развитую теорию нелинейного взаимодействия свободных волн можно распространить на случай взаимодействия волн в волноводе. Поле СВЧ в модуляторе света можно с полным основанием рассматривать как заданное, так как поток квантов СВЧ намного превышает поток квантов света. Связь, обусловленная нелинейной восприимчивостью  $\chi_{yxx}(\omega_3 = \omega_m + \omega_2)$ , приводит к появлению излучения света с суммарной частотой, поляризованного в направлении  $y$  (боковая полоса). Конечно, существует также волна с разностной частотой  $\omega_4 = \omega_1 - \omega_2$ . Поле СВЧ может в свою очередь взаимодействовать с этими боковыми полосами и создавать дополнительные боковые полосы. Все эти световые волны приблизительно согласованы по фазовым скоростям, так как они очень мало отличаются друг от друга по частоте. В этом случае теория, развитая в настоящей работе, неприменима. Однако здесь можно использовать теорию Саймона [34], так как поле СВЧ можно рассматривать как фиксированный параметр.

Указанный случай иллюстрирует значение дисперсии нелинейной восприимчивости. В случае квадратичных нелинейностей эта величина определяется тремя частотами. Пространственно-частотные перестановочные соотношения показывают, что процессы СВЧ модуляции света и генерации СВЧ в результате биений между двумя световыми волнами описываются одной и той же постоянной

$$\chi_{zyx}(\omega_m = \omega_3 - \omega_2) = \chi_{yxz}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_m) \neq \chi_{zyx}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_m).$$

Необходимо, однако, чтобы направление поля СВЧ в том и другом случаях было одинаковым. Линейные и нелинейные движения ионов участвуют в обоих процессах в равной степени. Если все три частоты находятся в видимой области спектра, то величина  $\chi$  будет заметно отличаться от рассмотренной выше, потому что в этом случае движение ионов совсем не будет участвовать в процессе. Все это подробно описывается микроскопическими уравнениями, приведенными в § 2.

Сделаем несколько заключительных замечаний, резюмирующих изложенную в настоящей работе теорию. Нелинейные свойства, присущие электронам и ионам, находящимся в атомах, молекулах и конденсированных средах, можно связать с макроскопическими свойствами максвелловских полей в нелинейных диэлектриках. Это позволяет в свою очередь дать подробное описание процессов когерентного нелинейного рассеяния с помощью макроскопических нелинейных восприимчивостей. Рассмотрение взаимодействия между когерентными световыми волнами приводит к решению, которое указывает на возможность полного преобразования мощности одной частоты в другие в рассмотренных здесь идеализированных случаях. Это решение получено путем обобщения теории параметрического усиления. Оно может использоваться при анализе случая большой мощности сигнала и холостого излучения, либо большой мощности одного холостого излучения и учитывает уменьшение в обоих случаях мощности накачки. Весьма общим способом выведены соотношения Мэнли — Роу. В связи с тем, что нелинейные материальные соотношения

введены в уравнения Максвелла, теорию можно легко применить к большому числу различных экспериментальных ситуаций, в которых существенны нелинейности.

### § 9. Об учете действующего поля в анизотропной среде

Действующее поле на месте  $i$ -го атома в элементарной ячейке можно записать в виде

$$\mathbf{E}^{(i)l} = \mathbf{E} + \sum_j \mathbf{L}^{(ij)} \cdot (\mathbf{P}^{L(j)} + \mathbf{P}^{NL(j)}), \quad (9.1)$$

а поляризации  $i$ -го атома на частоте  $\omega_3$  связаны с действующими полями на частотах  $\omega_1$  и  $\omega_2$  ( $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ) соотношениями

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{L(i)}(\omega_3) &= \boldsymbol{\alpha}^{(i)}(\omega_3) \cdot \mathbf{E}^{(i)l}(\omega_3), \\ \mathbf{P}^{NL(i)}(\omega_3) &= \boldsymbol{\beta}^{(i)}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) \cdot \mathbf{E}^{(i)l}(\omega_2) \mathbf{E}^{(i)l}(\omega_1). \end{aligned} \quad (9.2)$$

Здесь  $\mathbf{L}^{(ij)}$  и  $\boldsymbol{\alpha}^{(i)}$  представляют собой матрицы  $3 \times 3$ . Из выражений (9.1) и (9.2) можно получить

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_i^{L(i)} &= \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \cdot \mathbf{E}^{(i)l} = \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \cdot \mathbf{E} + \sum_j \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \cdot \mathbf{L}^{(ij)} \cdot \\ &\cdot (\mathbf{P}^{L(j)} + \mathbf{P}^{NL(j)}). \end{aligned} \quad (9.2')$$

Когда соотношение записывается для одной частоты, то мы будем опускать обозначение  $\omega$ . Определим теперь тензор второго ранга

$$\mathbf{M}^{(ij)} = \delta_{ij} - \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \cdot \mathbf{L}^{(ij)}. \quad (9.3)$$

В результате выражение (9.2') примет вид

$$\sum_j \mathbf{M}^{(ij)} \cdot \mathbf{P}^{L(j)} = \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \cdot \mathbf{E} + \mathbf{P}^{NL(i)} - \sum_j \mathbf{M}^{(ij)} \cdot \mathbf{P}^{NL(j)}. \quad (9.2'')$$

Если бы мы записали  $\mathbf{M}^{(ij)}$  по компонентам, то можно было бы видеть, что это матрица  $3N \times 3N$ , где  $N$  есть число атомов в элементарной ячейке. Ясно, что эта «сверхматрица» имеет обратную матрицу. Это позволяет определить новый ряд матриц  $3 \times 3$   $\mathbf{R}^{(ij)}$ , таких, что

$$\sum_j \mathbf{M}^{(ij)} \cdot \mathbf{R}^{(jk)} = \sum_j \mathbf{R}^{(ij)} \cdot \mathbf{M}^{(jk)} = \delta_{ik}. \quad (9.4)$$

Теперь можно преобразовать выражение (9.2'') и получить

$$\mathbf{P}^{L(k)} + \mathbf{P}^{NL(k)} = \sum_i \mathbf{R}^{(ki)} \cdot \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \cdot \mathbf{E} + \sum_i \mathbf{R}^{(ki)} \cdot \mathbf{P}^{NL(i)}.$$

Суммируя по всем атомам в элементарной ячейке, получаем

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL} = \sum_{ik} \mathbf{R}^{(ki)} \cdot \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \cdot \mathbf{E} + \sum_{ik} \mathbf{R}^{(ki)} \cdot \mathbf{P}^{NL(i)}. \quad (9.5)$$

Исследование показывает, что

$$\frac{\varepsilon - 1}{4\pi} = \sum_{ik} \mathbf{R}^{(ki)} \cdot \boldsymbol{\alpha}^{(i)} \quad (9.6)$$

и

$$\mathbf{D}(\omega_3) = \varepsilon(\omega_3) \mathbf{E}(\omega_3) + 4\pi \mathbf{P}^{NLS}(\omega_3),$$

где

$$\mathbf{P}^{NLS}(\omega_3) = \sum_{ik} \mathbf{R}^{(ki)}(\omega_3) \cdot \mathbf{P}^{NL(i)}(\omega_3). \quad (9.7)$$

Запишем  $\mathbf{P}^{NL(i)}(\omega_3)$  в виде функции тензоров микроскопической нелинейной поляризуемости и макроскопических полей Максвелла с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Если  $\mathbf{P}^{NL} \ll \mathbf{P}^L$ , то выражения (9.1) и (9.2) можно объединить в виде соотношения

$$\sum_i (\delta_{ij} - \mathbf{L}^{(ij)} \cdot \boldsymbol{\alpha}^{(i)}) \cdot \mathbf{E}^{(j)l} = \mathbf{E}. \quad (9.8)$$

Энергетические соображения требуют симметрии тензора поляризуемости и тензора Лоренца. При условии

$$\boldsymbol{\alpha}^{(i)} = (\boldsymbol{\alpha}^{(i)})^T$$

и

$$\mathbf{L}^{(ij)} = \mathbf{L}^{(ji)} = (\mathbf{L}^{(ji)})^T,$$

где  $\mathbf{A}^T$  означает тензор, транспонированный по отношению к  $\mathbf{A}$ , соотношение (9.8) можно переписать в виде

$$\sum_j (\mathbf{M}^{(ji)})^T \cdot \mathbf{E}^{(j)l} = \mathbf{E}. \quad (9.8')$$

Транспонируя выражение (9.4), можно преобразовать соотношение (9.8') к выражению следующего вида:

$$\mathbf{E}^{(k)l} = \sum_i (\mathbf{R}^{(ik)})^T \cdot \mathbf{E}. \quad (9.9)$$

Комбинируя соотношение (9.9) с (9.7) и (9.2), получаем

$$\mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_3) = \sum_{i,k} \mathbf{R}(\omega_3)^{(ki)} \cdot \beta^{(i)}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) : \sum_j [(\mathbf{R}^{(ij)}(\omega_2))^T \times \\ \times \mathbf{E}(\omega_2)] \cdot \sum_l [(\mathbf{R}^{(li)}(\omega_1))^T \cdot \mathbf{E}(\omega_1)].$$

Определим

$$\mathbf{N}^{(i)}(\omega) = \sum_l (\mathbf{R}^{(li)}(\omega))^T. \quad (9.10)$$

Тогда  $\mathbf{P}^{\text{NLS}}$  можно записать как

$$\mathbf{P}^{\text{NLS}}(\omega_3) = \chi(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) : \mathbf{E}(\omega_2) \mathbf{E}(\omega_1), \quad (9.11)$$

где  $(a, b, c)$ -компонента  $\chi$  равна

$$\chi_{a,b,c}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) = \\ = \sum_l \sum_{d,e,f} \beta_{d,e,f}^{(i)}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) N_{d,a}^{(i)}(\omega_3) N_{e,b}^{(i)}(\omega_2) N_{f,c}^{(i)}(\omega_1). \quad (9.12)$$

Пространственно-частотные перестановочные соотношения очевидны. Соотношение (9.12) можно записать в тензорных обозначениях в следующем виде:

$$\chi(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) = \sum_i \beta^{(i)}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) : \mathbf{N}^{(i)}(\omega_3) \mathbf{N}^{(i)}(\omega_2) \mathbf{N}^{(i)}(\omega_1). \quad (9.13)$$

## § 10. Заключение

Необходимо подчеркнуть три предположения, которые были сделаны в изложенной теории:

1. Рассматривались только строго монохроматические волны, т. е. не принимались во внимание эффекты, обусловленные конечной шириной спектральных линий взаимодействующих волн.

2. Рассматривались волны только с точно определенными волновыми векторами, т. е. не учитывалось влияние конечной угловой расходимости реальных пучков света.

3. Принималось, что дисперсия среды позволяет полностью пренебречь всеми волнами, за исключением небольшого числа волн с хорошо согласованными фазовыми скоростями. Иными словами, влияние волн с недостаточно хорошо согласованными фазовыми скоростями не исследовалось. Эти волны будут слабо взаимодействовать с волнами, рассматривавшимися в теории.

Интересно заметить, что нелинейность в принципе позволяет осуществить тепловой контакт между различными электромагнитными типами колебаний. Нелинейный диэлектрик без потерь может занять место угольной частицы, введенной Больцманом для обеспечения теплового равновесия электромагнитного поля, заключенного в полость.

Наконец, следует подчеркнуть, что проведенное в настоящей работе рассмотрение ограничено случаем бесконечной однородной нелинейной среды. Интересные эффекты, возникающие на границе нелинейного диэлектрика, будут рассмотрены в другой статье<sup>1)</sup>.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Dirac P. A. M., Proc. Roy. Soc., **A114**, 143, 710 (1927).
2. Goepfert-Mayer M., Ann. Phys., **9**, 273 (1931).
3. Frenkel J., Wave Mechanics, Advanced General Theory, New York, 1934, p. 226.
4. Neugebauer Th., Acta Phys. Acad. Sci. Hung., **10**, 221 (1959).
5. Kleinman D. A., Phys. Rev., **125**, 87 (1962). (Имеется перевод в сб. «Лазеры», ИЛ, 1963.)
6. Braunstein R., Phys. Rev., **125**, 475 (1962). (Имеется перевод в сб. «Лазеры», ИЛ, 1963.)
7. Hennenberger W. C., Bull. Am. Phys. Soc., **7**, 14 (1962).
8. Franken P., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., Phys. Rev., Lett., **7**, 118 (1961).
9. Kaiser W., Garrett C. G. B., Phys. Rev. Lett., **7**, 229 (1961).
10. Hellwarth R. W., в книге Advances in Quantum Electronics, ed. J. R. Singer, New York, 1961, p. 335.
11. McClung F. J., Journ. Appl. Phys., **33**, 828 (1962).
12. Bass M., Franken P. A., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., **8**, 18 (1962).

<sup>1)</sup> См. приложение II.—Прим. ред.

приходим к обобщению давно известных законов отражения и преломления света. Закон зеркального отражения света (равенство углов падения и отражения) был известен еще в античной Греции и точно сформулирован Героном Александрийским [7]<sup>1)</sup>. Законы преломления Снеллиуса относят к 1621 г.<sup>2)</sup>

В § 3 настоящей статьи дается обобщение этих законов для волн оптических гармоник и волн с суммарной и разностной частотами (для случая, когда на границу нелинейной среды падают два световых луча). Решение уравнений Максвелла с надлежащими граничными условиями приводит к появлению гармоник как в отраженном, так и в преломленном свете.

В § 4 определены интенсивность и поляризация возникающих на границе гармоник. Полученные результаты можно считать обобщением законов Френеля [9], установленных в 1823 г. для линейного случая на основе упругой теории света. В нелинейной теории существует аналог угла Брюстера для волны гармоники: для этого угла интенсивность отраженной волны гармоники равна нулю, если ее электрический вектор  $E$  лежит в плоскости, определяемой нормалью к границе и волновым вектором отраженной волны.

В § 5 обсуждается нелинейный аналог явления полного отражения, имеющего место в линейном диэлектрике. Круг нелинейных явлений, в том числе появление экспоненциально затухающих волн, оказывается здесь весьма широким. Ниже будет показано, что полностью отраженная волна основной частоты может создавать как отраженную, так и прошедшую волны гармоники, в то время как две обычные преломленные волны могут привести к появлению затухающей волны на разностной частоте.

В § 6 рассматривается плоскопараллельная нелинейная диэлектрическая пластина. Получены выражения для волн гармоник, возникающих на обеих сторонах пластины. Существует фундаментальное различие между

<sup>1)</sup> Обширный исторический материал содержится, например, в книге [8].

<sup>2)</sup> Теория отражения и преломления света излагается во многих учебниках по оптике; см., например, [9].

случаями падения световых волн на границу со стороны вакуума или нелинейной среды; напомним, что такого различия для линейной среды нет.

В § 7 с помощью интегральных уравнений кратко рассматривается формулировка задачи о распространении света в нелинейной среде.

Результаты работы обсуждаются в заключении (§ 8). Теоретические результаты имеют непосредственное отношение к экспериментальным данным. В частности, решения, полученные в настоящей работе, характеризуют процесс нарастания амплитуд гармоник, когда основная волна попадает в нелинейный кристалл.

Прежде чем перейти к обсуждению общих решений, в § 2 мы рассмотрим простой пример для иллюстрации основных физических явлений, возникающих на границе между линейной и нелинейной средами.

## § 2. Гармоники, возникающие на границе (частный случай)

В качестве примера, позволяющего выявить все существенные физические черты интересующего нас явления, рассмотрим случай генерации второй гармоники при падении плоской монохроматической волны с частотой  $\omega_1$  на грань кристалла, не обладающего центром инверсии. Световая волна будет испытывать в кристалле обычное преломление. В общем случае двупреломляющих кристаллов возникает два преломленных луча. Во избежание ненужных усложнений рассмотрим только один преломленный луч. Такое рассмотрение справедливо в случае кубических кристаллов (например,  $ZnS$ ) или одноосных кристаллов, например дигидрофосфата калия (KDP), если плоскость падения содержит оптическую ось и падающий луч поляризован в этой плоскости. Систему координат выберем таким образом, чтобы граница совпадала с плоскостью  $z = 0$ , а плоскость падения — с плоскостью  $y = 0$ . Волновые векторы падающей и преломленной волн обозначим соответственно через  $k_1^i$  и  $k_1^r$ . Последний определяется законом Снеллиуса, а амплитуда преломленной волны  $E_1^r$  — законами Френеля для линейной среды.

Нелинейная восприимчивость среды обуславливает поляризацию на частотах гармоник, что в свою очередь приводит к возникновению излучения на этих частотах. Эффективный нелинейный источник на частоте второй гармоники  $\omega_2 = 2\omega_1$  характеризуется величиной

$$\hat{\mathbf{p}}P^{\text{NLS}} = \mathbf{P}^{\text{NLS}}(2\omega_1) = \chi(\omega_2 = 2\omega_1) : \mathbf{E}_1^T \mathbf{E}_1^T e^{i(\mathbf{k}^S \cdot \mathbf{r} - 2\omega_1 t)}. \quad (2.1)$$

Волновой вектор в выражении (2.1) равен удвоенному волновому вектору основной преломленной волны,

$$\mathbf{k}^S = 2\mathbf{k}_1^T.$$

Нелинейный источник был введен в работе [6], где показано, как тензор восприимчивости может быть связан с нелинейными атомными свойствами среды. Там показано также, что эффективный нелинейный источник легко может быть включен в уравнения Максвелла для нелинейной среды:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mu \mathbf{H}}{\partial t}, \quad (2.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial (\epsilon \mathbf{E})}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{P}^{\text{NLS}}}{\partial t}. \quad (2.3)$$

В рассматриваемом случае кубического кристалла или при специально выбранной пространственной геометрии величину  $\epsilon$  можно считать скаляром; кроме того, будем считать  $\mu = 1$ . Волны на частоте второй гармоники удовлетворяют волновому уравнению

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_2 + \frac{\epsilon(2\omega_1)}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_2}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{\text{NLS}}(2\omega_1)}{\partial t^2}. \quad (2.4)$$

Подчеркнем, что (2.4) представляет собой обычное линейное волновое уравнение, дополненное в правой части нелинейным источником. Общее решение такого уравнения содержит, как известно, решение однородного уравнения и частное решение неоднородного уравнения<sup>1)</sup>.

<sup>1)</sup> Для краткости соответствующие волны называются далее однородными и неоднородными волнами.— *Прим. ред.*

$$\mathbf{E}_2^T = \hat{\mathbf{e}}_T \mathcal{E}_2^T e^{i(\mathbf{k}_2^T \cdot \mathbf{r} - 2\omega_1 t)} - \frac{4\pi P_2^{\text{NLS}}(4\omega_1^2/c^2)}{(k_2^T)^2 - (k^S)^2} \times \\ \times \left[ \hat{\mathbf{p}} - \frac{\mathbf{k}^S (\mathbf{k}^S \cdot \hat{\mathbf{p}})}{(k^T)^2} \right] e^{i(\mathbf{k}^S \cdot \mathbf{r} - 2\omega_1 t)}, \quad (2.5)$$

$$\mathbf{H}_2^T = \frac{c}{2\omega_1} (\mathbf{k}_2^T \times \hat{\mathbf{e}}_T) \mathcal{E}_2^T e^{i(\mathbf{k}_2^T \cdot \mathbf{r} - 2\omega_1 t)} - \\ - \frac{4\pi P_2^{\text{NLS}}(4\omega_1^2/c^2)}{(k_2^T)^2 - (k^S)^2} \frac{c}{2\omega_1} (\mathbf{k}^S \times \hat{\mathbf{p}}) e^{i(\mathbf{k}^S \cdot \mathbf{r} - 2\omega_1 t)}.$$

В вакууме решения однородного волнового уравнения в форме обычных плоских волн имеют вид

$$\mathbf{E}_2^R = \hat{\mathbf{e}}_R \mathcal{E}_2^R e^{i(\mathbf{k}_2^R \cdot \mathbf{r} - 2\omega_1 t)}, \quad (2.6)$$

$$\mathbf{H}_2^R = \frac{c}{2\omega_1} (\mathbf{k}_2^R \times \hat{\mathbf{e}}_R) \mathcal{E}_2^R e^{i(\mathbf{k}_2^R \cdot \mathbf{r} - 2\omega_1 t)}.$$

Направления волновых векторов отраженной волны  $\mathbf{k}_2^R$  и однородной прошедшей волны  $\mathbf{k}_2^T$ , векторов поляризации  $\hat{\mathbf{e}}_T$  и  $\hat{\mathbf{e}}_R$  и амплитуды отраженной и прошедшей волн  $\mathcal{E}_2^R$  и  $\mathcal{E}_2^T$  определяются из граничных условий. Оказывается, что нелинейный источник излучает в некотором направлении обратно в вакуум и в некотором направлении в среду (в более общем случае анизотропной среды — в двух направлениях). Рассматриваемая задача очень похожа на задачу об отражении и преломлении на границе линейной среды, за исключением того обстоятельства, что здесь роль падающей волны играет «неоднородная волна» с амплитудой, пропорциональной  $P^{\text{NLS}}$ .

Тангенциальные компоненты векторов  $\mathbf{E}$  и  $\mathbf{H}$  должны быть непрерывны на всей границе в любой момент времени. Это требует непрерывности на границе компонент с частотами  $\omega_1$  и  $2\omega_1$ . Чтобы эти требования одновременно выполнялись во всех точках границы, следует положить, что для основной частоты

$$k_{1x}^i = k_{1x}^R = k_{1x}^T.$$

Из непрерывности тангенциальных компонент полей волны с частотой  $2\omega_1$  имеем

$$2k_{1x}^T = k_{2x}^S = k_{2x}^R = k_{2x}^T.$$

Эти соотношения эквивалентны требованию сохранения тангенциальных компонент импульсов. При нашем выборе системы координат все  $y$ -компоненты волновых векторов равны нулю. Так как абсолютные значения волновых векторов определяются диэлектрической проницаемостью

$$|k_2^T| = \frac{2\omega}{c} [\epsilon(2\omega)]^{1/2} \text{ и т. д.,}$$

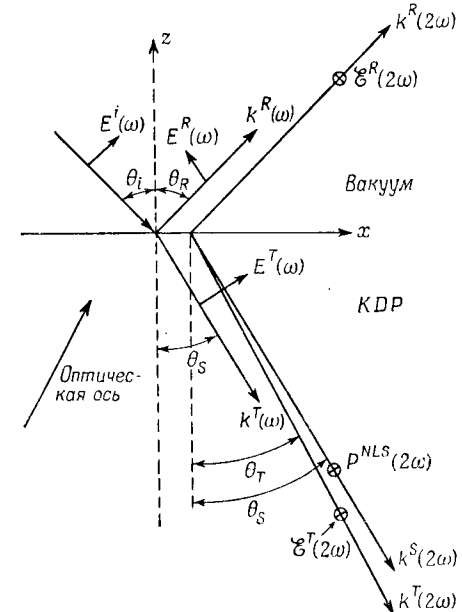
то из условия сохранения тангенциальных компонент непосредственно получаем углы отражения и преломления волны второй гармоники

$$\begin{aligned} \sin \theta_2^R &= \frac{k_{2x}^R}{|k_2^R|} = \frac{k_{1x}^i}{|k_1^i|} = \sin \theta^i, \\ \sin \theta_2^T &= \frac{k_{2x}^T}{|k_2^T|} = \epsilon^{-1/2}(2\omega) \sin \theta^i, \\ \sin \theta^S &= \epsilon^{-1/2}(\omega) \sin \theta^i. \end{aligned} \quad (2.7)$$

Поскольку вакуум не обладает дисперсией, отраженная волна второй гармоники распространяется в том же направлении, что и отраженная волна основной частоты. В то время как волна нелинейной поляризации распространяется в том же направлении, что и основная проходящая волна, однородная волна с частотой гармоники будет распространяться, вообще говоря, в ином направлении. Волновые векторы обеих волн параллельны либо в предельном случае точного фазового согласования  $\epsilon(\omega) = \epsilon(2\omega)$ , либо в случае нормального падения. Решение волнового уравнения (2.4) требует дальнейшего рассмотрения этих предельных случаев, что и будет выполнено в § 4. Важный вопрос о рассогласовании фазовых скоростей в направлении, нормальном к направлению распространения, в работе [6] остался невыясненным. Этот вопрос будет здесь рассмотрен; рассогласо-

вание определяется как ориентацией границы относительно осей кристалла, так и дисперсией среды. Геометрические соотношения иллюстрируются на фиг. 1.

Вопрос об интенсивности и поляризации волн гармоник в этом параграфе будет обсуждаться только для



Фиг. 1. Падающая, отраженная и преломленная волны с основной частотой и с частотой второй гармоники вблизи границы между кристаллом KDP и вакуумом.

Фазовые скорости обыкновенного луча основной частоты и необыкновенного луча второй гармоники не согласованы.

случая, когда нелинейная поляризация нормальна к плоскости падения, т. е.  $\hat{p} = \hat{y}$ . Более общее обсуждение отложим до § 4. Рассматриваемый здесь случай реализуется в кристалле KDP, когда вектор  $\hat{E}$  падающей волны с основной частотой лежит в плоскости падения, содержащей оптическую ось кристалла. Это следует из рассмотрения симметрии тензора  $\chi$ . Если прошедшая волна с основной частотой является необыкновенным



лучом, поле  $\mathbf{E}_1^T$  будет иметь в общем случае  $x'$ - и  $z'$ -компоненты. Система координат  $(x', y', z')$  фиксирована по отношению к кристаллу. Направление оси  $z'$  совпадает с оптической осью, а ось  $y'$  совпадает с осью  $y$ . Так как единственной отличной от нуля компонентой тензора восприимчивости является  $\chi_{x'y'z'}$ , нелинейный источник поляризован в направлении  $y' = y$  в соответствии с соотношением (2.1).

Граничные условия, которые согласуют решения (2.5) и (2.6), могут теперь быть удовлетворены выбором волн гармоник с электрическим вектором, нормальным к плоскости падения,  $\hat{\mathbf{e}}_T = \hat{\mathbf{e}}_R = \hat{\mathbf{y}}$ . Для случая, которому соответствует фиг. 1, эти волны представляют собой обыкновенные лучи. Требование непрерывности тангенциальных компонент  $E_y$  на границе  $z = 0$  приводит к условию

$$\mathcal{E}_2^R = \mathcal{E}_2^T - \frac{4\pi P^{\text{NLS}}}{\varepsilon(2\omega) - \varepsilon(\omega)}, \quad (2.8)$$

а непрерывность  $x$ -компонент магнитного поля обеспечивается при выполнении условия

$$-\mathcal{E}_2^R \cos \theta^R = \varepsilon^{1/2}(2\omega) \mathcal{E}_2^T \cos \theta^T - \varepsilon^{1/2}(\omega) \cos \theta^S \times \\ \times \frac{4\pi P^{\text{NLS}}}{\varepsilon(2\omega) - \varepsilon(\omega)}. \quad (2.9)$$

Амплитуды электрических полей отраженной и прошедшей волн гармоник можно вычислить, решая уравнения (2.8) и (2.9):

$$\mathcal{E}_2^R = \frac{-4\pi P^{\text{NLS}}}{\varepsilon(2\omega) - \varepsilon(\omega)} \frac{\varepsilon^{1/2}(2\omega) \cos \theta^T - \varepsilon^{1/2}(\omega) \cos \theta^S}{\varepsilon^{1/2}(2\omega) \cos \theta^T + \varepsilon^{1/2}(\omega) \cos \theta^S}. \quad (2.10)$$

Величина  $\mathcal{E}_2^T$  определяется непосредственно из (2.8). Следует помнить, что полное поле в диэлектрической среде определяется, конечно, интерференцией между однородной и неоднородной волнами в соответствии с соотношениями (2.5); полное поле на границе равно  $\mathcal{E}^R$ . Умножая числитель и знаменатель выражения (2.10) на

$\varepsilon^{1/2}(2\omega) \cos \theta^T + \varepsilon^{1/2}(\omega) \cos \theta^S$  и используя законы преломления (2.7), приходим к выражению

$$\mathcal{E}_2^R = \frac{-4\pi P^{\text{NLS}}}{[\varepsilon^{1/2}(2\omega) \cos \theta^T + \varepsilon^{1/2}(\omega) \cos \theta^S] [\varepsilon^{1/2}(2\omega) \cos \theta^T - \varepsilon^{1/2}(\omega) \cos \theta^S]}, \quad (2.11a)$$

или

$$\mathcal{E}_2^R = \frac{-4\pi P^{\text{NLS}} \sin^2 \theta^T \sin \theta^S}{\sin(\theta^T + \theta^S) \sin(\theta^T - \theta^S) \sin \theta^S}. \quad (2.11b)$$

Амплитуда отраженной волны оказывается, таким образом, нечувствительной к рассогласованию фазовых скоростей в среде; напомним в связи с этим, что в кристалле KDP обыкновенная волна гармоник и необыкновенная волна основной частоты не могут быть согласованы. Можно утверждать, что отраженный луч излучается слоем толщиной порядка длины волны. Более глубокие слои полубесконечной среды не дают вклада в отраженный луч. Это утверждение уточняется в § 6, где строго рассмотрена диэлектрическая пластина конечной толщины. Если величина  $E_{\text{ат}} \approx 3 \cdot 10^8$  в/см соответствует типичным межатомным полям, коэффициент преобразования (по мощности) в отраженную волну гармоник приближенно характеризуется величиной  $(E_1^T / E_{\text{ат}})^2$ . Для относительно небольшой плотности мощности основного излучения, равной  $10^5$  вт/см<sup>2</sup>, эта величина составляет около  $4 \cdot 10^{-10}$ . Поскольку экспериментально удавалось зарегистрировать вторую гармонику при коэффициенте преобразования, меньшем  $10^{-12}$ , отраженная гармоника в этом случае будет легко наблюдаться. Отметим также, что сейчас достижимы плотности мощности  $10^7$  вт/см<sup>2</sup> в импульсе (для несфокусированного пучка лазера).

Чтобы вычислить угловое распределение отраженной волны гармоник из соотношений (2.11a) и (2.11b), необходимо рассчитать угловую зависимость самой величины  $P^{\text{NLS}}$ . Последнее можно сделать, пользуясь формулами Френеля для линейной среды; они дают определенную угловую зависимость для амплитуды волны основной частоты и тем самым для  $P^{\text{NLS}}$ .

Начальная амплитуда прошедшей волны гармоники имеет почти ту же величину, что и для отраженной волны. Однако затем прошедшая волна будет нарастать. Детальный анализ прошедшей волны мы отложим до § 4, где будет установлена ее связь с решениями, полученными ранее для бесконечной среды.

Полный поток мощности на границе недиссипативной нелинейной среды, конечно, сохраняется, так как интенсивности отраженной и прошедшей волн на основной частоте будут несколько меньше, чем в случае строго линейного диэлектрика. Формально это следует из учета поляризации  $P_{NL}^S(\omega_1)$ , возникающей в результате взаимодействия между основной волной и волной гармоники. Вместе с тем, поскольку преобразование энергии на границе всегда мало, амплитуду волны основной частоты с достаточной степенью точности можно рассматривать как фиксированный параметр. Уменьшение энергии основной волны внутри нелинейного диэлектрика детально обсуждалось в работе [6]. Однако учет реакции волн гармоник на основную волну, к счастью, не обязателен при анализе явлений на границе нелинейной среды.

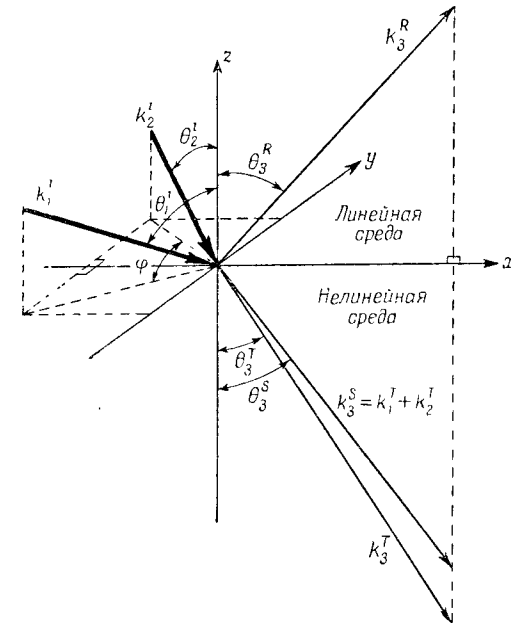
### § 3. Общие законы преломления и отражения

Рассмотрим границу ( $z = 0$ ) между линейной средой, где распространяются падающая и отраженная волны (мы будем характеризовать их соответственно индексами  $i$  и  $R$ ), и нелинейной средой, где распространяется прошедшая волна (отмеченная индексом  $T$ ). Пусть на границу из линейной среды падают две плоские волны,

$$E_1 e^{i(k_1^i \cdot r - \omega_1 t)} \quad \text{и} \quad E_2 e^{i(k_2^i \cdot r - \omega_2 t)}.$$

В общем случае от границы будут распространяться волны со всеми суммарными и разностными частотами  $m_1 \omega_1 \pm m_2 \omega_2$ , где  $m_1, m_2$  — целые числа. Мы подробно рассмотрим случай генерации суммарной частоты  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Это рассмотрение нетрудно распространить и на случаи генерации разностной и других комбинационных частот, а также на случаи падения на границу трех или более волн.

Геометрические соотношения иллюстрируются на фиг. 2. Здесь  $\theta_1^i$  и  $\theta_2^i$  — углы падения двух волн; плоскости падения составляют угол  $\varphi$  между собой. Выберем направления осей  $x$  и  $y$  координатной системы так, что  $k_{1y}^i = -k_{2y}^i$ .



Фиг. 2. Два падающих луча с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , возбуждающие отраженную волну и неоднородную прошедшие волны с суммарной частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ , распространяющиеся в глубь нелинейной среды.

Для того чтобы граничные условия удовлетворялись одновременно во всех точках плоскости  $z = 0$ , необходимо и достаточно выполнения условия сохранения  $x$ - и  $y$ -компонент волновых векторов. Для волны на суммарной частоте условие сохранения компонент записывается в виде

$$\begin{aligned} k_{3x}^R &= k_{3x}^T = k_{3x}^S = k_{1x}^T + k_{2x}^T = k_{1x}^i + k_{2x}^i, \\ k_{3y}^R &= k_{3y}^T = k_{3y}^S = k_{1y}^T + k_{2y}^T = k_{1y}^i + k_{2y}^i = 0. \end{aligned} \quad (3.1)$$

Выражение (3.1) непосредственно приводит к следующей теореме: направления распространения неоднородной волны источника, однородных прошедшей и отраженной волн с суммарной частотой и нормалью к границе лежат в одной плоскости. При нашем выборе системы координат эта «плоскость отраженной волны с суммарной частотой» совпадает с плоскостью  $xz$ . Аналогичные теоремы имеют место и для волн с разностной и другими комбинационными частотами, хотя их плоскости отражения в общем случае будут различными.

Распространение неоднородной волны с суммарной частотой, амплитуда которой пропорциональна величине  $P^{NL,S}(\omega_3)$ , описывается величиной  $\exp[i(\mathbf{k}_1^T + \mathbf{k}_2^T) \cdot \mathbf{r} - i(\omega_1 + \omega_2)t]$ . Угол  $\theta_3^S$  между направлением ее распространения в нелинейной среде и нормалью определяется выражением

$$\sin \theta_3^S = \frac{|k_{1x}^T + k_{2x}^T|}{|\mathbf{k}_1^T + \mathbf{k}_2^T|}.$$

Волновые векторы  $\mathbf{k}_1^T$  и  $\mathbf{k}_2^T$  определяются законами преломления Снеллиуса для обычного линейного случая. Условимся, что все углы, составляемые с нормалью к границе, изменяются в интервале от 0 до  $\pi/2$ , а угол  $\varphi$  между плоскостями падения волн — в интервале от 0 до  $\pi$ . Из простых тригонометрических соотношений имеем

$$|k_3^T|^2 \sin^2 \theta_3^T = |k_3^R|^2 \sin^2 \theta_3^R = |k_1^i|^2 \sin^2 \theta_1^i + |k_2^i|^2 \sin^2 \theta_2^i + 2|k_1^i||k_2^i| \sin \theta_1^i \sin \theta_2^i \cos \varphi. \quad (3.2)$$

Вводя диэлектрическую проницаемость  $\epsilon = k^2(\omega^2/c^2)^{-1}$ , перепишем (3.2) в виде

$$\epsilon_3^T \omega_3^2 \sin^2 \theta_3^T = \epsilon_3^R \omega_3^2 \sin^2 \theta_3^R = \epsilon_1^R \omega_1^2 \sin^2 \theta_1^i + \epsilon_2^R \omega_2^2 \sin^2 \theta_2^i + 2(\epsilon_1^R \epsilon_2^R)^{1/2} \omega_1 \omega_2 \sin \theta_1^i \sin \theta_2^i \cdot \cos \varphi. \quad (3.3)$$

Верхние индексы  $R$  и  $T$  относятся соответственно к линейной и нелинейной средам, нижние индексы — к частотам. Полезно ввести эффективную диэлектрическую про-

ницаемость  $\epsilon^S$  для нелинейного источника, определяемую соотношением

$$\epsilon^S \sin^2 \theta_3^S = \epsilon_3^T \sin^2 \theta_3^T = \epsilon_3^R \sin^2 \theta_3^R. \quad (3.4)$$

В частном случае совпадения плоскостей падения получается простое соотношение, весьма напоминающее закон Снеллиуса

$$(\epsilon_3^T)^{1/2} \sin \theta_3^T = \frac{\omega_1}{\omega_3} (\epsilon_1^R)^{1/2} \sin \theta_1^i \pm \frac{\omega_2}{\omega_3} (\epsilon_2^R)^{1/2} \sin \theta_2^i. \quad (3.5)$$

Знак «+» следует использовать в том случае, когда обе волны падают по одну сторону от нормали, знак «-» — в случае, когда они падают с противоположных сторон. Если линейная среда является оптически более плотной, чем нелинейная,  $\epsilon_1^R \sim \epsilon_2^R > \epsilon_3^T$ , то  $\sin \theta_3^T$  может оказаться больше единицы. Этот случай полного отражения мы подробно обсудим в § 5 после рассмотрения вопроса об интенсивности и поляризации. Если нас интересует волна с разностной частотой  $\omega_{-3} = \omega_1 - \omega_2$ , негрудно записать соотношения, аналогичные (3.1)–(3.3). Для краткости приведем лишь соотношение, аналогичное (3.5),

$$\begin{aligned} (\epsilon_{-3}^R)^{1/2} \sin \theta_{-3}^R &= (\epsilon_{-3}^T)^{1/2} \sin \theta_{-3}^T = \\ &= \frac{\omega_1}{\omega_{-3}} (\epsilon_1^R)^{1/2} \sin \theta_1^i \mp \frac{\omega_2}{\omega_{-3}} (\epsilon_2^R)^{1/2} \sin \theta_2^i. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Знак «+» следует теперь использовать в том случае, когда волны падают с противоположных сторон от нормали. Поскольку  $\omega_1/\omega_{-3} > 1$ , здесь легко осуществляется случай  $\sin \theta_{-3}^R > 1$ ; при этом отраженная волна с разностной частотой исчезает. Такая ситуация не имеет аналога в линейной теории. При  $\epsilon_{-3}^T > \epsilon_{-3}^R$ , даже если  $\sin \theta_{-3}^R > 1$ , существуют две возможности:  $\sin \theta_{-3}^T > 1$  и  $\sin \theta_{-3}^T < 1$ . Легко видеть, что задачи, связанные с полным отражением и прохождением света, в нелинейном случае более разнообразны; их обсуждение проводится в § 5.

Случай генерации второй гармоники, рассмотренный в предыдущем параграфе, описывается соотношением

(3.3), если в нем положить  $\theta_1^i = \theta_2^i$ ,  $\varphi = 0$  и  $\epsilon_1^R = \epsilon_2^R = \epsilon_3^R$ . Вообще говоря, волны с суммарной и разностной частотами будут отражаться в том же направлении, что и волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , если падающие лучи приходят в одном направлении, а среда не обладает дисперсией.

Условия сохранения тангенциальных компонент волновых векторов [см. (3.1)] носят общий характер. Они легко могут быть использованы для определения направлений распространения волн с комбинационными частотами более высокого порядка. Эти условия остаются в силе независимо от того, является ли излучение гармоники дипольным (электрическим или магнитным) или квадрупольным; они справедливы и для анизотропной среды. В этом случае существуют два направления для волнового вектора с заданными тангенциальными компонентами. В общем случае здесь возникнет четыре неоднородные волны с суммарной частотой, соответствующие смещению двух преломленных волн с частотой  $\omega_1$  и двух преломленных волн с частотой  $\omega_2$ . Если линейная среда также является анизотропной, возникнут две однородные прошедшие волны (угол преломления  $\theta_3^T$ ) и две отраженные волны (угол отражения  $\theta_3^R$ ).

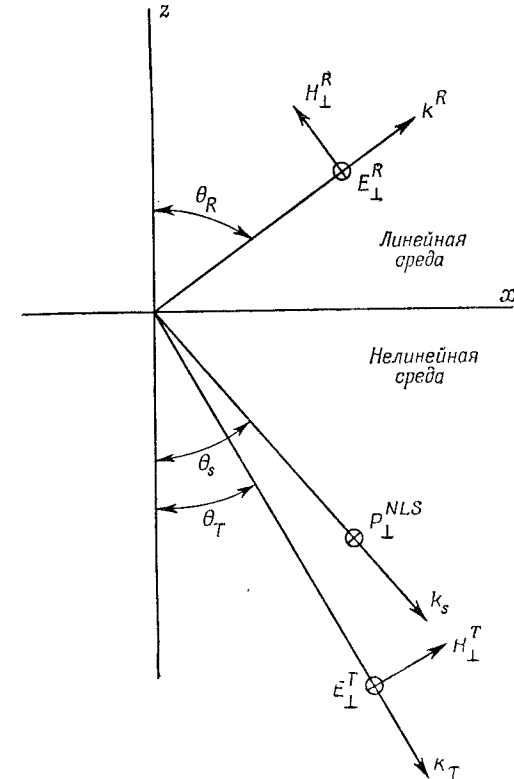
#### § 4. Поляризация и интенсивность волн с комбинационными частотами

В этом параграфе мы ограничимся обсуждением случая изотропной среды, хотя пример, рассмотренный в § 2, показывает, что при определенной геометрии все рассуждения применимы и к анизотропным кристаллам. Обобщение вычислений на анизотропный случай не вызывает каких-либо принципиальных затруднений, но приводит к такому усложнению алгебраических расчетов, что проводить их вряд ли целесообразно.

При расчете поляризации и интенсивности волн с суммарной частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  мы будем исходить из выражения для нелинейной поляризации, индуцируемой в среде

$$P_{\perp}^{NLS}(\omega_3) = \chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : E_1^T E_2^T e^{i(k_1^T + k_2^T) \cdot r - i\omega_3 t}. \quad (4.1)$$

Преломленные волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  выражаются через падающие волны с помощью формул Френеля и Снеллиуса; тем самым определена нелинейная поляризация на частоте  $\omega_3$ . Угловая зависимость величины



Фиг. 3. Волны гармоника на границе нелинейной среды, поляризованные нормально к плоскости отражения.

$P_{\perp}^{NLS}$  определяется прошедшими линейными волнами, которые можно найти с помощью обычных формул Френеля. При анализе угловой зависимости генерации комбинационных волн следует брать соответствующую величину для  $P_{\perp}^{NLS}$ . Как и в линейном случае, можно неза-

вильно отражает начальный этап процесса генерации гармоники и позволяет корректно сформулировать граничные условия, используемые в [6] при решении системы приближенных уравнений первого порядка для амплитуд связанных волн. Отметим, что на начальном этапе амплитуды волн с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  постоянны (точнее, уменьшаются пропорционально  $z^2$ ).

Следует иметь в виду, что для прошедшей волны поверхности постоянной амплитуды и постоянной фазы не совпадают. Исключение составляет случай, когда волны распространяются нормально к границе. В этом частном случае амплитуды отраженной и прошедшей волн определяются выражениями

$$E_n^R = -4\pi P_{\perp}^{\text{NLS}} (\epsilon_T^{1/2} + \epsilon_R^{1/2})^{-1} (\epsilon_T^{1/2} + \epsilon_S^{1/2})^{-1}, \quad (4.9)$$

$$E_n^T = E_n^R + \frac{4\pi P_{\perp}^{\text{NLS}} \exp [i(\epsilon_S^{1/2} - \epsilon_T^{1/2})\omega c^{-1}z] - 1}{\epsilon_S - \epsilon_T}.$$

Как амплитуда, так и фаза прошедшей волны, распространяющейся в нелинейной среде, изменяются с расстоянием.

## Б. ПАРАЛЛЕЛЬНАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ

Волны гармоник с параллельной поляризацией ( $E_y = P_y^{\text{NLS}} = 0$ ) генерируются  $x$ - и  $z$ -компонентами нелинейной поляризации. Удобно характеризовать нелинейную поляризацию в плоскости отражения ее величиной  $P_{\parallel}^{\text{NLS}}$  и углом  $\alpha$  между ее направлением и направлением волнового вектора  $\mathbf{k}^S$ .

Непрерывность тангенциальных компонент в плоскости  $z = 0$  имеет место, как следует из (2.5) и (2.6) и фиг. 4, если

$$E_x = -E_{\parallel}^R \cos \theta_R = \mathcal{E}_{\parallel}^T \cos \theta_T + \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \sin \alpha \cos \theta_S}{\epsilon_S - \epsilon_T} - \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \cos \alpha \sin \theta_S}{\epsilon_T}, \quad (4.10)$$

$$H_y = -\epsilon_R^{1/2} E^R = -\epsilon_T^{1/2} \mathcal{E}_{\parallel}^T - \epsilon_S^{1/2} \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \sin \alpha}{\epsilon_S - \epsilon_T}. \quad (4.11)$$

Последний член в (4.10) связан с продольной компонентой вектора  $\mathbf{E}$ . Продольные компоненты векторов  $\mathbf{D}$  или  $\mathbf{H}$  в этом случае, конечно, равны нулю. Непрерывность их нормальных компонент на границе автоматически следует из соотношений (3.3), (4.10) и (4.11). Исключая из последних двух соотношений величину  $\mathcal{E}_{\parallel}^T$ , для амплитуды отраженной волны получим

$$E_{\parallel}^R = \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \sin \alpha}{\epsilon_R^{1/2} \cos \theta_T + \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_R} \cdot \frac{1 - (\epsilon_S^{-1} + \epsilon_T^{-1}) \epsilon_R \sin^2 \theta_R}{\epsilon_S^{1/2} \cos \theta_T + \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_S} + \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \cos \alpha \sin \theta_S}{\epsilon_T^{1/2} \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_T + \epsilon_T \cos \theta_R}. \quad (4.12)$$

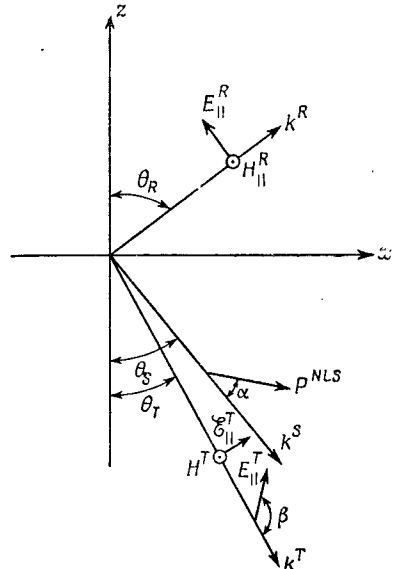
Используя (3.3), преобразуем выражение (4.12) к виду

$$E_{\parallel}^R = \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \sin \theta_S \sin^2 \theta_T \sin (\alpha + \theta_T + \theta_S)}{\epsilon_R \sin \theta_R \sin (\theta_T + \theta_S) \sin (\theta_T + \theta_R) \cos (\theta_T - \theta_R)}. \quad (4.13)$$

При точном согласовании фазовых скоростей ( $\theta_S = \theta_T$ ) не наблюдается каких-либо аномалий в поведении интенсивности отраженной волны. В пределе при нормальном отражении ( $\theta_S = \theta_T = \theta_R = 0$ ) выражение (4.12) имеет ту же форму, что и (4.9), за исключением отрицательного знака. Это различие тривиально и является следствием условий, принятых на фиг. 3 и 4. В случае нормального отражения нет различия между параллельной и перпендикулярной поляризациями.

Соотношение (4.13) указывает на существование угла Брюстера для комбинационных волн, соответствующего обращению амплитуды отраженной волны в нуль,  $E_{\parallel}^R = 0$ . При  $\theta_T = \pi - \alpha - \theta_S$  отраженная гармоника полностью поляризована перпендикулярно плоскости отражения. Это условие означает, что нелинейная поляризация параллельна тому направлению в нелинейной среде, для которого распространяющаяся вдоль него волна при преломлении в линейную среду дает отраженную волну в направлении  $\theta_R$ . Физический смысл угла Брюстера со-

стоит в том, что нелинейная поляризация не может излучать внутри среды в направлении, в котором мог бы существовать отраженный луч. Эта интерпретация на первый взгляд противоречит простому объяснению угла Брюстера в линейном случае, согласно которому поляризация не может излучать в вакуум параллельно своему собственному направлению, что приводит к условию  $\theta_R + \theta_T = \pi/2$ .



Фиг. 4. Волны гармоники на границе нелинейной среды, поляризованные в плоскости отражения. Нелинейная поляризация и электрическое поле могут иметь продольные компоненты.

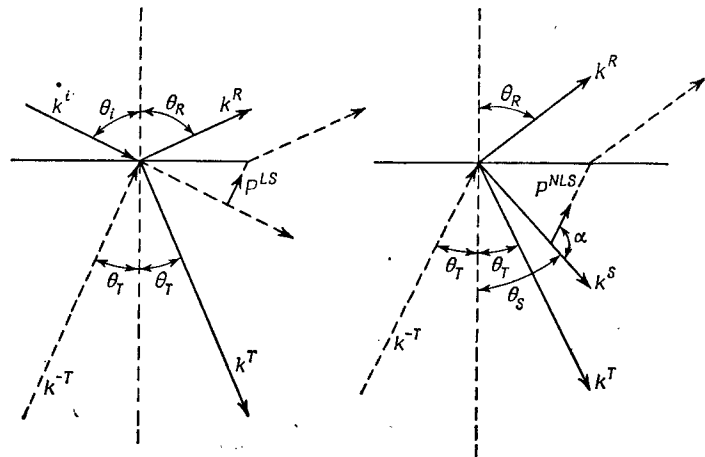
считать, что эта полная поляризация излучает в вакуум; в результате мы приходим к обычной интерпретации угла Брюстера: полная поляризация параллельна направлению отражения.

Резюмируем сказанное. Дипольное взаимодействие, т. е. лоренцева поправка к действующему полю, должно учитываться только один раз. Это можно сделать двумя способами: либо вычислять полную поляризацию и считать, что она излучает в вакуум, либо рассматривать

поляризация не может излучать в вакуум параллельно своему собственному направлению, что приводит к условию  $\theta_R + \theta_T = \pi/2$ .

Фиг. 5 показывает, как можно примирить эти две интерпретации. Поляризацию, индуцированную падающей из вакуума волной, можно рассматривать как линейный источник PLS. Этот источник излучает внутри среды. Именно таким образом мы учитываем дипольное взаимодействие в решетке и тем самым вводим в рассмотрение нелинейную поляризацию. Вместе с тем мы можем рассматривать полную поляризацию решетки, включающую как линейную, так и нелинейную части. Тогда следует

поле излучения в среде, созданное поляризацией, которая индуцирована волной в вакууме. Затронутые вопросы носят чисто семантический характер. Уравнения Максвелла, конечно, правильно учитывают дипольное взаимодействие в среде. Амплитуду прошедшей волны, поляризованной в плоскости падения, можно получить,



Фиг. 5. Угол Брюстера для линейного и нелинейного отражения. Полная поляризация не может излучать в вакуум в направлении отраженного луча. Источник поляризации не может излучать в среду в направлении вектора  $k_{\perp T}$ , вследствие чего может существовать луч, отраженный в вакуум.

подставляя  $P_{\parallel}^{NLS}$  и  $\mathcal{E}_{\parallel}^T$  в (2.5); последняя величина определяется из уравнений (4.11) и (4.12). С помощью соотношения (4.7) можно опять записать поле, прошедшее в нелинейную среду, в виде одной волны, распространяющейся в направлении вектора  $k_T$ , но с амплитудой, зависящей от расстояния  $z$  от границы. Амплитуда электрического поля прошедшей волны  $E_{\parallel}^T$  будет в общем случае иметь как продольную, так и поперечную компоненты. Вводя угол  $\beta$  между полем  $E_{\parallel}^T$  и направлением распространения  $k_T$ , для поперечной компоненты электрического поля полной прошедшей волны после некото-

рых преобразований получаем

$$E_{\parallel}^T \sin \beta = \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \sin \theta_S \sin \theta_T \sin (\alpha + \theta_T + \theta_S)}{\varepsilon_T \sin (\theta_T + \theta_S) \sin (\theta_T + \theta_R) \cos (\theta_T - \theta_R)} -$$

$$\frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \sin \alpha \sin \theta_S \cos \theta_S}{\varepsilon_T \sin (\theta_T + \theta_S)} + 4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \cos \alpha \sin (\theta_T - \theta_S) \times$$

$$\times \varepsilon_T^{-1} \exp \{i\omega c^{-1} z (\varepsilon_S^{1/2} \cos \theta_S - \varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_T)\} +$$

$$+ 4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \sin \alpha \cos (\theta_T - \theta_S) \times$$

$$\times \frac{\exp \{i\omega c^{-1} z (\varepsilon_S^{1/2} \cos \theta_S - \varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_T)\} - 1}{\varepsilon_S - \varepsilon_T}. \quad (4.14)$$

Первые три члена дают постоянную величину, соответствующую граничному значению амплитуды прошедшей волны; последний член изменяется с расстоянием  $z$  вследствие интерференции между волнами, являющимися решениями однородного и неоднородного волновых уравнений. Для расстояний  $z$ , настолько малых, что не появляется сколь-нибудь заметного рассогласования фазовых скоростей, интенсивность волны растет пропорционально  $z^2$ . Амплитуда волны имеет компоненту, сдвинутую по фазе на  $90^\circ$ :

$$4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \frac{\sin \alpha \cos (\theta_T - \theta_S)}{\varepsilon_S^{1/2} \cos \theta_S + \varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_T}.$$

Для продольной компоненты вектора электрического поля, параллельной вектору  $\mathbf{k}_T$ , имеем

$$E_{\parallel}^T \cos \beta = \frac{4\pi P_{\parallel}^{\text{NLS}} \{ \sin \alpha \sin^2 \theta_S - \cos \alpha \cos (\theta_T - \theta_S) \sin (\theta_T - \theta_S) \}}{\varepsilon_T \sin (\theta_T + \theta_S)} \times$$

$$\times \exp \{i\omega c^{-1} z (\varepsilon_S^{1/2} \cos \theta_S - \varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_T)\}. \quad (4.15)$$

Из-за присутствия этой продольной компоненты энергия в прошедшем луче распространяется в направлении, отличном от направления вектора  $\mathbf{k}_T$ . При точном согласовании фазовых скоростей продольная компонента является постоянной величиной. Электрическое поле в нелинейной среде полностью определяется формулами

(4.14) и (4.15) как для случая точного согласования фазовых скоростей ( $\theta_S = \theta_T$ ), так и для рассогласования. Следует помнить, разумеется, что они получены в приближении заданных полей падающих волн. Это приближение хорошо удовлетворяется, поскольку вблизи границы относительные амплитуды комбинационных волн весьма малы. Вместе с тем полученные результаты могут быть согласованы с более общими решениями для бесконечной среды, в которых учитывается обратная реакция волн с комбинационными частотами на падающие волны.

Интересно отметить, что даже в случае чисто продольной нелинейной поляризации ( $\alpha = 0$ ) и точного согласования фазовых скоростей ( $\theta_S = \theta_T$ ) в среде имеется поперечная волна, однако эта волна не возрастает с расстоянием. Ее источником является продольная волна вблизи границы; эта же волна создает и отраженный луч. Можно также сказать, что нелинейная поляризация индуцирует линейную поляризацию, которая не является чисто продольной и может излучать. В случае нормального падения ( $\theta_T = \theta_S = 0$ ) излучение от продольной компоненты нелинейной поляризации полностью отсутствует.

## В. ДАЛЬНЕЙШИЕ ОБОБЩЕНИЯ И ПРИМЕРЫ

Рассуждения, проведенные в этом параграфе, можно непосредственно обобщить на случай высших гармоник. Для этого достаточно определить величину поляризации  $P_{\parallel}^{\text{NLS}}$  на интересующей нас частоте, появление которой связано с волнами, падающими из линейной среды. Уравнения этого параграфа остаются справедливыми, если углы  $\theta_S$ ,  $\theta_T$  и  $\theta_R$  в каждом отдельном случае определены надлежащим образом, как описано в § 3.

Уравнения остаются справедливыми и для поглощающей среды. В этом случае величины  $\varepsilon_T$  и  $\varepsilon_S$  являются комплексными: углы  $\theta_T$  и  $\theta_S$ , вообще говоря, тоже являются комплексными величинами. Угол отражения, определяемый формулой (3.3), остается действительной величиной. Темп затухания основной волны и волны гармоники в среде определяется характеристическими дли-

нами затухания  $K_S^{-1}$  и  $K_T^{-1}$ ,

$$K_{S,T} = \text{Im} [\omega c^{-1} (\epsilon'_{S,T} + i\epsilon''_{S,T})^{1/2}].$$

В том случае, когда потери в нелинейной среде на расстоянии длины волны малы ( $K\lambda \ll 1$  или  $\epsilon'' \ll \epsilon'$ ), интенсивности отраженной волны не изменяется по порядку величины. Общие выражения (4.5) и (4.13) могут быть записаны в отдельности для действительной и мнимой частей. Из-за потерь в среде амплитуда отраженной волны гармоники будет сдвинута по фазе относительно величины  $P^{NLS}$ . Сама величина  $P^{NLS}$  определяется световыми волнами внутри среды, которые в свою очередь сдвинуты по фазе относительно падающей волны. В качестве примера приведем выражение для амплитуды отраженной волны с суммарной частотой в случае нормального падения

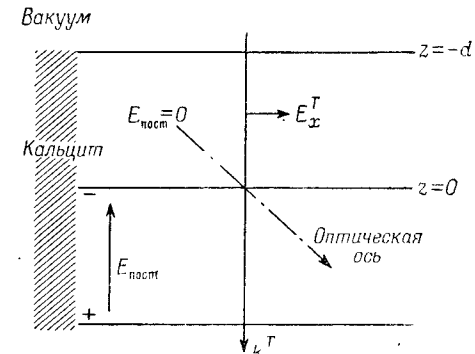
$$\begin{aligned} E^R (\theta_R = 0) = & -4\pi P^{NLS} \{ [\epsilon'_T(\omega_3) + i\epsilon''_T(\omega_3)]^{1,2} + \\ & + [\epsilon_R(\omega_3)]^{1/2} \}^{-1} \{ [\epsilon'_T(\omega_3) + i\epsilon''_T(\omega_3)]^{1/2} + \\ & + \frac{\omega_1}{\omega_3} [\epsilon'_T(\omega_1) + i\epsilon''_T(\omega_1)] + \frac{\omega_2}{\omega_3} [\epsilon'_T(\omega_2) + i\epsilon''_T(\omega_2)] \}^{-1}. \end{aligned} \quad (4.16)$$

Соотношения такого типа описывают процесс генерации гармоники вблизи поверхности металла. Если рассматривать плазму, то ее линейная проводимость может быть выражена через комплексную диэлектрическую проницаемость, а нелинейные свойства можно описать с помощью величины  $P^{NLS}$ . Эта величина определяется формулой (2.1), в которую должны теперь входить, конечно, поля внутри металла.

Нетрудно провести обобщение теории на случай, когда на границу нелинейной среды, кроме волн с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , падает также и волна с частотой  $\omega_3$ . Такая задача представляет интерес при рассмотрении усиления сигнала с частотой  $\omega_3$ .

Выведенные уравнения остаются справедливыми, если  $\epsilon_R = \epsilon_T$ , т. е. на границе изменяются только нелинейные свойства среды. Экспериментально такая ситуация имеет место, например, в случае, когда к части кристал-

ла, находящейся в области  $z > 0$ , приложено сильное постоянное электрическое поле  $E_{\text{пост}}$ , тогда как в области  $z < 0$  это поле отсутствует. Предположим для простоты, что свет падает нормально к границе. Этот случай, проиллюстрированный на фиг. 6, соответствует идеализированной геометрии весьма интересного эксперимента по генерации второй гармоники в кальците, проведенного Терхьюном и др. [5].



Фиг. 6. Идеализированная геометрия для случая возбуждения второй гармоники в кристалле кальцита.

В отсутствие постоянного электрического поля в области  $z < 0$  волна гармоники генерируется за счет квадрупольного эффекта; при наложении поля  $E_{\text{пост}}$  в области  $z > 0$  преобладает дипольное излучение. На границе ( $z = 0$ ) волны интерферируют.

Основная волна с частотой  $\omega_1$ , поляризованная в направлении оси  $x$ , возбуждает в кальците волну нелинейной поляризации. Поскольку этот кристалл обладает центром инверсии, величина  $P^{NLS}$ , описывающая процесс генерации второй гармоники, содержит два члена

$$P^{NLS} = Q : E_1 \nabla E_1 + \chi : E_1 E_1 E_{\text{пост}}. \quad (4.17)$$

Из ненулевых компонент тензоров четвертого ранга  $Q$  и  $\chi$  для нашего случая представляют интерес компоненты  $x'x'x'x'$ ,  $x'x'z'z'$  и  $z'z'z'z'$ . Они приводят к появлению нелинейной поляризации в плоскости  $xz$ . В случае нормального падения продольная компонента  $P_z^{NLS}$  не представляет особого интереса. Для  $x$ -компоненты нели-



нейной поляризации имеем

$$P_x^{\text{NLS}} = iP_Q^{\text{NLS}} \quad \text{для } z < 0,$$

$$P_x^{\text{NLS}} = iP_Q^{\text{NLS}} + P^{\text{NLS}}(E_{\text{пост}}) \quad \text{для } z > 0.$$

Множитель  $i$  учитывает тот факт, что оператор градиента дает сдвиг по фазе на  $90^\circ$ . Нелинейная поляризация на частоте второй гармоники, индуцированная постоянным электрическим полем, сдвинута по фазе на  $90^\circ$  относительно поляризации, индуцированной квадрупольным эффектом. С последним эффектом связана генерация гармоники в области  $-d < z < 0$ . Если на расстояниях  $\sim d$  приближенно удовлетворяется условие согласования фазовых скоростей, то для амплитуды волн второй гармоники, падающей на границу  $z = 0$ , имеем

$$E_x^i(2\omega) = -\frac{4\pi iP_Q^{\text{NLS}} [1 + ik_z(2\omega)d]}{2\epsilon(2\omega)^{1/2} [\epsilon^{1/2}(2\omega) + \epsilon^{1/2}(\omega)]} \quad (z < 0). \quad (4.18)$$

Это выражение содержит волну гармоники, возбужденную при  $z = -d$ , и нарастающую с координатой волну, связанную с квадрупольным взаимодействием. Условия непрерывности для величин  $E_x$  и  $H_y$  при  $z = 0$ , где теперь имеет место скачок нелинейной поляризации  $P^{\text{NLS}}$

$$\Delta P^{\text{NLS}} = P^{\text{NLS}}(z = +0) - P^{\text{NLS}}(z = -0) = P^{\text{NLS}}(E_{\text{пост}}),$$

приводят к следующему выражению для амплитуды электрического поля прошедшей волны:

$$E_x^T(z > 0) = \frac{-4\pi iP_Q^{\text{NLS}} + [4\pi P_Q^{\text{NLS}} k_z d - 4\pi P^{\text{NLS}}(E_{\text{пост}})]}{2\epsilon^{1/2}(2\omega) [\epsilon^{1/2}(2\omega) + \epsilon^{1/2}(\omega)]} - \frac{4\pi [P^{\text{NLS}}(E_{\text{пост}} + iP_Q^{\text{NLS}})] ik_z z}{2\epsilon^{1/2}(2\omega) [\epsilon^{1/2}(2\omega) + \epsilon^{1/2}(\omega)]}. \quad (4.19)$$

Выражение (4.19) показывает, каким образом граничная волна, индуцированная постоянным электрическим полем, может интерферировать с волной, обусловленной квадрупольным эффектом в области, где постоянное электрическое поле отсутствует. С указанной интерференцией, по-видимому, связано то, что в экспериментах

Терхьюна и др. [5] минимум интенсивности второй гармоники в кальците наблюдался при  $E_{\text{пост}} \neq 0$ . Вместе с тем нельзя с полной уверенностью утверждать, что этот минимум имеет место при взаимной компенсации квадрупольного эффекта и эффекта, обусловленного постоянным электрическим полем. Такая компенсация возможна лишь в том случае, когда однородное поле  $E_{\text{пост}}$  действует на весь объем кристалла. При такой идеальной геометрии минимум интенсивности гармоники действительно должен наблюдаться при  $E_{\text{пост}} = 0$ . Наши рассуждения относятся лишь к тому случаю, когда поле  $E_{\text{пост}}$  на границе терпит разрыв, однако подобные же интерференционные явления будут наблюдаться и в тех областях, где существует градиент постоянного электрического поля. В § 6 мы проанализируем более сложную модель, представляющую собой набор плоскопараллельных пластин с различными нелинейными и линейными свойствами.

## § 5. Полное отражение и прохождение

Экспоненциальное затухание (или исчезновение) волн может иметь место и в недиссипативных средах. Это явление в линейных диэлектриках называют полным внутренним отражением [8]. Оно имеет место, если значение  $\sin \theta_T$ , полученное из закона преломления, оказывается больше единицы. В целом ряде случаев для нелинейной среды один или более из углов  $\theta^R$ ,  $\theta^S$  и  $\theta^T$  можно рассматривать как комплексные величины, несмотря на то что диэлектрическая проницаемость является действительной величиной. В этом параграфе мы рассмотрим поведение волн с суммарной ( $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ) и разностной ( $\omega_{-3} = \omega_1 - \omega_2$ ) частотами.

Случай А. Углы  $\theta_1^T$  и  $\theta_2^T$  действительны. Обе падающие волны проходят в нелинейную среду. Нелинейная поляризация в среде будет возникать обычным образом. Неоднородная волна имеет действительный волновой вектор,  $\sin \theta_S < 1$ . Исследование соотношения (3.3) показывает, что в случае нормальной дисперсии ( $\epsilon_3^R > \epsilon_{1,2}^R$  и  $\epsilon_3^T > \epsilon_{1,2}^T$ ) углы  $\theta_3^R$  и  $\theta_3^T$  всегда действ-

вительны. Совершенно иная ситуация возникает для волн с разностной частотой. Для углов имеем общее выражение

$$\omega_{-3}^2 \epsilon_{-3}^R \sin^2 \theta_{-3}^R = \omega_{-3}^2 \epsilon_{-3}^T \sin^2 \theta_{-3}^T = \omega_1^2 \epsilon_1^R \sin^2 \theta_1^i + \\ + \omega_2^2 \epsilon_2^R \sin^2 \theta_2^i - 2\omega_1 \omega_2 (\epsilon_1^R)^{1/2} (\epsilon_2^R)^{1/2} \sin \theta_1^i \sin \theta_2^i \cos \varphi. \quad (5.1)$$

Чем меньше разностная частота  $\omega_{-3}$ , тем больше вероятность того, что волны на этой частоте не будут излучаться. Эта вероятность особенно велика, если  $\cos \varphi < 0$ , т. е. если две падающие волны попадают на границу с противоположных сторон от нормали и если углы падения близки к  $90^\circ$ .

Из выражения (5.1) следует, что всякий раз, когда  $\sin \theta_R$  или  $\sin \theta_T$  больше единицы, волны будут затухать по экспоненциальному закону (соответственно в линейной или нелинейной среде). Затухание отраженной или прошедшей волны с частотой  $\omega_{-3}$  характеризуется следующей зависимостью:

$$\exp [i(k_{1x}^i - k_{2x}^i)x + i(k_{1y}^i - k_{2y}^i)y] \times \\ \times \exp [-(\sin^2 \theta_{-3}^{R,T} - 1)^{1/2} \omega_{-3} c (\epsilon_{-3}^{R,T})^{1/2} z].$$

Зависимость от координат  $x$  и  $y$  носит колебательный характер, однако волны затухают в направлении оси  $z$  и существуют лишь вблизи границы в области с размерами порядка нескольких длин волн. Здесь можно различать четыре возможности:

1.  $\sin \theta_S < 1$ ,  $\sin \theta_T < 1$ ,  $\sin \theta_R < 1$ . Это обычная ситуация, которая подробно обсуждалась в предыдущих параграфах. Все волны распространяются.

2.  $\sin \theta_S < 1$ ,  $\sin \theta_T < 1$ , но  $\sin \theta_R > 1$ . Этот случай может иметь место для волны с разностной частотой  $\omega_{-3}$ , если  $\epsilon_{-3}^R < \epsilon_{-3}^T$ . Отраженная волна с частотой  $\omega_{-3}$  отсутствует; волна с разностной частотой полностью проходит в среду. Амплитуда прошедшей волны определяется соотношениями (4.8), (4.14) и (4.15). Так как  $\sin^2 \theta_R > 1$ , величина  $\cos \theta_R = i(\sin^2 \theta_R - 1)^{1/2}$  является чи-

сто мнимой. Соотношение (4.5) можно переписать в виде

$$E_{\perp}^R = \frac{-4\pi P_{\perp}^{\text{NLS}} \sin^2 \theta_T \sin \theta_S}{\sin(\theta_S + \theta_T) \sin \theta_R [\sin^2 \theta_R \cos^2 \theta_T + i(\sin^2 \theta_R - 1)^{1/2} \sin \theta_T]}. \quad (5.2)$$

Амплитуда отраженной волны сама по себе не представляет большого интереса, поскольку она быстро затухает при удалении от границы. Комбинируя (5.2) и (4.8), получаем, что прошедшая волна сдвинута по фазе относительно волны нелинейной поляризации. Отсутствие отраженной волны не влияет на нарастающую часть прошедшей волны.

Подобные же результаты можно получить для случая, когда прошедшая волна поляризована в плоскости падения; амплитуды по-прежнему определяются соотношениями (4.14) и (4.15). Подставляя в знаменатель первого члена правой части (4.14) величину

$$\sin(\theta_T + \theta_R) \cos(\theta_T - \theta_R) = \sin \theta_T \cos \theta_T + \\ + i \sin \theta_R (\sin^2 \theta_R - 1)^{1/2}, \quad (5.3)$$

убеждаемся, что прошедшая волна сдвинута по фазе относительно величины  $P_{\parallel}^{\text{NLS}}$ . Отсутствие отраженной волны не влияет на нарастающую часть прошедшей волны и на продольную компоненту [см. (4.15)].

3.  $\sin \theta_S < 1$ ,  $\sin \theta_R < 1$ ,  $\sin \theta_T > 1$ . Такая ситуация имеет место для волны с разностной частотой, если  $\epsilon_{-3}^R > \epsilon_{-3}^T$ . В этом случае величина  $\cos \theta_{-3}^T = i(\sin^2 \theta_{-3}^T - 1)^{1/2}$  является чисто мнимой. Амплитуда отраженной волны для перпендикулярной поляризации по-прежнему определяется формулами (4.5) и (4.13). Эти выражения легко разложить на действительную и мнимую части, однако результаты мы не приводим. Здесь имеет место сдвиг по фазе, так как амплитуда отраженной волны является теперь комплексной величиной. Отсутствие прошедшей однородной волны не влияет на порядок величины этой амплитуды.

При этих условиях прошедшая волна все же существует, поскольку неоднородная волна распространяется

На расстоянии от границы, превышающем несколько длин волн, прошедшая волна определяется выражением

$$E_{\perp}^T = \frac{4\pi P_{\perp}^{\text{NLS}}}{\varepsilon_S - \varepsilon_T} e^{i(k_S r - \omega - 3t)}. \quad (5.4)$$

Подобным же выражением описывается волна с параллельной поляризацией. Здесь не существует согласования фазовых скоростей, поскольку при  $\sin \theta_S < 1$  и  $\sin \theta_T > 1$  должно выполняться условие  $\varepsilon_S - \varepsilon_T > 0$ . Мы не получим особой выгоды в том случае, когда  $\varepsilon_S \rightarrow \varepsilon_T$ , поскольку при этом неоднородное решение (5.4) затухает все медленнее и медленнее, если  $\sin \theta_S < 1$ .

4.  $\sin \theta_S < 1$ ,  $\sin \theta_R > 1$ ,  $\sin \theta_T > 1$ . Здесь не исчезает лишь неоднородная прошедшая волна. Амплитуда прошедшей волны при удалении от границы снова определяется формулой (5.4).

Случай Б. Обе падающие волны испытывают полное отражение,  $\sin \theta_1^T > 1$  и  $\sin \theta_2^T > 1$ . В этом случае, который имеет место, когда линейная среда является оптически более плотной, чем нелинейная, неоднородная волна всегда исчезает,  $\sin \theta_S > 1$ . Волна нелинейной поляризации экспоненциально затухает при удалении от границы; однако поляризация на суммарной или разностной частотах, существующая лишь в поверхностном слое толщиной порядка одной длины волны, может генерировать как отраженные, так и прошедшие бегущие волны. Мы рассмотрим несколько вариантов:

1.  $\sin \theta_S > 1$ ,  $\sin \theta_T > 1$ ,  $\sin \theta_R < 1$ . При этих условиях волны с суммарной и разностной частотами также полностью отражаются. Такой случай обычно имеет место, когда единственная падающая волна с основной частотой полностью отражается. Для второй гармоники, например, существует угол  $\theta_T$ , для которого величина  $\sin \theta_T(2\omega) = [\varepsilon_T^{1/2}(\omega)/\varepsilon_T^{1/2}(2\omega)] \sin \theta_S$  больше единицы, если только нет аномальной дисперсии. Интенсивность отраженной гармоники вновь определяется формулами (4.5) или (4.13), где теперь обе величины  $\cos \theta_S$  и  $\cos \theta_T$  являются чисто мнимыми. Здесь будут иметь место фазовые сдвиги относительно величины  $P^{\text{NLS}}$ , однако существенно то, что интенсивность отраженной гармоники

оказывается величиной одного и того же порядка независимо от того, испытывает ли падающая волна полное отражение или проходит в среду. Это дает возможность генерировать вторую гармонику или гармоники более высокого порядка при повторных полных отражениях от поверхностей нелинейного диэлектрика.

2.  $\sin \theta_S > 1$ , но  $\sin \theta_T < 1$ ,  $\sin \theta_R < 1$ . Этот случай имеет место, например, если волна с суммарной частотой возбуждается двумя полностью отражающимися падающими волнами, попадающими на границу с противоположных сторон. Поскольку неоднородная волна быстро затухает, амплитуды поля отраженной и прошедшей волн определяются соответственно выражениями (4.5) и (4.2), где величина  $\cos \theta_S$  является чисто мнимой. Точно так же могут быть рассмотрены волны, поляризованные в плоскости отражения.

3.  $\sin \theta_S > 1$ ,  $\sin \theta_T < 1$ ,  $\sin \theta_R > 1$ . Поскольку из первого условия следует, что  $\varepsilon_R(\omega_1 \text{ и } \omega_2) > \varepsilon_T(\omega_1 \text{ и } \omega_2)$ , а из двух последних — что  $\varepsilon_R(\omega_3) < \varepsilon_T(\omega_3)$ , эта ситуация редко встречается в изотропных средах; она может иметь место при специальном подборе обыкновенного и необыкновенного лучей в анизотропной среде.

4.  $\sin \theta_S > 1$ ,  $\sin \theta_T > 1$ ,  $\sin \theta_R > 1$ . Этот случай не представляет большого интереса, поскольку здесь все волны гармоник являются исчезающими.

Случай В. Величина  $\sin \theta_S$  комплексна. Рассмотрим такие условия, когда одна из падающих волн (например, с частотой  $\omega_1$ ) проходит, а волна с частотой  $\omega_2$  полностью отражается. Волна нелинейной поляризации, возбужденная на суммарной частоте, вновь будет экспоненциально затухать при удалении от границы. Пространственная зависимость величины  $P^{\text{NLS}}(\omega_3)$  определяется выражением

$$\begin{aligned} & \exp [i(k_{1x}^t + k_{2x}^t)x + i(k_{1y}^t + k_{2y}^t)y] \times \\ & \times \exp [i\omega c^{-1}(\varepsilon_1^T)^{1/2}(\cos \theta_1^T)z] \times \\ & \times \exp [-\omega c^{-1}(\varepsilon_2^T)^{1/2}(\sin^2 \theta_2^T - 1)^{1/2}z]. \end{aligned}$$

В показателе экспоненциальной функции комплексный множитель стоит теперь и перед координатой  $z$ .

Можно снова рассмотреть четыре возможности:

1.  $\sin \theta_T > 1$ ,  $\sin \theta_R < 1$ ;
2.  $\sin \theta_T < 1$ ,  $\sin \theta_R < 1$ ;
3.  $\sin \theta_T < 1$ ,  $\sin \theta_R > 1$ ;
4.  $\sin \theta_T > 1$ ,  $\sin \theta_R > 1$ .

Оценка интенсивности отраженной и прошедшей волн проводится совершенно так же, как в соответствующем варианте случая Б. Интенсивность прошедшей волны снова определяется однородной волной, поскольку неоднородная волна экспоненциально затухает. Для  $E^R$  и  $E^T$  можно снова использовать обобщенные формулы Френеля, где величины  $\sin \theta_S$  и  $\cos \theta_S$  теперь являются комплексными:

$$\cos \theta_S = i\omega c^{-1} \epsilon_2^{1/2} (\sin^2 \theta_2^T - 1)^{1/2} + \omega c^{-1} \epsilon_1^{1/2} \cos \theta_1^T.$$

В более подробных расчетах нет необходимости.

## § 6. Нелинейная плоскопараллельная пластина

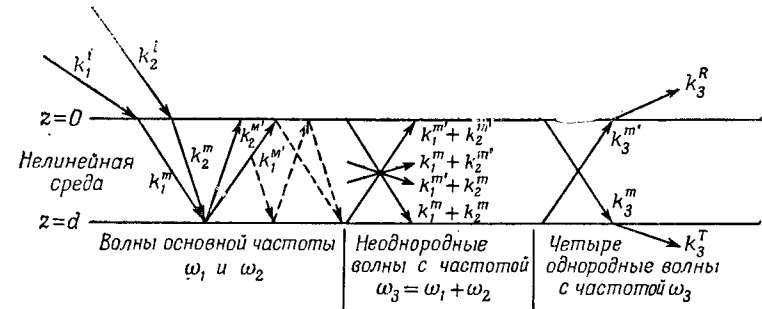
Рассмотрим бесконечно широкую пластину  $M$  из нелинейного диэлектрика, ограниченную плоскостями  $z = 0$  и  $z = d$  и помещенную между двумя линейными диэлектриками  $R$  и  $T$ . Пусть две волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  падают из среды  $R$ ,  $z < 0$ , как схематически изображено на фиг. 7. Они возбуждают в нелинейной среде две прямые волны ( $E_{1,M}$  и  $E_{2,M}$ ) и две обратные волны ( $E_{1,M'}$  и  $E_{2,M'}$ ). Эти волны, которые могут быть рассчитаны с помощью обычной линейной теории, возбуждают волну нелинейной поляризации с суммарной частотой  $\omega_3$ .

В общем случае этой волне нелинейной поляризации соответствуют четыре неоднородные волны

$$\begin{aligned} P^{NLS}(\omega_3) = & \chi \exp [i(k_{1,x} + k_{2,x})x + i(k_{1,y} + k_{2,y})y] \times \\ & \times [E_{1,M} E_{2,M} \exp [i(k_{1,z}^M + k_{2,z}^M)z] + E_{1,M} E_{2,M'} \times \\ & \times \exp [i(k_{1,z}^M - k_{2,z}^M)z] + E_{1,M'} E_{2,M} \times \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \times \exp [i(-k_{1,z}^M + k_{2,z}^M)z] + E_{1,M} E_{2,M'} \times \\ & \times \exp [-i(k_{1,z}^M + k_{2,z}^M)z] \}. \end{aligned} \quad (6.1)$$

Следует отметить, что приведенные неоднородные волны имеют одну и ту же зависимость от координат  $x$  и  $y$ . Граничные условия при  $z = 0$  и  $z = d$  выполняются для суммы четырех однородных волн с частотой  $\omega_3$ , имеющих



Фиг. 7. Волны в нелинейной плоскопараллельной пластине. Основные волны  $E_1^M$  и  $E_{1'}^M$  с частотой  $\omega_1$  и  $E_2^M$  и  $E_{2'}^M$  с частотой  $\omega_2$  возбуждают неоднородные волны с частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . В число четырех однородных волн на частоте  $\omega_3$  входят отраженная  $E^R$  и прошедшая  $E^T$  волны с суммарной частотой  $\omega_3$ .

одинаковую зависимость от  $x$  и  $y$ . Все эти волны, направления распространения которых лежат в одной плоскости с нормалью к границе пластины, также показаны на фиг. 7. Можно снова рассмотреть по отдельности случаи, когда вектор  $E(\omega_3)$  и нелинейная поляризация перпендикулярны и параллельны этой плоскости.

Заметим, что существующая в линейном случае симметрия волн, идущих из среды  $A$  в среду  $B$  и из среды  $B$  в среду  $A$ , в нелинейных средах отсутствует. Если свет падает на границу со стороны нелинейной среды, он всегда содержит однородную и неоднородную падающие волны, тогда как свет, падающий со стороны линейной среды, содержит только однородную волну.

Исследование нелинейной пластины представляет очевидный интерес для множества экспериментальных задач. Генерация гармоник обычно происходит в пластине из нелинейного вещества. Аналогичная ситуация

возникает при возбуждении волн гармоник внутри кристалла лазера или в интерферометре Фабри—Перо. Хотя мы подробно рассмотрим лишь волны с суммарной частотой, описанный метод можно использовать и для расчета волн гармоник более высокого порядка, волн с разностной частотой и т. д. Во всех этих случаях требуется исследовать только компоненты нелинейной поляризации [см. (6.1)] с соответствующими частотами. Однако данный здесь метод расчета применим лишь в предположении о малости амплитуд генерируемых гармоник. Амплитуды падающих волн с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  рассматриваются в пластине как фиксированные параметры, определяемые линейной теорией; нелинейные явления не приводят к сколь-нибудь заметному их ослаблению.

Нас интересуют в основном волны  $E_3^R$  и  $E_3^T$ , выходящая из противоположных сторон пластины. Чтобы не усложнять без необходимости алгебраические выкладки, будем рассматривать только одну неоднородную волну, соответствующую первому члену в правой части выражения (6.1). Такое приближение представляется достаточно корректным, если линейный коэффициент отражения диэлектрика мал,  $E_{1,M'} < E_{1,M}$ ,  $E_{2,M'} < E_{2,M}$ . Не представляет труда обобщить уравнения и на случай высоких коэффициентов отражения. Этим же методом может быть исследован случай, когда в среде  $R$  имеется падающая волна с частотой  $\omega_3$ . Постоянная распространения неоднородной волны опять равна  $\omega_3 c^{-1} \epsilon_S^{1/2}$ . Ниже мы опустим индекс 3, так как будем рассматривать лишь величины, относящиеся к суммарной частоте.

При сделанных предположениях граничные условия для случая перпендикулярной поляризации можно записать в виде

$$E_y(z=0) = E_R = E_M + E_{M'} + 4\pi P^{\text{NLS}} (\epsilon_S - \epsilon_M)^{-1}, \quad (6.2)$$

$$E_y(z=d) = E_T = E_M e^{i\varphi_M} + E_{M'} e^{-i\varphi_M} + 4\pi P^{\text{NLS}} (\epsilon_S - \epsilon_M)^{-1} e^{i\varphi_S}, \quad (6.3)$$

$$H_x(z=0) = -\epsilon_R^{1/2} \cos \theta_R E_R = \epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M (E_M - E_{M'}) + 4\pi \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S P^{\text{NLS}} (\epsilon_S - \epsilon_M)^{-1}, \quad (6.4)$$

$$H_x(z=d) = \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T E_T = \epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M [E_M e^{i\varphi_M} - E_{M'} e^{-i\varphi_M}] + 4\pi \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S P^{\text{NLS}} (\epsilon_S - \epsilon_M)^{-1} e^{i\varphi_S}, \quad (6.5)$$

где  $\varphi_S$  и  $\varphi_M$  — фазовые сдвиги соответственно для неоднородной и однородной волн:

$$\varphi_S = \epsilon_S^{1/2} \omega c^{-1} d \cos \theta_S; \quad \varphi_M = \epsilon_M^{1/2} \omega c^{-1} d \cos \theta_M. \quad (6.6)$$

Мы получили систему четырех линейных уравнений, которая может быть разрешена относительно четырех амплитуд и фаз.

Комплексные амплитуды отраженной и прошедшей волн с суммарной частотой определяются выражениями

$$E_1^R = 4\pi P^{\text{NLS}} D^{-1} [(\epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S - \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T) \times (\cos \varphi_M - \cos \varphi_S) (\epsilon_M - \epsilon_S)^{-1} + i\epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T (\epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1} (\epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M \sin \varphi_S - \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S \sin \varphi_M) (\epsilon_M - \epsilon_S)^{-1} + i(\epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M \sin \varphi_M - \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S \sin \varphi_S) (\epsilon_M - \epsilon_S)^{-1}], \quad (6.7)$$

$$E_1^T = 4\pi P^{\text{NLS}} D^{-1} [-(\epsilon_R^{1/2} \cos \theta_R + \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S) \times (\cos \varphi_M - \cos \varphi_S) (\epsilon_M - \epsilon_S)^{-1} - i\epsilon_R^{1/2} \cos \theta_R (\epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1} \times (\epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M \sin \varphi_S - \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S \sin \varphi_M) (\epsilon_M - \epsilon_S)^{-1} + i(\epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M \sin \varphi_M - \epsilon_S^{1/2} \cos \theta_S \sin \varphi_S) (\epsilon_M - \epsilon_S)^{-1}], \quad (6.8)$$

где

$$D = \cos \varphi_M (\epsilon_T^{1/2} \cos \theta_T + \epsilon_R^{1/2} \cos \theta_R) - i \sin \varphi_M [\epsilon_R^{1/2} \epsilon_T^{1/2} \cos \theta_R \cos \theta_T (\epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1} + \epsilon_M^{1/2} \cos \theta_M]. \quad (6.9)$$

Члены в числителях выражений (6.7) и (6.8) сгруппированы таким образом, что каждый из них остается конеч-

ным при  $\varepsilon_M \rightarrow \varepsilon_S$  (случай полного согласования). Для этого предельного случая получаем

$$E_{\perp}^R (\varepsilon_M = \varepsilon_S) = i2\pi P^{\text{NLS}} D^{-1} \{ \omega d c^{-1} [1 - \varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_T \times \\ \times (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1}] e^{i\varphi_M} + \sin \varphi_M (\varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_T + \\ + \varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M) (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-2} \}, \quad (6.10)$$

$$E_{\perp}^T (\varepsilon_M = \varepsilon_S) = i2\pi P^{\text{NLS}} D^{-1} e^{-i\varphi_M} \{ \sin \varphi_M (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1} \times \\ \times [1 - \varepsilon_R^{1/2} \cos \theta_R (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1}] e^{i\varphi_M} + \\ + \omega d c^{-1} [1 + \varepsilon_R^{1/2} \cos \theta_R (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1}] \}. \quad (6.11)$$

Как прошедшая, так и отраженная волны содержат члены, пропорциональные толщине нелинейного диэлектрика. В отраженной волне этот член обусловлен прямой нарастающей волной, отраженной от второй поверхности, где имеет место скачок диэлектрической проницаемости. При  $\varepsilon_T = \varepsilon_M$  скачок отсутствует и этот член исчезает. В этом случае амплитуда отраженной волны зависит от толщины слоя как  $\sin \varphi_M$ , а фаза определяется знаменателем  $D$  [см. (6.9)]. При отражении от полубесконечной среды амплитуда отраженной волны меняется в пределах от нуля до удвоенного значения, определяемого выражением (4.5). Это нетрудно понять, так как по мере возрастания толщины диэлектрика все новые слои диполей начинают играть активную роль и в результате интерференция приводит как к усилению, так и к ослаблению волны. Среднее значение амплитуды для бесконечной толщины составляет ровно половину амплитуды для оптимальной толщины.

Как и следовало ожидать, амплитуда прошедшей волны содержит член, пропорциональный толщине слоя; кроме того, в нее входит граничная волна от первой поверхности. При  $\varepsilon_R = \varepsilon_M$  эта волна, естественно, исчезает.

В предельном случае, когда толщина пластины сравнима с длиной волны, общие выражения (6.7) и (6.8) упрощаются

$$E_{\perp}^T \approx E_{\perp}^R \approx i4\pi P^{\text{NLS}} (\omega d c^{-1}) (\varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_T + \varepsilon_R^{1/2} \cos \theta_R)^{-1}. \quad (6.12)$$

Для тонкой пластины амплитуды волн, распространяющихся в прямом (прошедшая волна) и в обратном (отраженная волна) направлениях, оказываются равными. Интенсивности обеих волн пропорциональны квадрату толщины пластины, так как все атомы излучают когерентно. Можно сказать также, что волны гармоник, генерируемых на передней и задней поверхностях, гасят друг друга в результате интерференции, обусловленной скачком нелинейной части восприимчивости  $\chi(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$ . Этот эффект аналогичен интерференции в тонких линейных пленках, обусловленной скачком величины  $\varepsilon$ .

Если коэффициент отражения для основных волн велик, как, например, в интерферометре Фабри — Перо, то следует учесть и другое неоднородное решение в (6.1). Алгебраически это сводится к суммированию по индексу  $S$  в (6.7), (6.8) и в выражениях, описывающих предельные случаи.

Случай параллельной поляризации может быть рассмотрен точно таким же образом. Граничные условия имеют вид

$$E_x(z=0) = -E_R \cos \theta_R = (E_M - E_{M'}) \cos \theta_M - \\ - 4\pi P^{\text{NLS}} \sin \alpha \cos \theta_S (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} - 4\pi P^{\text{NLS}} \cos \alpha \sin \theta_S \varepsilon_M^{-1}, \quad (6.13)$$

$$E_z(z=d) = E_T \cos \theta_T = [E_M e^{i\varphi_M} - E_{M'} e^{-i\varphi_M}] \cos \theta_M - \\ - 4\pi P^{\text{NLS}} \sin \alpha \cos \theta_S (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} e^{i\varphi_S} - \\ - 4\pi P^{\text{NLS}} \cos \alpha \sin \theta_S \varepsilon_M^{-1} e^{i\varphi_S}, \quad (6.14)$$

$$H_y(z=0) = \varepsilon_R^{1/2} E_R = \varepsilon_M^{1/2} (E_M + E_{M'}) - \\ - 4\pi P^{\text{NLS}} \sin \alpha \varepsilon_S^{1/2} (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1}, \quad (6.15)$$

$$H_y(z=d) = \varepsilon_T^{1/2} E_T = \varepsilon_M^{1/2} [E_M e^{i\varphi_M} - E_{M'} e^{-i\varphi_M}] - \\ - 4\pi P^{\text{NLS}} \sin \alpha \varepsilon_S^{1/2} (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} e^{i\varphi_S}. \quad (6.16)$$

Для амплитуд отраженной и прошедшей волн получаем

$$E_{\parallel}^R = 4\pi P^{\text{NLS}} \sin \alpha D^{-1} [(\varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_S - \varepsilon_S^{1/2} \cos \theta_T) \times$$

$$\begin{aligned} & \times (\cos \varphi_M - \cos \varphi_S) (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} + i \left( \frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} \times \\ & \times (\varepsilon_S^2 \sin \varphi_M \cos \theta_M - \varepsilon_M^2 \cos \theta_S \sin \varphi_S) (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} + \\ & + i \left( \frac{\cos \theta_T}{\cos \theta_M} \right) (\varepsilon_S^{1/2} \sin \varphi_S \cos \theta_M - \varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_S \sin \varphi_M) \times \\ & \times (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} + 4\pi P^{\text{NLS}} \cos \alpha \varepsilon_M^{-1} D^{-1} \left[ \varepsilon_T^{1/2} \sin \theta_S (\cos \varphi_M - \right. \\ & \left. - \cos \varphi_S) - i \frac{\sin \theta_S}{\cos \theta_M} (\varepsilon_T^{1/2} \sin \varphi_S \cos \theta_M + \varepsilon_M^{1/2} \sin \varphi_M \cos \theta_T) \right], \end{aligned} \quad (6.17)$$

$$\begin{aligned} E_{\parallel}^T &= 4\pi P^{\text{NLS}} \sin \alpha D^{-1} e^{i\varphi_S} \left[ -(\varepsilon_R^{1/2} \cos \theta_S + \varepsilon_S^{1/2} \cos \theta_R) \times \right. \\ & \times (\cos \varphi_M - \cos \varphi_S) (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} + i \left( \frac{\varepsilon_R}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} \times \\ & \times (\varepsilon_S^{1/2} \sin \varphi_M \cos \theta_M - \varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_S \sin \varphi_S) (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} - \\ & \left. - \frac{i \cos \theta_R}{\cos \theta_M} (\varepsilon_S^{1/2} \sin \varphi_S \cos \theta_M - \varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_S \sin \varphi_M) \times \right. \\ & \times (\varepsilon_M - \varepsilon_S)^{-1} + 4\pi P^{\text{NLS}} \cos \alpha \varepsilon_M^{-1} D^{-1} e^{i\varphi_S} \left[ -\varepsilon_R^{1/2} \sin \theta_S \times \right. \\ & \times (\cos \varphi_M - \cos \varphi_S) - \frac{i \sin \theta_S}{\cos \theta_M} (\varepsilon_R^{1/2} \sin \varphi_S \cos \theta_M - \\ & \left. - \varepsilon_M^{1/2} \sin \varphi_M \cos \theta_R) \right], \end{aligned} \quad (6.18)$$

где

$$\begin{aligned} D &= \cos \varphi_M (\varepsilon_R^{1/2} \cos \theta_T + \varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_R) - i \sin \varphi_M \times \\ & \times (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1} [\varepsilon_M \cos \theta_R \cos \theta_T + (\varepsilon_R \varepsilon_T)^{1/2} \cos^2 \theta_M]. \end{aligned} \quad (6.19)$$

Числители в выражениях (6.17) и (6.18), как и раньше, сгруппированы в члены, которые остаются конечными при  $\varepsilon_M \rightarrow \varepsilon_S$ . Для случая точного согласования имеем:

$$E_{\parallel}^R (\varepsilon_S = \varepsilon_M) = i2\pi P^{\text{NLS}} D^{-1} \left\{ \omega dc^{-1} \sin \alpha \left[ \left( \frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} - \right. \right.$$

$$\begin{aligned} & - \left( \frac{\cos \theta_T}{\cos \theta_M} \right) \left. \right] e^{i\varphi_M} - \sin \varphi_M (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1} \left[ \left( \frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} + \right. \\ & \left. + \frac{\cos \theta_T}{\cos \theta_M} \right] \sin (2\theta_M + \alpha) \left. \right\}, \end{aligned} \quad (6.20)$$

$$\begin{aligned} E_{\parallel}^T (\varepsilon_S = \varepsilon_M) &= i2\pi P^{\text{NLS}} D^{-1} \left\{ \omega dc^{-1} \sin \alpha \left[ \left( \frac{\varepsilon_R}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} + \right. \right. \\ & \left. + \frac{\cos \theta_R}{\cos \theta_M} \right] - \sin \varphi_M (\varepsilon_M^{1/2} \cos \theta_M)^{-1} \left[ \left( \frac{\varepsilon_R}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} - \right. \\ & \left. - \frac{\cos \theta_R}{\cos \theta_M} \right] \sin (2\theta_M + \alpha) e^{i\varphi_M} \left. \right\}. \end{aligned} \quad (6.21)$$

В пределе, когда толщина пластины сравнима с длиной волны, соотношения (6.17) и (6.18) имеют вид

$$\begin{aligned} E_{\parallel}^R &= -i4\pi P^{\text{NLS}} \omega dc^{-1} \left[ \left( \frac{\varepsilon_T}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} \sin \theta_M \cos (\theta_S + \alpha) + \right. \\ & \left. + \cos \theta_T \sin (\theta_S + \alpha) \right] (\varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_R + \varepsilon_R^{1/2} \cos \theta_T)^{-1}, \end{aligned} \quad (6.22)$$

$$\begin{aligned} E_{\parallel}^T &= -i4\pi P^{\text{NLS}} \omega dc^{-1} \left[ \left( \frac{\varepsilon_R}{\varepsilon_M} \right)^{1/2} \sin \theta_M \cos (\theta_S + \alpha) - \right. \\ & \left. - \cos \theta_R \sin (\theta_S + \alpha) \right] (\varepsilon_R^{1/2} \cos \theta_T + \varepsilon_T^{1/2} \cos \theta_R)^{-1}. \end{aligned} \quad (6.23)$$

Обсуждение случая перпендикулярной поляризации, описываемого формулами (6.10) — (6.12), можно провести аналогично. При параллельной поляризации симметрия прямой и обратной волн нарушается.

Отметим также появление угла Брюстера в случае точного согласования,  $\varepsilon_M = \varepsilon_S$ . При  $2\theta_M + \alpha = \pi$  отсутствует обратная волна, генерируемая в среде. Если, кроме того, мы подадим отражение прямой волны на второй гармонике, выбрав  $\varepsilon_T = \varepsilon_M$ , то интенсивность отраженной волны будет равна нулю. В случае линейной плоскопараллельной пластины полное прохождение имеет место как через переднюю, так и через заднюю границы, если соблюдены условия Брюстера. В нелинейном же случае такая симметрия отсутствует.

Физический смысл угла Брюстера можно объяснить точно так же, как и при рассмотрении полубесконечной среды. Если направление вектора полной поляризации (линейной + нелинейной) в среде параллельно направлению распространения отраженного луча, его амплитуда обращается в нуль. Это можно проиллюстрировать, рассматривая очень тонкую пленку в вакууме. Если отраженная волна должна отсутствовать, то из условия непрерывности величин  $D$  и  $E$  можно определить полную поляризацию внутри среды,  $(\mathbf{D} - \mathbf{E})/4\pi$ .

Компоненты этой полной поляризации можно выразить через  $P^{\text{NLS}}$ :

$$P_{x,y} = P_{x,y}^{\text{NLS}}, \quad P_z = \frac{P_z^{\text{NLS}}}{\epsilon_M}. \quad (6.24)$$

Поскольку поляризация  $P^{\text{NLS}}$  составляет угол  $\theta_S + \alpha$  с нормалью к границе (нормаль направлена внутрь нелинейной среды  $M$ ), полная поляризация образует с нормалью угол  $\zeta$ , тангенс которого в  $\epsilon_M$  раз больше. Условие Брюстера записывается как  $\zeta + \theta_R = \pi$ , или

$$\text{tg } \theta_R = -\text{tg } \zeta = -\epsilon_M^{-1} \text{tg } (\theta_S + \alpha). \quad (6.25)$$

Для  $\epsilon_T = \epsilon_R = 1$  имеем  $(\epsilon_T/\epsilon_M)^{1/2} \sin \theta_M = \epsilon_M^{-1} \sin \theta_T$ . Следовательно, (6.25) эквивалентно условию, что амплитуда отраженной волны, определяемая формулой (6.22), обращается в нуль.

## § 7. Метод интегральных уравнений в задачах о распространении волн в нелинейных средах

С микроскопической точки зрения существует только поле падающего излучения в вакууме и микроскопические поля в вакууме, излучаемые атомными диполями. Эвальд и Осин показали, что для случая линейного диэлектрика рассмотрение запаздывающих полей атомных диполей приводит после интегрирования к тем же результатам, что и комбинация уравнений Максвелла с лоренцевой моделью квазистатических действующих полей. Точно так же результаты, полученные в работе [6] путем применения уравнений Максвелла (с учетом лорен-

цевой поправки) к нелинейному диэлектрику, можно обосновать, обобщая метод Эвальда и Осина. В последующем изложении мы будем придерживаться подхода и обозначений, используемых в книге Борна и Вольфа [9] при исследовании линейного случая. Как и в линейной задаче, отраженная и преломленная волны на границе нелинейной среды точно определяются с помощью метода интегральных уравнений.

Пусть полубесконечный диэлектрик в области  $z \leq 0$ , соприкасающийся с вакуумом, существующим в области  $z > 0$ , характеризуется плотностью поляризации  $\mathbf{P}(r, t)$ , содержащей как линейную, так и нелинейную части. Нелинейная поляризация определяется нелинейной поляризуемостью единичной ячейки (см. [6]). Пусть нелинейная поляризация  $i$ -й ячейки равна  $\mathcal{P}^{\text{NL}}(t, r_i)$ . Если мы имеем  $N$  ячеек в единице объема, то плотность нелинейной поляризации равна  $P^{\text{NL}}(r, t) = N\mathcal{P}^{\text{NL}}(t, r)$ . В самом общем случае при наличии падающего поля  $E^i(r, t)$  полное электрическое поле в какой-либо точке  $r$  среды может быть записано в виде

$$\mathbf{E}'(r, t) = \mathbf{E}^{(i)} + \int_{\sigma}^{\Sigma} \nabla \times \nabla \times \left[ \frac{\mathbf{P}(r', t - \frac{R}{c})}{R} \right] dV', \quad (7.1)$$

где  $\sigma$  — малая поверхность, окружающая точку  $r$ , а  $\Sigma$  — наружная поверхность диэлектрика. Рассмотрим компоненту поля (7.1) с частотой  $\omega$ , для которой  $P^{\text{NL}} \neq 0$ . В качестве пробных решений примем выражения

$$\begin{aligned} \mathbf{E}'(r, \omega) &= \mathbf{Q}^a(r) + \mathbf{Q}^b(r), \\ \mathbf{E}^i(r, \omega) &= \mathbf{Q}^i(r), \\ \mathbf{P}^{\text{NL}}(r, \omega) &= \mathbf{F}(r), \end{aligned} \quad (7.2)$$

где поля в правой части удовлетворяют уравнениям

$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathbf{Q}^a + \epsilon_s \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \mathbf{Q}^a &= 0, \\ \nabla^2 \mathbf{Q}^b + \epsilon \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \mathbf{Q}^b &= 0, \end{aligned}$$



$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathbf{Q}^i + \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \mathbf{Q}^i &= 0, & (7.3) \\ \nabla^2 \mathbf{F} + \varepsilon_s \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \mathbf{F} &= 0. \end{aligned}$$

Скорость волны источника в среде, характеризуемая величиной  $\varepsilon_s$ , может быть определена из решения линейной задачи для исходных волн с частотами, отличными от частоты  $\omega$ . Линейная диэлектрическая проницаемость на частоте  $\omega$  равна  $\varepsilon$ . Входящая в интеграл (7.1) амплитуда полной поляризации единицы объема равна

$$\mathbf{P}(r', \omega) = N\alpha [\mathbf{Q}^a + \mathbf{Q}^b] + \mathbf{F}, \quad (7.4)$$

где  $\alpha$  — поляризуемость единичной ячейки на частоте  $\omega$ ,  $N$  — число единичных ячеек в  $1 \text{ см}^3$ .

Подстановка выражений (7.2) и (7.4) в (7.1) приводит, с использованием методики Борна и Вольфа [9], к выражению

$$\begin{aligned} \mathbf{Q}^a(r) + \mathbf{Q}^b(r) &= \mathbf{Q}^i(r) + \frac{4}{3} \frac{\pi N\alpha(\varepsilon+2)}{\varepsilon-1} \mathbf{Q}^b(r) + \\ &+ \frac{4}{3} \pi \frac{\varepsilon_s+2}{\varepsilon_s-1} [N\alpha \mathbf{Q}^a(r) + \mathbf{F}(r)] + \\ &+ \frac{4\pi}{\varepsilon_s-1} \left(\frac{c}{\omega}\right)^2 \nabla [\nabla \cdot (\mathbf{F}(r) + N\alpha \mathbf{Q}^a(r))] + \\ &+ \left(\frac{c}{\omega}\right)^2 \nabla \times \nabla \times \int_{\Sigma} d\mathbf{S}' \cdot \left\{ [\nabla G(R)] \left[ \frac{N\alpha}{\varepsilon-1} \mathbf{Q}^b(r') + \right. \right. \\ &+ \left. \left. \frac{N\alpha \mathbf{Q}^a(r') + \mathbf{F}(r')}{\varepsilon_s-1} \right] - G(R) \nabla \left[ \frac{N\alpha}{\varepsilon-1} \mathbf{Q}^b(r') + \right. \right. \\ &+ \left. \left. \frac{N\alpha \mathbf{Q}^a(r') + \mathbf{F}(r')}{\varepsilon_s-1} \right] \right\}, \quad (7.5) \end{aligned}$$

где  $G(R) = (1/R) \exp[i(\omega/c)R]$ . Учет четвертого члена в правой части необходим, так как, вообще говоря, члены  $\nabla \cdot \mathbf{F}$  и  $\nabla \cdot \mathbf{Q}^a$  не равны нулю.

Уравнение (7.5) содержит компоненты, распространяющиеся со скоростями  $c$ ,  $c(\varepsilon)^{-1/2}$  и  $c(\varepsilon_s)^{-1/2}$ . Если уравнение должно выполняться для всех точек среды, то каждый из этих членов по отдельности должен быть ра-

вен нулю. Соответственно для компонент, распространяющихся со скоростью  $c$ , получаем

$$0 = \mathbf{Q}^i + \left(\frac{c}{\omega}\right)^2 \nabla \times \nabla \times \int_{\Sigma} d\mathbf{S}' \cdot \{ \}; \quad (7.6a)$$

для компонент, распространяющихся со скоростью  $c(\varepsilon)^{-1/2}$ , имеем

$$\mathbf{Q}^b = \frac{4\pi}{3} N\alpha \frac{\varepsilon+2}{\varepsilon-1} \mathbf{Q}^b; \quad (7.6b)$$

для компонент, распространяющихся со скоростью  $c(\varepsilon_s)^{-1/2}$ ,

$$\begin{aligned} \mathbf{Q}^a &= \frac{4\pi}{3} \frac{\varepsilon_s+2}{\varepsilon_s-1} [N\alpha \mathbf{Q}^a(r) + \mathbf{F}(r)] + \\ &+ \frac{4\pi}{\varepsilon_s-1} \left(\frac{c}{\omega}\right)^2 \nabla [\nabla \cdot (N\alpha \mathbf{Q}^a(r) + \mathbf{F}(r))] . \quad (7.6v) \end{aligned}$$

Выражение (7.6b) дает обычное решение однородного уравнения для линейной среды

$$\frac{4\pi}{3} N\alpha = \frac{\varepsilon-1}{\varepsilon+2}. \quad (7.7)$$

Выражение (7.6v) является решением неоднородного уравнения. Можно показать, что величина  $\mathbf{Q}^a$  эквивалентна действующему полю, связанному с неоднородной частью решений (2.5). В этом нетрудно убедиться, рассматривая два разных случая: 1) векторы  $\mathbf{F}$  и  $\mathbf{k}_s$  параллельны; 2) векторы  $\mathbf{F}$  и  $\mathbf{k}_s$  перпендикулярны. В первом случае (7.6v) приводится к виду

$$\mathbf{Q}^a = -\frac{8\pi}{9} \frac{\varepsilon+2}{\varepsilon} \mathbf{F}.$$

Неоднородная часть поляризации (7.4) может быть выражена через линейную и нелинейную поляризации и эффективный нелинейный источник (см. [6])

$$\mathbf{P}^L + \mathbf{P}^{NL} = N\alpha \mathbf{Q}^a + \mathbf{F} = (\varepsilon+2)(3\varepsilon)^{-1} \mathbf{F} = \mathbf{P}^{NLS} \varepsilon^{-1}. \quad (7.8)$$

Это выражение согласуется с макроскопическим определением величины  $\mathbf{P}^{NLS}$  для продольной компоненты в том случае, когда величина  $D$  равна нулю,

$$D = E + 4\pi \mathbf{P}^L + 4\pi \mathbf{P}^{NL} = \varepsilon E + 4\pi \mathbf{P}^{NLS} = 0, \quad (7.9)$$

Подобное же соответствие имеет место для поперечной компоненты.

Соотношение (7.6a) дает граничные условия для нелинейной среды. Амплитуда вектора  $\mathbf{Q}^b$  однозначно определяется величинами  $\mathbf{Q}^a$ ,  $\mathbf{F}$  и  $\mathbf{Q}^i$ . Таким образом, устанавливается соответствие между интегральными и дифференциальными уравнениями. Здесь также имеются однородные и неоднородные решения; амплитуда последних определяется граничными условиями.

Поле отраженной волны вне среды получается значительно более просто, поскольку дифференциальный оператор в этом случае можно вынести за знак интеграла

$$\mathbf{E}^R(r, t) = \nabla \times \nabla \times \int_0^R \frac{\mathbf{P}\left(r', t - \frac{R}{c}\right)}{R} dV'. \quad (7.10)$$

Величина  $P(r', t)$  известна из решений уравнений (7.4) и (7.6). Интегрирование уравнения (7.10) довольно трудно, но зато оно представляет собой прямой метод; он приводит к результатам, согласующимся с решениями более простых уравнений § 4.

## § 8. Обсуждение и выводы

Теоретические результаты, полученные в § 3 и 4, применимы ко многим экспериментальным ситуациям. В опытах по генерации гармоник обычно используется пластина из нелинейного кристалла. Результаты, полученные в § 6, позволяют определить интенсивность гармоники, излучаемой в прямом и обратном направлениях. При этом детально рассмотрены как общий случай произвольной толщины пластины и рассогласования фазовых скоростей, так и предельный случай полного согласования на всей толщине пластины. Выведенные здесь соотношения описывают и генерацию гармоник внутри кристалла лазера. Поскольку в последнем случае основной является стоячая волна, нужно учитывать не одну волну, а сумму неоднородных волн внутри кристалла. В общем случае фазовые скорости не согласованы. Интенсивность гармоники является периодической функцией длины ин-

терферометра Фабри — Перо, однако она не превышает интенсивность, получаемую в тонком слое толщиной  $l = \omega c^{-1}(\epsilon_S^{1/2} - \epsilon_M^{1/2})$ .

Сильная зависимость интенсивности гармоники от рассогласования фазовых скоростей, т. е. от величины  $\epsilon_M - \epsilon_S$  и от толщины  $d$  затрудняет точное количественное определение нелинейной восприимчивости с помощью выражений (6.7) или (6.8) и (6.17) или (6.18) и экспериментальные наблюдения генерации гармоники в пластине. Эту трудность можно обойти, если наблюдать гармонику, отраженную от одной границы нелинейной среды. Примем в соотношениях, приведенных в § 6,  $\epsilon_T = \epsilon_M$ , что соответствует согласованию показателей преломления нелинейной пластины и линейной среды. Для экспериментальной реализации условий, эквивалентных идеализированной задаче об отражении от полубесконечной среды, можно применить простой метод — сделать вторую поверхность диффузной и поглощающей или вырезать ее под углом к передней поверхности. Можно использовать также полностью отраженный луч с основной частотой, который генерирует гармоники на расстоянии, равном глубине проникновения, т. е. порядка нескольких длин волн, как показано § 5. В любом случае нужно еще совершенно точно знать распределение интенсивности падающего лазерного луча во времени и в поперечном сечении. После проведения абсолютной калибровки можно таким образом измерить нелинейную восприимчивость любого образца, если сравнить интенсивность отраженной от него гармоники с интенсивностью гармоники, генерируемой нелинейным стандартным образцом, через который проходит тот же луч лазера.

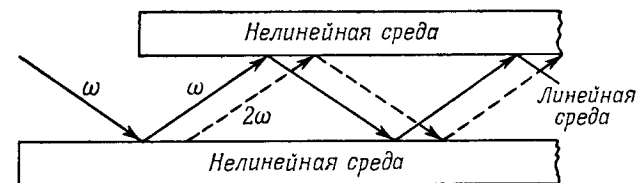
В кристаллах, обладающих центром инверсии, нелинейная поляризация на частоте второй гармоники, как следует из (4.18), может возникнуть только из-за электрического квадрупольного эффекта. Поэтому нелинейная поляризация и амплитуда волны второй гармоники, распространяющейся от границы, уменьшается для кристаллов этого типа в  $(ia/\lambda\eta)^{-1}$  раз по сравнению с кристаллами, у которых центр инверсии отсутствует, где  $a$  — характеристический атомный размер. Множитель  $\eta < 1$  учитывает то обстоятельство, что нечетная часть кристал-

лического потенциала меньше, чем четная часть. Эксперименты Терхьюна по генерации второй гармоники в кристаллах KDP и кальците показали, что в KDP величина  $\eta \sim 0,1$ . Все выводы настоящей работы в равной степени справедливы как для кристаллов, обладающих инверсионной симметрией, так и для кристаллов, не обладающих ею.

Можно предположить, что поверхностные слои кристалла, обладающего в целом центром инверсии, не имеют инверсионной симметрии, а генерация второй гармоники осуществляется пограничным атомным слоем. Для описания процесса генерации гармоник в поверхностных слоях толщиной  $a$  непосредственно приложимы соотношения (6.12), (6.22) и (6.23). Амплитуда отраженной волны гармоники, определяемая этим слоем, будет в  $\eta^{-1}$  раз меньше, чем амплитуда отраженной волны, возникающей в граничном слое толщиной  $\lambda$  из-за квадратурного эффекта. Поэтому можно полагать, что в процессе генерации гармоники поверхностные атомные слои играют несущественную роль. В принципе их влияние можно оценить, наблюдая прошедшую и отраженную волны гармоник в пластинах с разными толщиной и кристаллографической ориентацией.

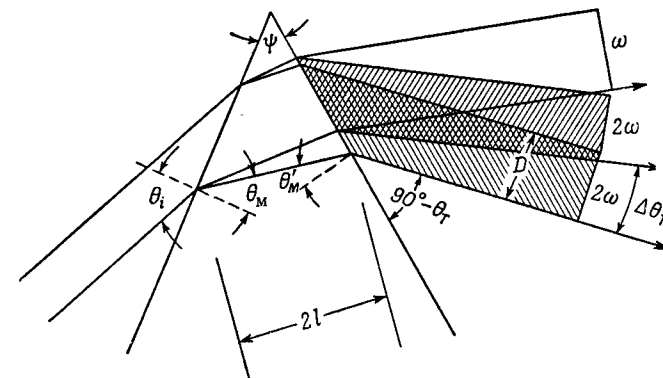
Факт генерации гармоник в граничном слое толщиной порядка  $\lambda$  даже в том случае, когда основная волна полностью отражается, наводит на мысль о новой схеме генератора оптических гармоник, показанной на фиг. 8. Основная волна с частотой  $\omega$  распространяется в плотной линейной среде (например, жидкости) между двумя стенками из нелинейного диэлектрика. При этом имеет место многократное полное внутреннее отражение. При каждом отражении генерируется вторая гармоника. Расстояние между нелинейными стенками и дисперсия линейной среды могут быть выбраны таким образом, что при каждом отражении вторая гармоника генерировалась с фазой, необходимой для нарастания интенсивности гармоник. Фазовые сдвиги, возникающие при полном отражении основной и второй гармоник, могут быть вычислены с помощью метода, изложенного в § 5. Проблема согласования фазовых скоростей теперь переносится на линейную изотропную среду. Если расстояние

между нелинейными стенками сделать очень малым, мы приходим к линейному оптическому волокну (световоду) с нелинейным покрытием. Очевидно, что методы, использованные для анализа нелинейного взаимодействия



Фиг. 8. Генерация гармоники при многократном полном отражении от нелинейного диэлектрика.

Изображенная схема может соответствовать жидкости, находящейся между двумя нелинейными кристаллами, или оптическому волокну с нелинейным покрытием.



Фиг. 9. Разделение основного луча, однородного и неоднородного лучей гармоники с помощью призмы.

Вследствие рассогласования фазовых скоростей и дифракции лучков конечного диаметра мощность гармоники в разделенных лучах ограничена величиной которая равна или меньше мощности, получаемой при использовании плоскопараллельного слоя.

волн в свободном пространстве, могут быть применены и при исследовании распространения основной волны и волны гармоники в оптических волноводах [10].

До сих пор мы ограничивались плоскими волнами и плоскими бесконечными границами. Можно обобщить расчеты на случай пучков конечного диаметра  $d$ , призм и

даже изогнутых границ. При обобщении понятий однородной и неоднородной волн в нелинейной среде на пучки конечного диаметра следует соблюдать известную осторожность. Эти пучки разделяются призмой, как схематически показано на фиг. 9. Неоднородный луч выходит из призмы в направлении, промежуточном между направлениями основного луча и однородного луча гармоники. Разумеется, не следует думать, что таким образом можно устранить взаимное гашение однородной и неоднородной волн гармоники и что в разделенных лучах можно получить большую интенсивность гармоники. Амплитуда каждого луча в отдельности пропорциональна величине  $(\epsilon_M - \epsilon_S)^{-1}$  и становится весьма большой, когда достигается полное согласование фазовых скоростей. Однако при этом угловая дисперсия призмы уменьшается. Если угловая дисперсия призмы меньше дифракционного угла, определяемого конечным диаметром пучка, то пучки не будут разделены.

Используя обозначения § 6 и фиг. 9, выразим угол отклонения однородного луча через угол падения  $\theta_i$  и угол при вершине призмы  $\psi$ :

$$\sin \theta_T = \sin \theta_i \sin \psi \operatorname{ctg} \theta_M - \cos \psi \sin \theta_i, \quad (8.1)$$

где

$$\epsilon_M^{1/2} \sin \theta_M = \sin \theta_i. \quad (8.2)$$

Дифференцируя (8.1) и (8.2), приходим к выражению для угла между однородным и неоднородным лучами, выраженного через малую величину рассогласования фазовых скоростей

$$\cos \theta_T \Delta \theta_T = \frac{\sin \theta_i \sin \psi (\epsilon_S - \epsilon_M)}{\epsilon_M \sin 2\theta_M}. \quad (8.3)$$

Для разрешения лучей на выходе призмы должно выполняться условие

$$\Delta \theta_T > \frac{\lambda}{D}, \quad (8.4)$$

где  $D$  — диаметр пучка на выходе. Минимальная длина  $l$ , которую должен пройти в призме центр пучка диа-

метром  $D$ , равна

$$l \geq \frac{D \sin \psi}{(2 \cos \theta_M \cos \theta_T)}. \quad (8.5)$$

Комбинируя соотношения (8.3) — (8.5), получаем

$$l > \frac{\epsilon_M^{1/2} \lambda}{\epsilon_S - \epsilon_M}. \quad (8.6)$$

Итак, для того чтобы однородный и неоднородный лучи разделились, луч должен пройти в нелинейной призме в среднем по меньшей мере «когерентную длину». Этого следовало ожидать из энергетических соображений.

На когерентной длине нелинейная среда производит максимальную работу, и мощность гармоники достигает максимума. Эта мощность содержится либо в неразделенном луче, прошедшем сквозь плоскопараллельную пластину, либо в разделенных пучках, прошедших через призму. С таким же положением мы сталкиваемся при попытке разделить однородную и неоднородную волны в фокусе хроматической линзы.

Итак, включение нелинейных материальных уравнений в систему уравнений Максвелла позволило решить ряд простых граничных задач. Выяснение закономерностей отражения и преломления света на поверхностях нелинейного диэлектрика позволяет полностью проанализировать процессы генерации световых гармоник и смещения световых волн в ограниченной нелинейной среде. Такой анализ весьма важен для понимания особенностей поведения оптических приборов и систем при очень высоких уровнях плотности мощности света, достижимых в лучах лазеров.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Franken P., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 7, 118 (1961).
2. Bass M., Franken P. A., Hill A. E., Peters C. W., Weinreich G., Phys. Rev. Lett., 8, 18 (1962).
3. Giordmaine J. A., Phys. Rev. Lett., 8, 19 (1962).

4. Maker P. D., Terhune R. W., Nisenoff M., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., 8, 21 (1962).
5. Terhune R. W., Maker P. D., Savage C. M., Phys. Rev. Lett., 8, 404 (1962).
6. Armstrong J. A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S., Phys. Rev., 127, 1918 (1962).
7. Heronius Alexandrinus, *Катоптика*. (Имеется перевод на латинский и немецкий языки, Лейпциг, 1899.)
8. Whittaker E. T., A History of the Theories of the Aether and Electricity, vol. 1, London, 1952.
9. Born M., Wolf E., Principles of Optics, London, 1959, Ch. I, II.
10. Snitzer E., в книге Advances in Quantum Electronics, ed. J. R. Singer, New York, 1961, p. 348.

### КВАНТОВОМЕХАНИЧЕСКОЕ СРАВНЕНИЕ НЕЛИНЕЙНЫХ ВОСПРИИМЧИВОСТЕЙ ПАРАМЕТРИЧЕСКИХ СРЕД, ЛАЗЕРОВ И КОМБИНАЦИОННЫХ ЛАЗЕРОВ

*Н. Бломберген, И. Шен*

N. Bloembergen\*, Y. R. Shen\*, Phys. Rev., 133, A37 (1964).

С помощью метода матрицы плотности описывается стационарный отклик нелинейной среды на несколько одновременно приложенных монохроматических электромагнитных полей. Разложение в ряд Фурье по степеням амплитуд приложенных полей особенно удобно для описания параметрического отклика в спектральных областях, в которых поглощение мало. По мере приближения к резонансам материальной системы общий формализм позволяет выявить связь между параметрическими процессами и одно- и многофотонными поглощательными и излучательными процессами. Обобщено проведенное ранее рассмотрение двух- и трехуровневых систем. Обсуждается также реакция произвольной нелинейной среды на электромагнитные поля.

#### § 1. Введение

В идеальной среде без потерь имеют место только параметрические процессы, так как зависимость вероятности переходов между энергетическими уровнями материальной системы от частоты фотонов имеет особенности типа  $\delta$ -функции и суммарная энергия фотонов остается постоянной. Нелинейные процессы рассеяния с участием трех или большего числа фотонов были рассмотрены Блэтоном [1] и Гуттингером [2]. Соответствующая нелинейная часть поляризации, обусловленная интерференцией всех процессов рассеяния такого типа на атомах кристаллической решетки, была рассчитана Армстронгом и др. [3] для случая среды без потерь.

Если обобщить эту теорию, учтя эффекты затухания, то оказывается, что параметрические процессы переплетаются с процессами, при которых поглощается или излучается один или большее число фотонов. Так как про-

\* Division of Engineering and Applied Physics, Harvard University, Cambridge, Massachusetts.

цессы затухания являются статистическими по своей природе и обусловлены взаимодействием со случайными фотонными и фононными полями, относительно которых мы располагаем далеко не полной информацией, то вполне уместно воспользоваться методом матрицы плотности. Карплюс и Швингер [4] применили его для описания эффекта насыщения в радиоспектроскопии. Этот эффект можно рассматривать как разновидность нелинейного процесса, при котором происходит последовательное поглощение и излучение фотонов одной частоты.

Метод матрицы плотности в дальнейшем усиленно развивался, в особенности при изучении ядерной магнитной релаксации [5—10]. Мы ограничимся рассмотрением разбавленных систем, в которых энергия взаимодействия между частицами значительно меньше расстояний между энергетическими уровнями, а также гораздо меньше разности между этими расстояниями для одной частицы. Случай эквидистантных уровней рассматриваться не будет. Эти предположения обычно выполняются в оптической области спектра, а иногда и в СВЧ области для разбавленных парамагнитных материалов. Ширина области, в которой гамильтониан случайных взаимодействий имеет постоянную спектральную плотность, обычно превышает ширину линий отдельных переходов. Эти переходы связаны с излучательными и безизлучательными процессами, при которых происходит поглощение или излучение фотонов и (или) фононов. Взаимодействие со случайными (тепловыми) полями излучения и колебаниями решетки включает эффект спонтанной эмиссии. Если воспользоваться терминологией теории магнитной релаксации, то рассматриваемый случай относится к модели «быстрого движения в изотропной среде». В этом случае влияние гамильтониана случайных взаимодействий на движение матрицы плотности описывается феноменологическими параметрами затухания.

$$\left(\frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t}\right)_{\text{случ}} = \sum_n R_{aann} \rho_{nn} = \sum_n \omega_{an} \rho_{nn} - \sum_n \omega_{na} \rho_{aa}, \quad (1.1)$$

$$\left(\frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t}\right)_{\text{случ}} = -R_{abab} \rho_{ab} = -\Gamma_{ab} \rho_{ab}. \quad (1.2)$$

Имеется  $\mathcal{M} - 1$  времен продольной релаксации, так как  $\mathcal{M}$  диагональных элементов релаксируют комбинированно. Обратные им величины равны собственным значениям матрицы  $\omega_{nn}$ . Каждый недиагональный элемент затухает с характеристическим временем поперечной релаксации  $\Gamma_{ab}^{-1}$ , которое имеет в общем случае как адиабатическую, так и неадиабатическую части. Последняя обусловлена конечным временем жизни, связанным с вероятностями переходов  $\omega_{an}$ ,  $\omega_{bn}$ . В том случае, когда имеется только два уровня,  $\Gamma_{\text{неадиаб}} = 1/2 T_1 = \omega_{ab} + \omega_{ba}$ . Адиабатическая часть обусловлена случайной модуляцией расщепления  $h\nu_{ba}$  за счет диагональных элементов гамильтониана случайных взаимодействий, что может быть вызвано, например, колебаниями решетки. В частном случае, когда единственное случайное возмущение неадиабатично и вызвано спонтанным излучением фотонов с уровней  $a$  и  $b$  на другие ниже расположенные уровни, релаксационные члены можно выразить через антикоммулятор

$$\left(\frac{\partial \rho}{\partial t}\right)_{\text{затух}} = -(\Gamma \rho + \rho \Gamma), \quad (1.3)$$

где  $\Gamma$  — диагональная матрица. В области магнитного резонанса теория релаксации была разработана для случая, когда взаимодействие между индивидуальными спинами может сильно влиять на релаксационное поведение (см., например, [9]). Если же не учитывать взаимодействие между отдельными атомами или ионами, то форма релаксационных членов не изменяется и при воздействии периодических полей. (Правда, строго говоря, имеется небольшое изменение, так как в приближении релаксации за счет быстрого движения система релаксирует к термодинамическому равновесному состоянию, соответствующему мгновенному значению приложенных полей.) Однако предположение о том, что релаксационные члены всегда описываются выражениями вида (1.1) и (1.2), является очень хорошим приближением для физических условий, встречающихся в лазерах и в нелинейных оптических приборах. Неоднородное уширение, уширение оптических линий механическими напряжениями и т. д. всегда можно учесть, интегрируя конечные ре-

зультаты, полученные в настоящей работе, по распределению резонансных частот атомной системы.

Полный гамильтониан состоит из трех слагаемых:  $\mathcal{H}_A$ ,  $\mathcal{H}_{\text{ког}}$  и  $\mathcal{H}_{\text{случ}}$ . Член  $\mathcal{H}_A$  определяет невозмущенные энергетические уровни атомной системы,  $\mathcal{H}_{\text{ког}}$  — взаимодействие этой системы с одним или с большим числом приложенных монохроматических полей, а  $\mathcal{H}_{\text{случ}}$  представляет собой гамильтониан случайных взаимодействий, который включает не только уже обсуждавшиеся фотонные и фононные релаксационные процессы, но и приложенные случайные поля накачки. Если, например, лазерный кристалл освещается импульсной лампой, то на него действуют случайные поля, характеризующиеся различными температурами в зависимости от характера освещения. В этом случае вероятности перехода под действием случайных полей удовлетворяют следующим соотношениям:

$$\omega_{ab} = \sum_{\Omega} \omega_{ab}^{\Omega},$$

$$\omega_{ba} = \sum_{\Omega} \omega_{ba}^{\Omega},$$

где

$$\omega_{ba}^{\Omega} = \omega_{ab}^{\Omega} e^{-\hbar\nu_{ba}/kT^{\Omega}}.$$

Таким образом, получаем следующее уравнение движения для матрицы плотности:

$$i\hbar \dot{\rho} = [\mathcal{H}_A, \rho] + [\mathcal{H}_{\text{ког}}, \rho] + i\hbar \left( \frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{\text{случ}}, \quad (1.4)$$

где последнее слагаемое определяется соотношениями (1.1) и (1.2). Исходя из этого уравнения, различные авторы обсуждали отклик материальной системы на два приложенных одновременно периодических поля. Особое внимание уделялось двух- и трехуровневым мазерным системам. Джаван, Винтер и Ятсив [12—14] подчеркивают важность двухквантовых комбинационных процессов, которые могут происходить в таких системах. Андерсон [15] подробно описал основной параметрический процесс в трехуровневой системе. Клогстон [16] получил формулу, описывающую все эти процессы. Хотя он рассматривал в основном трехуровневый мазер, он не опустил, как утверждает Файн [17], параметрический член. Файн так-

же использовал метод матрицы плотности для рассмотрения действия мазерных генераторов [18]. Каствлер [19] и его сотрудники [20, 21], а также Уилкоккс и Лэмб [22, 23] широко использовали этот формализм для описания одновременного действия радиочастотных и оптических полей. В случае двухуровневой системы формализм матрицы плотности эквивалентен классическим уравнениям Блоха для магнитного резонанса [24]. Генерация гармоник при ферромагнитном резонансе теоретически и экспериментально исследовалась Эйрсом, Вартаняном и Мелхором [25].

Во всех этих работах основное внимание уделяется различным сторонам одной и той же общей задачи — определения стационарного отклика атомной системы на одновременное воздействие нескольких периодических возмущений. Обычно рассматриваются такие случаи, когда частота возмущения близка к резонансной частоте системы. В настоящей работе особое внимание уделяется параметрическому случаю, когда все частоты далеки от резонансных частот системы. Общая процедура расчета описана в § 2. Применяя этот расчет, можно получить все известные результаты, если в каждой задаче воспользоваться соответствующими приближениями. Нелинейный стационарный отклик двухуровневой системы рассмотрен в § 3, где обсуждаются как параметрические, так и комбинационные процессы. В § 4 рассмотрена известная модель трехуровневой системы, на которую действуют три монохроматических поля; обобщены результаты Клогстона [16] и Джавана<sup>1)</sup>. В § 5 описана реакция нелинейной среды на электромагнитные поля (это общее определение охватывает мазерные, индуцированные комбинационные и параметрические эффекты).

## § 2. Общий расчет нелинейных проводимостей и восприимчивостей

Стационарное решение для матрицы плотности, представленной в виде ряда по степеням когерентных периодических возмущений, можно найти из следующей после-

<sup>1)</sup> Основные результаты, полученные в § 4, были доложены на Парижской конференции по квантовой радиофизике; см. [20].

довательности уравнений:

$$\begin{aligned} i\hbar\dot{\rho}^{(0)} &= [\mathcal{H}_A, \rho^{(0)}] + i\hbar \frac{\partial \rho_{\text{затух}}^{(0)}}{\partial t}, \\ i\hbar\dot{\rho}^{(1)} &= [\mathcal{H}_A, \rho^{(1)}] + i\hbar \frac{\partial \rho_{\text{затух}}^{(1)}}{\partial t} + [\mathcal{H}_{\text{кор}}, \rho^{(0)}], \quad (2.1) \\ i\hbar\dot{\rho}^{(n)} &= [\mathcal{H}_A, \rho^{(n)}] + i\hbar \frac{\partial \rho_{\text{затух}}^{(n)}}{\partial t} + [\mathcal{H}_{\text{кор}}, \rho^{(n-1)}]. \end{aligned}$$

Первое уравнение описывает матрицу плотности при термодинамическом равновесии. Линейный отклик системы определяется вторым уравнением:  $\rho^{(1)}$  зависит от тех же частот, что и  $\mathcal{H}_{\text{кор}}$ . Во втором приближении стационарный отклик  $\rho^{(2)}$  содержит члены с суммарной, разностной и двойной частотами, а также не зависящие от времени члены. Последние описывают начальную стадию процесса насыщения и обусловлены биениями между компонентами  $\mathcal{H}_{\text{кор}}$  и  $\rho^{(1)}$  с положительными и отрицательными частотами. Подстановка  $\rho^{(2)}$  в уравнение для  $\rho^{(3)}$  дает фурье-компоненты следующего приближения и т. д. Отметим, что в стационарном случае дифференцирование в левых частях уравнений сводится к умножению на  $-i\Sigma(\pm n_i\omega_i)$ , где  $n_i$  — целое число,  $(+\omega_i)$ -компонента зависит от времени как  $\exp(-i\omega_i t)$ , а  $(-\omega_i)$ -компонента — как  $\exp(+i\omega_i t)$ . Таким образом, каждый последующий шаг соответствует очень простой алгебраической операции, связывающей фурье-компоненты данного приближения с компонентами предыдущего приближения. Прайс [27] (см. также [28]) использовал временной подход и рассматривал общий нелинейный отклик как результат интегрирования функции отклика на единичное ступенчатое возмущение, однако стационарный отклик на периодические силы легче определить с помощью спектрального подхода.

Хотя этот формализм применим не только к случаю электромагнитных возмущений, но пригоден, например, и для описания отклика системы на периодическое механическое внешнее воздействие, использованная в дальнейшем форма  $\mathcal{H}_{\text{кор}}$  соответствует полуклассическому

нерелятивистскому взаимодействию связанного электрона, имеющего заряд  $-e$ , с конечным числом электромагнитных типов колебаний:

$$\mathcal{H}_{\text{кор}} = \frac{e}{2mc} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}) + \frac{e\hbar}{mc} \mathbf{s} \cdot \nabla \times \mathbf{A} + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A} \cdot \mathbf{A}, \quad (2.2)$$

где векторный потенциал электромагнитной волны равен

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \sum_{m=1}^M [\mathbf{A}_m(\mathbf{r}) e^{-i\omega_m t} + \mathbf{A}_m^*(\mathbf{r}) e^{i\omega_m t}], \quad (2.3)$$

$$\mathbf{A}_m(\mathbf{r}) = \frac{c}{i\omega_m} \mathbf{E}(\mathbf{k}_m, \omega_m) e^{i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r}}. \quad (2.4)$$

Оператор плотности тока имеет вид [29]

$$\begin{aligned} \mathbf{j}(\mathbf{r}_0) &= -\frac{e}{2m} \left\{ \left[ \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \left( \mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) + \right. \right. \\ &+ \left. \left. \left( \mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \right] + 2i[\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) (\mathbf{p} \times \mathbf{s}) - (\mathbf{p} \times \mathbf{s}) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)] \right\}, \end{aligned} \quad (2.5)$$

где

$$\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) = |\mathbf{r}_0\rangle \langle \mathbf{r}_0|.$$

Фурье-компоненты плотности тока в пространстве волновых чисел записываются следующим образом:

$$\mathbf{j}(\mathbf{k}) = \int d\mathbf{r} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \mathbf{j}(\mathbf{r}), \quad (2.6)$$

их матричные элементы равны

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_{n'n} &= \langle n' | \mathbf{j}(\mathbf{k}) | n \rangle = \\ &= -\frac{e}{2m} \langle n' | e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \left( \mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) + \left( \mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right) e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} - \\ &\quad - 2i\hbar \mathbf{s} \times \mathbf{k} e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} | n \rangle. \end{aligned} \quad (2.7)$$

Среднее значение плотности тока как функции времени определяется соотношением

$$\langle \mathbf{j}(\mathbf{k}, t) \rangle = \text{Sp}[\mathbf{j}(\mathbf{k}, t) \rho(t)] = \sum_n \sum_{n'} \mathbf{j}_{nn'}(\mathbf{k}, t) \rho_{n'n}(t). \quad (2.8)$$



Это среднее значение можно снова разложить на фурье-компоненты последовательных высших приближений [30]. В  $n$ -м приближении можно написать

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{j}^{(n)}(\mathbf{k}, t) \rangle = & \sum_n \sum_{n'} (\mathbf{j}_0(\mathbf{k}))_{nn'} \rho_{n'n}^{(n)}(t) + \\ & + \sum_n \sum_{n'} (\mathbf{j}_1(\mathbf{k}, t))_{nn'} \rho_{n'n}^{(n-1)}(t), \end{aligned} \quad (2.9)$$

где  $\mathbf{j}_1(\mathbf{k})$  — линейная по полю часть оператора плотности тока.

Тензор линейной проводимости определяется как отношение полученного в первом приближении среднего значения плотности тока с частотой  $\omega$  и волновым вектором  $\mathbf{k}$  к амплитуде электрического поля с теми же частотой и волновым вектором:

$$\langle \mathbf{j}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) \rangle = \sigma(\omega, \mathbf{k}) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega). \quad (2.10)$$

Аналогично определяются тензоры проводимости высшего порядка

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{j}^{(n)}(\mathbf{k} = \sum_{i=1}^n \mathbf{k}_i, \omega = \sum_{i=1}^n \omega_i) \rangle = \\ = \sigma^{\text{NL}}(\mathbf{k}_1 \dots \mathbf{k}_n, \omega_1 \dots \omega_n) \mathbf{E}(\mathbf{k}_1, \omega_1) \dots \mathbf{E}(\mathbf{k}_n, \omega_n). \end{aligned} \quad (2.11)$$

Заметим, что какая-либо частота  $\pm \omega_n$  может повторяться несколько раз. Поэтому, например, плотность тока в третьем приближении будет содержать компоненту с частотой  $\omega_1$ , пропорциональную  $\mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}^*(-\omega_1) \mathbf{E}(\omega_1)$ , которую можно рассматривать как поправку к  $\mathbf{j}^{(1)}(\omega_1)$ , учитывающую насыщение.

Средние значения и линейной и нелинейной частей плотности тока можно считать источниками и подставить в уравнения Максвелла

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{e} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{b}}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{b} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \langle \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \rangle, \end{aligned} \quad (2.12)$$

где  $\mathbf{e}$  и  $\mathbf{b}$  — поля в вакууме.

Подробное рассмотрение влияния нелинейных источников на распространение электромагнитных волн в нелинейной среде было проведено в другой работе [3]. Здесь дается только общее описание квантовомеханического расчета этих источников.

Во многих практических случаях, например для решетки с небольшой примесью ионов переходных металлов, интересно выделить в более явной форме различные мультипольные моменты, содержащиеся в матричных элементах (2.7). Фьютак [31] показал в общем виде, что возмущение  $\mathcal{H}_{\text{ког}}$ , описываемое выражением (2.2), можно канонически преобразовать к эквивалентному виду<sup>1)</sup>

$$\mathcal{H}'_{\text{ког}} = -\mathfrak{P} \cdot \mathbf{E} - \mathfrak{M} \cdot \mathbf{H} - \mathbf{Q} : \nabla \mathbf{E} + \dots \quad (2.13)$$

С помощью этого эквивалентного гамильтониана получаются такие же средние значения всех физических величин, как и с помощью первоначального гамильтониана. Среднее значение плотности тока теперь определяется следующим выражением:

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{j}(\mathbf{r}) \rangle = N \left[ \frac{\partial \langle \mathfrak{P} \rangle}{\partial t} + c \nabla \times \langle \mathfrak{M} \rangle - \right. \\ \left. - \frac{\partial}{\partial t} \nabla \cdot \langle \mathbf{Q} \rangle + \dots \right] \end{aligned} \quad (2.14)$$

где  $N$  — число атомных систем в единице объема.

Разложения (2.13) и (2.14) по мультипольным моментам не однозначны и зависят от выбора начала координат. Этот выбор часто можно сделать, исходя из физических соображений; например, начало можно поместить в центр примесного парамагнитного иона в решетке. Если удерживать только дипольные матричные элементы, то дипольные источники можно включить в уравнения Максвелла обычным образом:

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} - \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t}, \quad (2.15)$$

<sup>1)</sup> Выражение (2.13) не вполне корректно описывает установление диамагнитной энергии. Правильный результат получается при использовании члена с  $A^2$  в (2.2). Это расхождение не имеет, однако, значения для рассматриваемых здесь нелинейностей.

$$\nabla \times \mathbf{H} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}, \quad (2.16)$$

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = N \text{Sp}(\mathfrak{P}\rho(\mathbf{r}, t)), \quad (2.17)$$

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}, t) = N \text{Sp}(\mathfrak{M}\rho(\mathbf{r}, t)). \quad (2.18)$$

Поправки для случая оптически плотной среды обсуждались в другой работе [3].

Преимущество трансформированного гамильтониана (2.13) заключается в том, что некоммутирующие операторы  $\mathbf{p}$  и  $\mathbf{r}$  не фигурируют одновременно. При расчете линейной электрической восприимчивости с помощью гамильтониана, содержащего операторы момента, необходима большая тщательность [32, 33]. При переходе к нелинейным членам высших порядков среднее значение электрического дипольного момента  $\text{Sp}(\mathfrak{P}\rho)$  можно сразу оценить с помощью гамильтониана (2.13). При расчете по теории возмущений получается ряд по степеням амплитуд электрических и магнитных полей.

В системе, не обладающей центром инверсии, нелинейным членом низшего порядка является дипольный момент, пропорциональный квадратичной функции амплитуд электрического поля. Рассмотрим фурье-компоненту дипольного момента с суммарной частотой  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ , индуцированную электрическим полем с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Гамильтониан в данном случае равен

$$\begin{aligned} \mathcal{H}'_{\text{кор}} = & -\mathfrak{P} \cdot \frac{1}{2} (\mathbf{E}_1^* e^{i\omega_1 t} + \mathbf{E}_1 e^{-i\omega_1 t}) - \\ & -\mathfrak{P} \cdot \frac{1}{2} (\mathbf{E}_2^* e^{i\omega_2 t} + \mathbf{E}_2 e^{-i\omega_2 t}). \end{aligned}$$

Предположим, что оператор электрического дипольного момента имеет только недиагональные матричные элементы (случай, когда существенны диагональные элементы, будет рассмотрен в § 3). Типичный недиагональный элемент матрицы плотности удовлетворяет уравнению

$$i\hbar \dot{\rho}_{nn'} = (+\omega_{nn'} - i\Gamma_{nn'}) \rho_{nn'} + \sum_{n''} (\mathcal{H}_{nn''} \rho_{n''n'} - \rho_{nn'} \mathcal{H}_{n''n'}). \quad (2.19)$$

В первом (т. е. линейном) приближении для этих недиагональных элементов имеем

$$\{\rho_{n''n'}^{(1)}\}^{(\omega_1)} = \frac{\frac{1}{2} \mathfrak{P}_{n''n'} \cdot \mathbf{E}_1}{\omega_1 - \omega_{n''n'} + i\Gamma_{n''n'}} (+\rho_{n''n'}^{(0)} - \rho_{n'n''}^{(0)}), \quad (2.20)$$

и аналогичные выражения для компонент с частотами  $-\omega_1$  и  $\pm\omega_2$ .

Во втором приближении получаем

$$\begin{aligned} \{\rho_{nn'}^{(2)}\}^{(\omega_1+\omega_2)} = & \sum_{n'' \neq n, n'} \frac{\frac{1}{4} \hbar^{-2} (\mathfrak{P}_{nn''} \cdot \mathbf{E}_2) (\mathfrak{P}_{n''n'} \cdot \mathbf{E}_1)}{\omega_1 + \omega_2 - \omega_{nn''} + i\Gamma_{nn''}} \times \\ & \times \left[ \frac{\rho_{n'n''}^{(0)} - \rho_{n''n'}^{(0)}}{\omega_1 - \omega_{n'n''} + i\Gamma_{n'n''}} + \frac{\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{n''n''}^{(0)}}{\omega_2 - \omega_{nn''} + i\Gamma_{nn''}} \right] + \\ & + \sum_{n'' \neq n, n'} \frac{\frac{1}{4} \hbar^{-2} (\mathfrak{P}_{nn''} \cdot \mathbf{E}_1) (\mathfrak{P}_{n''n'} \cdot \mathbf{E}_2)}{\omega_1 + \omega_2 - \omega_{nn''} + i\Gamma_{nn''}} \times \\ & \times \left[ \frac{\rho_{n'n''}^{(0)} - \rho_{n''n'}^{(0)}}{\omega_2 - \omega_{n'n''} + i\Gamma_{n'n''}} + \frac{\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{n''n''}^{(0)}}{\omega_1 - \omega_{nn''} + i\Gamma_{nn''}} \right]. \quad (2.21) \end{aligned}$$

Можно рассчитать среднее значение дипольного момента на частоте  $\omega_3$ , пропорциональное произведению амплитуд полей с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , и найти тензор нелинейной поляризации третьего ранга. Его компоненты  $\beta_{ijk}$  определяются следующим соотношением:

$$\begin{aligned} \langle \mathcal{P}_i^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \rangle = & \frac{1}{4} \beta_{ijk} \{E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \\ & + E_k(\omega_2) E_j(\omega_1)\} = \sum_n \sum_{n'} (\mathcal{P}_i)_{nn'} \{\rho_{n'n}^{(2)}\}^{(\omega_1+\omega_2)}. \quad (2.22) \end{aligned}$$

Множитель  $1/4$  добавлен для того, чтобы при действительном значении  $\beta$  и при действительных полях  $E_1 \cos \omega_1 t$  и  $E_2 \cos \omega_2 t$  поляризация была равна  $\mathfrak{P}_i \cos \omega_3 t$ . Это выражение симметрично относительно компонент  $E_j(\omega_1)$  и  $E_k(\omega_2)$ , что непосредственно следует из (2.21).

Если затухание мало, слагаемые  $i\Gamma_{nn}'$  в знаменателях выражения (2.21) можно опустить. Это обстоятельство важно при генерации гармоник в оптической области, когда все частоты далеки от резонансных. Если знаменатели действительны и содержат только разности частот, то слагаемые в выражении (2.21) можно перегруппировать. Компоненту тензора поляризации третьего ранга в отсутствие затухания можно выразить следующим образом:

$$\beta_{ijk} = \sum_{g \neq n, n'} \sum \{ (\mathcal{P}_i)_{gn} (\mathcal{P}_j)_{n'g} (\mathcal{P}_k)_{nn'} A_{nn'} + (\mathcal{P}_i)_{gn} (\mathcal{P}_j)_{nn'} \times \\ \times (\mathcal{P}_k)_{n'g} A'_{nn'} + (\mathcal{P}_i)_{n'g} (\mathcal{P}_j)_{nn'} (\mathcal{P}_k)_{gn} B_{nn'} + \\ + (\mathcal{P}_i)_{n'g} (\mathcal{P}_j)_{gn} (\mathcal{P}_k)_{nn'} B'_{nn'} + (\mathcal{P}_i)_{n'n} (\mathcal{P}_j)_{gn} (\mathcal{P}_k)_{ng} C_{nn'} + \\ + (\mathcal{P}_i)_{n'n} (\mathcal{P}_j)_{ng} (\mathcal{P}_k)_{gn} C'_{nn'} \} \rho_{gg}^{(0)}, \quad (2.23)$$

где

$$A_{nn'} = (2\hbar^2)^{-1} [(\omega_3 - \omega_{ng})^{-1} (\omega_1 - \omega_{n'g})^{-1}], \\ A'_{nn'} = (2\hbar^2)^{-1} [(\omega_3 - \omega_{ng})^{-1} (\omega_2 - \omega_{n'g})^{-1}], \\ B_{nn'} = (2\hbar^2)^{-1} [(\omega_3 + \omega_{n'g})^{-1} (\omega_2 + \omega_{ng})^{-1}], \\ B'_{nn'} = (2\hbar^2)^{-1} [(\omega_3 + \omega_{n'g})^{-1} (\omega_1 + \omega_{ng})^{-1}], \\ C_{nn'} = -(2\hbar^2)^{-1} [(\omega_1 + \omega_{n'g})^{-1} (\omega_2 - \omega_{ng})^{-1}], \\ C'_{nn'} = -(2\hbar^2)^{-1} [(\omega_2 + \omega_{n'g})^{-1} (\omega_1 - \omega_{ng})^{-1}].$$

При дополнительном предположении, что матричные элементы  $\mathcal{P}_{nn'}$  действительны, равенство (2.23) идентично равенствам (2.13) и (2.14) работы Армстронга и др. [3].

Аналогичным образом можно определить нелинейные электрические и магнитные восприимчивости в высших приближениях. Эти нелинейные комплексные восприимчивости описывают не только параметрические эффекты, но также и эффекты насыщения, мазерные и индуцированные комбинационные эффекты. В области частот,

далеких от частот резонансных переходов, доминируют параметрические эффекты. В этом случае разложение по степеням амплитуд поля особенно удобно. В случае же резонанса часто желательно удержать все члены в разложении фурье-компоненты матрицы плотности по степеням поля, чтобы полностью описать эффект насыщения. В этом случае необходимо априори решить, какие компоненты каждого матричного элемента следует удержать и какие можно отбросить как малые несекулярные слагаемые. Приравнивая в левых и правых частях уравнений движения (1.4) члены с одинаковой частотной зависимостью, мы получаем систему линейных алгебраических уравнений. В принципе фурье-компоненты матрицы плотности и, следовательно, средние значения дипольных моментов могут быть найдены с помощью алгебраических операций. Практически же число неизвестных велико даже в относительно простых случаях двух или трех энергетических уровней. Можно воспользоваться вычислительными машинами, но при этом труднее представить себе все физические явления при интерференции параметрических, мазерных, индуцированных комбинационных и других многофотонных процессов.

Ниже мы применим описанные здесь общие методы к двух- и трехуровневым системам. В этих случаях могут быть выявлены основные нелинейные механизмы.

В результате анализа мы увидим, в каких случаях доминируют параметрические и в каких — мазерные эффекты и каким образом они интерферируют.

Если приложенные электрические или магнитные поля содержат постоянную составляющую, т. е. если одна частота равна нулю, то из развитого формализма следуют в качестве частных случаев эффект Покельса и квадратичный электрооптический эффект, а также эффект Фарадея и квадратичные магнитные эффекты. В случае постоянных полей необходимо внести поправки в релаксационные члены. Парамагнитная составляющая в эффекте Фарадея, например, является следствием изменения населенностей состояний при приложении постоянного магнитного поля. Как уже упоминалось, релаксация происходит к равновесному состоянию, соответствующему мгновенным значениям приложенных полей.

### § 3. Нелинейные восприимчивости двухуровневой системы

Рассмотрим систему с двумя энергетическими уровнями  $|a\rangle$  и  $|b\rangle$ , расстояние между которыми равно

$$\langle b|\mathcal{H}_A|b\rangle - \langle a|\mathcal{H}_A|a\rangle = \hbar\omega_{ba}. \quad (3.1)$$

#### А. ДВА ВРАЩАЮЩИХСЯ ПОЛЯ

Пусть два периодических возмущения с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  имеют только недиагональные матричные элементы. Если говорить о магнитном резонансе, то это означает, что на систему действуют два вращающихся высокочастотных поля. Если  $\omega_2 = -\omega_1$ , то имеем высокочастотное линейно поляризованное поле. Мы воспользуемся обозначениями, принятыми для магнитодипольных переходов, хотя результаты остаются в силе для любой двухуровневой системы [10, 23].

Пусть

$$\mathcal{H}_{ba}^{\text{кор}} = -\mu_{ba} (H_1 e^{-i\omega_1 t} + H_2 e^{-i\omega_2 t}) = \mathcal{H}_{ab}^{\text{кор}*}$$

и  $\Gamma_{ab}^{-1} = T_2$ ; тогда уравнения движения имеют вид

$$i\hbar\dot{\rho}_{ab} = -\hbar(\omega_{ba} + iT_2^{-1})\rho_{ab} + \mathcal{H}_{ab}^{\text{кор}}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \quad (3.2a)$$

$$i\hbar\dot{\rho}_{ba} = \hbar(\omega_{ba} - iT_2^{-1})\rho_{ba} + \mathcal{H}_{ba}^{\text{кор}}(\rho_{bb} - \rho_{aa}), \quad (3.2b)$$

$$i\hbar(\dot{\rho}_{bb} - \dot{\rho}_{aa}) = 2(\mathcal{H}_{ba}^{\text{кор}}\rho_{ab} - \rho_{ba}\mathcal{H}_{ab}^{\text{кор}}) - (i\hbar T_1^{-1}) \times \\ \times (\rho_{bb} - \rho_{aa} - \rho_{bb}^0 + \rho_{aa}^0), \quad (3.2в)$$

$$\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1. \quad (3.2г)$$

В первом порядке получаем известное линейное приближение

$$\rho_{ba}^{(1)}(\omega_1) = \frac{-\hbar^{-1}\mu_{ba}H_1}{+\omega_1 - \omega_{ba} + iT_2^{-1}}(\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)})$$

и аналогичные выражения для  $\rho_{ba}^{(1)}(\omega_2)$ ,  $\rho_{ab}^{(1)}(\omega_1)$

и  $\rho_{ab}^{(1)}(\omega_2)$ . Заметим, что в случае затухания  $\rho_{ba}(+\omega_1) = +\rho_{ab}(-\omega_1)$ . Во втором приближении разность между диагональными элементами матрицы плотности имеет фурье-компоненты с частотами  $\omega_1 - \omega_2$ ,  $\omega_2 - \omega_1$  и постоянную составляющую:

$$(\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)})^{(\omega_1 - \omega_2)} = \frac{2\hbar^{-2}|\mu_{ab}|^2 H_1 H_2^*}{\omega_1 - \omega_2 + iT_1^{-1}} \times \\ \times \left\{ \frac{1}{-\omega_2 - \omega_{ab} + iT_2^{-1}} + \frac{1}{\omega_1 - \omega_{ba} + iT_2^{-1}} \right\} (\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}), \quad (3.3)$$

$$(\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)})^{(\omega_2 - \omega_1)} = [(\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)})^{(\omega_1 - \omega_2)}]^*$$

Из (3.2г) следует, что в общем случае при  $\omega \neq 0$

$$\rho_{bb}(\omega) + \rho_{aa}(\omega) = 0.$$

Эти составляющие дают продольную компоненту намагниченности на разностной частоте

$$\langle \mathfrak{M}_z \rangle^{(\omega_1 - \omega_2)} e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} = \\ = -\mu_0 \{ \rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)} \}^{(\omega_1 - \omega_2)} e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t}, \quad (3.4)$$

где

$$-\langle b|\mathfrak{M}_z|b\rangle = \mu_0 = +\langle a|\mathfrak{M}_z|a\rangle.$$

При  $\omega_1 = -\omega_2$  эта компонента описывает генерацию второй гармоники при магнитном резонансе, обусловленном линейно поляризованным высокочастотным полем.

Очевидно, что возникновение поляризации на разностной частоте  $\pm(\omega_2 - \omega_1)$  является параметрическим процессом. Заметим, что фаза намагниченности на этой частоте зависит от разности фаз приложенных полей с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Будет ли поглощение на частоте  $\omega_2 - \omega_1$  положительным или отрицательным, зависит от фазы продольного магнитного поля на этой частоте.

Постоянная составляющая второго приближения описывает начало насыщения при наличии двух вращающихся полей:

$$\{\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)}\}_{\text{пост}} = \left[ \frac{-2T_1 T_2 \hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2}{(\omega_1 - \omega_{ba})^2 T_2^2 + 1} + \frac{-2T_1 T_2 \hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 |H_2|^2}{(\omega_2 - \omega_{ba})^2 T_2^2 + 1} \right] \{\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}\}. \quad (3.5)$$

Ясно, что это только первое приближение к описанию эффекта насыщения, которое можно получить разложением обычного знаменателя, описывающего насыщение, в степенной ряд.

Если разность  $\rho_{bb} - \rho_{aa}$  (в 3.2а) заменить на  $\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)}$ , то получим третье приближение  $\rho_{ab}^{(3)}$ , которое имеет новые частотные компоненты  $2\omega_1 - \omega_2$  и  $2\omega_2 - \omega_1$ . Это параметрические члены. При  $\omega_1 = -\omega_2$  они описывают генерацию третьей гармоники.

Кроме того, оказывается, что намагниченность на частоте  $\omega_1$  имеет слагаемые, пропорциональные  $|H_1|^2 H_1$  и  $|H_2|^2 H_1$ . Первое слагаемое всегда уменьшает полученное в первом приближении поглощение на частоте  $\omega_1$ . Оно соответствует процессам поглощения и излучения фотонов с энергией  $\hbar\omega_1$  и описывает начинающееся насыщение сигнала на частоте  $\omega_1$ . Второе слагаемое соответствует поглощению (излучению) кванта  $\hbar\omega_1$  и излучению (поглощению) кванта  $\hbar\omega_2$ . Разность энергии фотонов  $\pm\hbar(\omega_2 - \omega_1)$  поглощается за счет механизма затухания. Это слагаемое соответствует комбинационному процессу и может или увеличить или уменьшить поглощение на частоте  $\omega_1$ . Описанная процедура может быть продолжена бесконечно; из  $\rho_{ba}^{(3)}$  и  $\rho_{ab}^{(3)}$  можно найти  $\rho_{bb}^{(4)} - \rho_{aa}^{(4)}$  и т.д. В результате получаются приближения по возрастающим степеням  $H_1$  и  $H_2$ .

Можно также получить решение в виде ряда по степеням  $H_2$ , верное в любом порядке по  $H_1$ . Это решение уже обсуждалось Блохом [7], который воспользовался системой координат, вращающейся с частотой  $\omega_1$ . В этой системе большое возмущение  $H_1$  не зависит от времени. В настоящей работе решение для матрицы плотности

определяется в лабораторной системе координат. Стационарное решение в приближении, не зависящем от  $H_2$ , является, конечно, не чем иным, как известным решением уравнения Блоха, учитывающим насыщение

$$\rho_{bb}^{\text{пост}} - \rho_{aa}^{\text{пост}} = (\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}) \times \frac{1 + (-\omega_1 + \omega_{ba})^2 T_2^2}{1 + (-\omega_1 + \omega_{ba})^2 T_2^2 + |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2 T_1 T_2}, \quad (3.6)$$

$$\rho_{ba}^{(\omega_1)} = \frac{-\hbar^{-1} \mu_{ba} H_1}{\omega_1 - \omega_{ba} + iT_2^{-1}} (\rho_{aa}^{\text{пост}} - \rho_{bb}^{\text{пост}}).$$

Найдем теперь линейные по  $H_2$  слагаемые элементов матрицы плотности. Выражение (3.6) все еще справедливо в этом приближении. Рассмотрим одновременно уравнения для  $\{\rho_{bb} - \rho_{aa}\}^{(\omega_2 - \omega_1)}$ ,  $\rho_{ba}^{(\omega_2)}$  и  $\rho_{ab}^{(\omega_2 - 2\omega_1)}$ :

$$(\omega_2 - \omega_{ba} + iT_2^{-1}) \rho_{ba}^{(\omega_2)} = -\hbar^{-1} \mu_{ba} H_2 (\rho_{aa}^{\text{пост}} - \rho_{bb}^{\text{пост}}) + \hbar^{-1} \mu_{ba} H_1 (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{(\omega_2 - \omega_1)}, \quad (3.7)$$

$$(\omega_2 - \omega_1 + iT_1^{-1}) \{\rho_{bb} - \rho_{aa}\}^{(\omega_2 - \omega_1)} = +2\hbar^{-1} \mu_{ab} H_1 \rho_{ba}^{(\omega_2)} - 2\hbar^{-1} \mu_{ba} H_1 \rho_{ab}^{(\omega_2 - 2\omega_1)}, \quad (3.8)$$

$$(\omega_2 - 2\omega_1 - \omega_{ab} + iT_2^{-1}) \rho_{ab}^{(\omega_2 - 2\omega_1)} = -\hbar^{-1} \mu_{ab} H_1^* \{\rho_{bb} - \rho_{aa}\}^{(\omega_2 - \omega_1)}. \quad (3.9)$$

Явному решению этой системы уравнений легко дать физическую интерпретацию, обращаясь к системе координат, вращающейся с частотой  $\omega_1$ . Аналитическое решение для  $\rho_{ba}^{(\omega_2)}$  имеет вид

$$\rho_{ba}^{(\omega_2)} = -\hbar^{-1} \mu_{ba} H_2 (\rho_{aa} - \rho_{bb})^{\text{пост}} \left[ \omega_2 - \omega_{ba} + iT_2^{-1} - \frac{2\hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2}{\omega_2 - \omega_1 + iT_1^{-1} - 2\hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2 / (\omega_2 - 2\omega_1 - \omega_{ab} + iT_2^{-1})} \right]^{-1} \quad (3.10)$$

Предположим, что две приложенные частоты существенно различны, так что их можно различить физически,

$|\omega_2 - \omega_1| \gg T_1^{-1}$ . Тогда выражение (3.10) можно преобразовать к следующему виду:

$$\begin{aligned} \rho_{ba}^{(\omega_2)} &= -D^{-1} \hbar^{-1} \mu_{ab} H_2 [(\omega_2 - \omega_1)(\omega_2 - 2\omega_1 - \omega_{ab} + \\ &+ iT_2^{-1}) - 2\hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2] (\rho_{aa} - \rho_{bb})^{\text{пост}}, \\ D &= (\omega_2 - \omega_1) [(\omega_2 - \omega_1)^2 - (\omega_{ba} - \omega_1)^2 - \\ &- 4\hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2 - T_2^{-2}] + i [2(\omega_2 - \omega_1)^2 - \\ &- 4\hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2] T_2^{-1}. \end{aligned} \quad (3.11)$$

Рассмотрение знаменателя показывает, что действительная часть исчезает при

$$\omega_2 - \omega_1 = \pm \{(\omega_1 - \omega_{ba})^2 + 4\hbar^{-2} |\mu_{ab}|^2 H_1^2 + T_2^{-2}\}^{1/2}. \quad (3.12)$$

Это соответствует резонансу относительно эффективного поля во вращающейся системе координат. Последнее слагаемое в числителе соответствует комбинационному процессу; первое слагаемое дает линейную дисперсию. Оба эффекта изменяются под действием знаменателя, который учитывает поглощение и последующее излучение произвольного числа квантов  $\hbar\omega_1$ , так как в степенном разложении удержаны все степени  $|H_1|^2$ . Параметрические процессы проявляются в соответствующих выражениях для  $\rho_{bb} - \rho_{aa}$ , которые могут быть получены подстановкой (3.10) или (3.11) в уравнение (3.8).

В высших приближениях члены, пропорциональные  $H_2^2$  и  $|H_2|^2$ , можно было бы рассчитать аналогичным образом, однако при этом быстро возрастает трудоемкость алгебраических выкладок; кроме того, различные квантовые процессы настолько переплетаются, что не могут быть разделены.

#### Б. ОДНО ВРАЩАЮЩЕЕСЯ ПОЛЕ И ОДНО ПРОДОЛЬНОЕ ОСЦИЛЛИРУЮЩЕЕ ПОЛЕ

В том случае, когда на образец действует одно вращающееся и одно продольное осциллирующее поле, отрицательное поглощение, связанное с комбинационными

процессами, выявляется очень четко. Гамильтониан когерентных возмущений имеет вид

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{ba}^{\text{КОГ}} &= -\mu_{ba} H_1 e^{-i\omega_1 t} = \mathcal{H}_{ab}^{\text{КОГ}*}, \\ \mathcal{H}_{aa}^{\text{КОГ}} &= -\mathcal{H}_{bb}^{\text{КОГ}} = -\frac{1}{2} \mu_0 (H_3 e^{-i\omega_3 t} + H_3^* e^{+i\omega_3 t}). \end{aligned}$$

Уравнения движения записываются теперь следующим образом:

$$\begin{aligned} i\hbar \dot{\rho}_{ba} &= -\mu_{ba} H_1 e^{-i\omega_1 t} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) - \hbar (\omega_{ba} + iT_2^{-1}) \rho_{ba} - \\ &- \mu_0 (H_3 e^{-i\omega_3 t} + H_3^* e^{+i\omega_3 t}) \rho_{ba}, \end{aligned} \quad (3.13)$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{bb} - \dot{\rho}_{aa} &= -2i\hbar^{-1} (\mu_{ba} H_1 e^{-i\omega_1 t} \rho_{ab} - \mu_{ab} H_1^* e^{+i\omega_1 t} \rho_{ba}) - \\ &- (\rho_{bb} - \rho_{aa} - \rho_{bb}^{(0)} + \rho_{aa}^{(0)}) T_1^{-1} + \\ &+ \frac{\hbar\omega_{ba}/kT}{\text{sh}(\hbar\omega_{ba}/kT)} \frac{\mu_0 (H_3 e^{-i\omega_3 t} + H_3^* e^{+i\omega_3 t})}{\hbar\omega_{ba}} (\rho_{bb}^0 - \rho_{aa}^0) T_1^{-1}. \end{aligned} \quad (3.14)$$

Мы считаем, что  $kT > \mu_0 H_3$  — условие, всегда выполняющееся на практике. Последним слагаемым можно пренебречь в соответствии с приближениями, принятыми для механизма затухания и обсуждавшимися в начале настоящей работы. Это слагаемое учитывает то обстоятельство, что система релаксирует к состоянию теплового равновесия, соответствующему мгновенному гамильтониану  $\mathcal{H}_A + \mathcal{H}_A^{\text{КОГ}}(t)$ , а не просто  $\mathcal{H}_A$ ; это приводит к небольшой продольной восприимчивости

$$\{\rho_{bb}^{(1)} - \rho_{aa}^{(1)}\}^{(-\omega_3)} = \frac{(\hbar\omega_{ba}/kT) \mu_0 H_3^*}{\text{sh}(\hbar\omega_{ba}/kT) \hbar\omega_{ba}} \frac{1}{i\omega_3 T_1 + 1} (\rho_{bb}^0 - \rho_{aa}^0). \quad (3.15)$$

Рассматриваемое слагаемое будет удержано в следующем приближении, чтобы показать, что его вклад пренебрежимо мал.

Нелинейный отклик в низшем приближении состоит из поправки на насыщение  $\{\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)}\}^{\text{пост}}$ , пропорциональной  $|H_1|^2$ , и параметрической компоненты для поперечной составляющей намагниченности с частотами

$\omega_1 \pm \omega_3$ . Эту компоненту можно получить из недиагональных фурье-компонент, например,

$$\begin{aligned} \{\rho_{ba}^{(2)}\}^{(\omega_1 - \omega_3)} &= \frac{-\hbar^{-2} \mu_0 \mu_{ba} H_1 H_3^*}{(\omega_1 - \omega_{ba} + iT_2^{-1})(\omega_1 - \omega_3 - \omega_{ba} + iT_2^{-1})} \times \\ &\times (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) + \frac{\hbar \omega_{ba} / kT}{\text{sh}(\hbar \omega_{ba} / kT)} \times \\ &\times \frac{\mu_0 \mu_{ba} H_1 H_3^*}{(+i\omega_3 T_1 + 1) \hbar \omega_{ba} (\omega_1 - \omega_3 - \omega_{ba} + iT_2^{-1})} (\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)}). \end{aligned} \quad (3.16)$$

Последнее слагаемое возникает из первого члена в правой части равенства (3.13) после подстановки выражения (3.15). Оно, очевидно, отличается от первого слагаемого множителем

$$\frac{\hbar \omega_{ba} / kT}{\text{sh}(\hbar \omega_{ba} / kT)} |i\omega_3 T_1 + 1|^{-1} < |i\omega_3 T_1 + 1|^{-1} \ll 1,$$

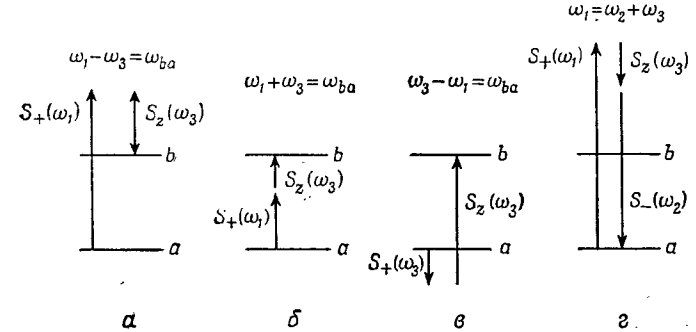
поэтому в дальнейшем мы будем им пренебрегать.

В следующем приближении появляются поправки к компонентам с первоначальными частотами  $\omega_1$  и  $\pm \omega_3$ , пропорциональные интенсивностям приложенных полей

$$\begin{aligned} \{\rho_{ba}^{(3)}\}^{(\omega_1)} &= -\frac{\hbar^{-3} \mu_0^2 \mu_{ba} H_1 |H_3|^2 (\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0)}{(\omega_1 - \omega_{ba} + iT_2^{-1})^2} \times \\ &\times \left[ \frac{1}{\omega_1 - \omega_3 - \omega_{ba} + iT_2^{-1}} + \frac{1}{\omega_1 + \omega_3 - \omega_{ba} + iT_2^{-1}} \right] + \\ &+ \text{Члены, пропорциональные } H_1 |H_1|^2, \end{aligned} \quad (3.17)$$

$$\begin{aligned} &\{\rho_{bb}^{(3)} - \rho_{aa}^{(3)}\}^{(\omega_3)} = \\ &= -\frac{2\hbar^{-3} |\mu_{ab}|^2 \mu_0 H_3 |H_1|^2 (\rho_{bb}^0 - \rho_{aa}^0)}{(\omega_3 + iT_1^{-1})(\omega_1 - \omega_{ba} + iT_2^{-1})(\omega_1 - \omega_3 - \omega_{ba} - iT_2^{-1})} + \\ &+ \frac{2\hbar^{-3} |\mu_{ab}|^2 \mu_0 H_3 |H_1|^2 (\rho_{bb}^0 - \rho_{aa}^0)}{(\omega_3 + iT_1^{-1})(\omega_1 - \omega_{ba} + iT_2^{-1})(\omega_1 + \omega_3 - \omega_{ba} + iT_2^{-1})}. \end{aligned} \quad (3.18)$$

Рассмотрим случай  $\omega_1 - \omega_3 = \omega_{ba}$ . Между уровнями  $|a\rangle$  и  $|b\rangle$  возможен двухквантовый комбинационный переход, как показано на фиг. 1, а. Исключим одноквантовые переходы,  $|\omega_1 + \omega_{ba}| \gg T_2^{-1}$ , откуда следует, что  $\omega_3 \gg T_2^{-1} \gg T_1^{-1}$ . В этом случае первые члены в правых



Фиг. 1. Нелинейные процессы в двухуровневой системе.

а — комбинационный процесс с излучением «поперечного» кванта и поглощением «продольного» кванта; б — двухквантовое поглощение; в — комбинационный процесс с поглощением «поперечного» кванта и излучением «продольного» кванта; г — схематическое представление параметрического процесса.

частях равенств (3.17) и (3.18) преобладают и нелинейная восприимчивость становится чисто мнимой.

$$\frac{\{\rho_{ba}^{(3)}\}^{(\omega_1)}}{H_1} = +2iT_2 \hbar^{-3} \omega_3^{-2} \mu_0^2 \mu_{ba} |H_3|^2 (\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0), \quad (3.19)$$

$$\frac{\{\rho_{aa}^{(3)} - \rho_{bb}^{(3)}\}^{(\omega_3)}}{H_3} = -2iT_2 \hbar^{-3} \omega_3^{-2} \mu_0 |\mu_{ab}|^2 |H_1|^2 (\rho_{aa}^0 - \rho_{bb}^0). \quad (3.20)$$

При нормальных населенностях,  $\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)} > 0$ , знак восприимчивости таков, что на частоте  $\omega_1$  имеется положительное поглощение, пропорциональное интенсивности  $|H_3|^2$ , а на частоте  $\omega_3$  — отрицательное поглощение, пропорциональное интенсивности  $|H_1|^2$ , как и следовало ожидать при комбинационном эффекте.

Если  $\omega_1 + \omega_3 = \omega_{ba}$ , то доминируют последние члены в (3.17) и (3.18). При этом знак (3.19) сохраняется,

но знак (3.20) изменяется на обратный. Теперь имеет место положительное поглощение на обеих частотах, соответствующее процессу двухквантового поглощения, показанному на фиг. 1, б.

Фиг. 1, в иллюстрирует случай, когда  $\omega_1 < 0$ ,  $\omega_3 = \omega_{ba} - \omega_1$ . Хотя знак мнимой восприимчивости (3.19) остается формально неизменным, он теперь соответствует отрицательному поглощению на частоте  $|\omega_1|$ , так как знак  $\omega_1$  отрицателен. Переход с уровня  $|a\rangle$  на уровень  $|b\rangle$  совершается с излучением кванта  $\hbar\omega_1$  и поглощением большого кванта  $\hbar\omega_3$ . Если начальные населенности инвертированы  $\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)} > 0$ , все знаки изменятся на обратные и все процессы происходят в обратном направлении.

Эту задачу также можно решать с учетом всех степеней  $H_1$ . При этом опять можно идентифицировать основные физические процессы — параметрические и комбинационные. В полуклассической теории комбинационные процессы описываются нелинейными комплексными восприимчивостями, которые четко отличаются от восприимчивостей для параметрических процессов. Квантовый процесс, которому соответствует параметрическая восприимчивость (3.16), представлен на фиг. 1, г. Атомная система чисто реактивна и не совершает действительного перехода на уровень с другой энергией. Хотя параметрический процесс изображается как трехфотонное рассеяние, он описывается более низким приближением теории возмущения по сравнению с комбинационным процессом. Причина этого состоит в том, что это когерентный дисперсионный эффект, а не процесс некогерентного рассеяния. (В последнем случае вероятность перехода пропорциональна квадрату матричного элемента, так что фазовая информация теряется.) Аналогично линейная дисперсия соответствует когерентному рассеянию. Хотя последнее часто представляют как процесс рассеяния, в котором первичный и вторичный фотоны имеют одинаковую частоту, оно появляется в том же порядке теории возмущения для матрицы плотности, что и однофотонный поглощательный процесс. Строго говоря, некорректно представлять линейную дисперсионную поляризацию

и нелинейную поляризацию как процессы рассеяния фотонов, в которых фазовая информация не имеет значения. Фаза индуцированной поляризации на частотах  $\omega_1 \pm \omega_3$  определяется фазами приложенных полей с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_3$  и число квантов известно неточно. Вопрос о том, будет ли происходить поглощение на комбинационных частотах, нельзя решить, не зная фаз полей на этих частотах. Конечно, неправильно было бы полагать, что поле с частотами  $\omega_1 \pm \omega_3$  отсутствует. Если даже первоначально поле с этими комбинационными частотами не было приложено, такое поле появится вследствие нелинейной поляризации. Чтобы получить самосогласованное решение, необходимо учесть реакцию поляризации на электромагнитные типы колебаний. Это будет сделано в § 5.

#### В. ДВА ВРАЩАЮЩИХСЯ ПОЛЯ И ОДНО ПРОДОЛЬНОЕ ПОЛЕ

Пусть два вращающихся поля имеют частоты  $\omega_1$  и  $\omega_2$ , а частота продольного поля равна  $\pm\omega_3 = \pm(\omega_1 - \omega_2)$ . Если применить метод разложения в ряд по возрастающим степеням амплитуд поля, то рассматриваемый случай будет описываться комбинацией результатов, полученных в п. «а» и «б». Такой метод представляет собой наилучший систематический подход к задаче. В том случае, когда как  $\omega_1$ , так и  $\omega_2$  близки к резонансной частоте и разность  $|\omega_1 - \omega_2|$  мала, не существует удовлетворительной процедуры укорочения. При этом следует удерживать следующие диагональные фурье-компоненты:

$$(\rho_{bb} - \rho_{aa})^{\text{пост}}, (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{(\pm\omega_3)}, (\rho_{bb} - \rho_{aa})^{(\pm 2\omega_3)} \text{ и т. д.}$$

«Почти резонансными» оказываются также недиагональные компоненты:

$$\rho_{ba}^{(\omega_1)}, \rho_{ba}^{(\omega_2)}, \rho_{ba}^{(\omega_1 - \omega_2)}, \rho_{ba}^{(2\omega_1 - \omega_2)}, \rho_{ba}^{(2\omega_2 - \omega_1)}, \rho_{ba}^{(3\omega_1 - 2\omega_2)}, \\ \rho_{ba}^{(3\omega_2 - 2\omega_1)} \text{ и т. д.}$$

Если к трехуровневой системе приложены три поля с частотами  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  и  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ , то можно однозначно идентифицировать конечное число «почти резонансных» членов. Этот случай, представляющий значительный практический интерес, будет рассмотрен в § 4.



#### § 4. Нелинейная восприимчивость трехуровневой системы

Стационарный отклик системы с нижним энергетическим состоянием  $|a\rangle$ , средним состоянием  $|b\rangle$  и верхним состоянием  $|c\rangle$  на три приложенных поля с частотами  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  и  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  можно рассчитать с помощью общего метода разложения в ряд Фурье и по степеням поля. Если три приложенные частоты близки к резонансным частотам, например,  $|\omega_1 - \omega_{ba}| \ll \omega_{ba}$ ,  $|\omega_2 - \omega_{cb}| \ll \omega_{cb}$  и, следовательно,  $|\omega_3 - \omega_{ca}| \ll \omega_{ca}$ , то ряд может быть оборван однозначным образом. Удерживаются только определенные матричные элементы периодических возмущений, так что укороченный гамильтониан становится равным

$$\mathcal{H}_{\text{кор}} = \begin{Bmatrix} 0 & V_{ab}e^{i\omega_1 t} & V_{ac}e^{i\omega_3 t} \\ V_{ba}e^{-i\omega_1 t} & 0 & V_{bc}e^{i\omega_2 t} \\ V_{ca}e^{-i\omega_3 t} & V_{cb}e^{-i\omega_2 t} & 0 \end{Bmatrix}. \quad (4.1)$$

В случае электродипольных переходов имеем, например,  $V_{ab} = -\hbar^{-1} \mathbf{p} \cdot \mathbf{E}_1$  и т. д. Заметим, что укороченный гамильтониан можно сделать не зависящим от времени с помощью диагонального унитарного преобразования  $\mathcal{H}' = U^\dagger \mathcal{H} U$ , где

$$U = \begin{Bmatrix} e^{i\omega_1 t} & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\omega_3 t} \end{Bmatrix}. \quad (4.2)$$

Уилкоккс и Лэмб [22] решили задачу для трехуровневой системы при наличии двух приложенных полей в этом представлении. Однако стационарное решение легче получить в лабораторной системе координат. То обстоятельство, что задача может быть преобразована к проблеме, в которой каждый матричный элемент в стационарном состоянии не зависит от времени, позволяет предположить, что в лабораторной системе координат каждый элемент матрицы плотности имеет только одну фурье-компоненту. Это предположение оправдывается. Удерживаются лишь постоянные составляющие диагональных элементов матрицы плотности и следующие

шесть недиагональных фурье-компонент:  $\rho_{ba}^{(\omega_1)}$  и  $\rho_{ab}^{(-\omega_1)}$ ,  $\rho_{ca}^{(\omega_3)}$  и  $\rho_{ac}^{(-\omega_3)}$ ,  $\rho_{cb}^{(\omega_2)}$  и  $\rho_{bc}^{(-\omega_2)}$ .

Уравнения движения сводятся к девяти линейным алгебраическим уравнениям с девятью неизвестными. Одно из этих уравнений — неоднородное условие нормировки  $\rho_{aa}^{\text{пост}} + \rho_{bb}^{\text{пост}} + \rho_{cc}^{\text{пост}} = 1$ . При введении обозначений

$$\begin{aligned} \Delta_{ba} &= \omega_1 - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba} = -\Delta_{ab}^*, \\ \Delta_{cb} &= \omega_2 - \omega_{cb} + i\Gamma_{cb} = -\Delta_{bc}^*, \\ \Delta_{ca} &= \omega_3 - \omega_{ca} + i\Gamma_{ca} = -\Delta_{ac}^* \end{aligned} \quad (4.3)$$

получается следующее выражение для уравнений движения в матричной форме (см. стр. 408).

Решение этой системы линейных уравнений дает зависимость элементов матрицы плотности от всех степеней амплитуд трех приложенных полей. Следовательно, решение содержит все возможные интерференционные эффекты между одно- и многоквантовыми поглощательными и излучательными процессами и параметрическими процессами рассеяния, а также эффекты насыщения, связанные с последовательными поглощением и излучением квантов.

Известны методы упрощения задач с матрицами, имеющими размерность  $9 \times 10$ . Полезно исключить вначале  $\rho_{ab}$ ,  $\rho_{bc}$  и  $\rho_{ca}$  и представить оставшиеся шесть переменных в виде двух векторов  $\rho = (\rho_{aa}, \rho_{bb}, \rho_{cc})$  и  $\mu = (\rho_{ba}, \rho_{cb}, \rho_{ac})$ . Шесть оставшихся уравнений можно представить как двухвекторные уравнения, умноженные на матрицы  $3 \times 3$ . Этот метод использовался Уилкоксом и Лэмбом [22], а также Ятсивом [14], которые решили проблему для случая двух больших приложенных полей. Он позволяет расположить различные слагаемые соответственно степеням амплитуд поля. Получающиеся выражения слишком громоздки и мало поучительны, поэтому они здесь не приводятся. Если все три поля очень велики,  $|V/\Gamma| \gg 1$ , то наступит «тепловая смерть» системы,  $\rho_{aa} = \rho_{bb} = \rho_{cc} = 1/3$ . В промежуточном случае, когда несколько отношений  $V/\Gamma$  и  $\omega/\Gamma$  имеют величину порядка единицы, возможны специфические инверсионные эффек-



Это выражение содержит те же члены, что и равенство (25) работы Клогстона [16]. Аналогичное выражение имеет место для  $\rho_{cb}^{(1)} = \rho_{bc}^{(1)*}$ . Члены перегруппированы для облегчения их идентификации.

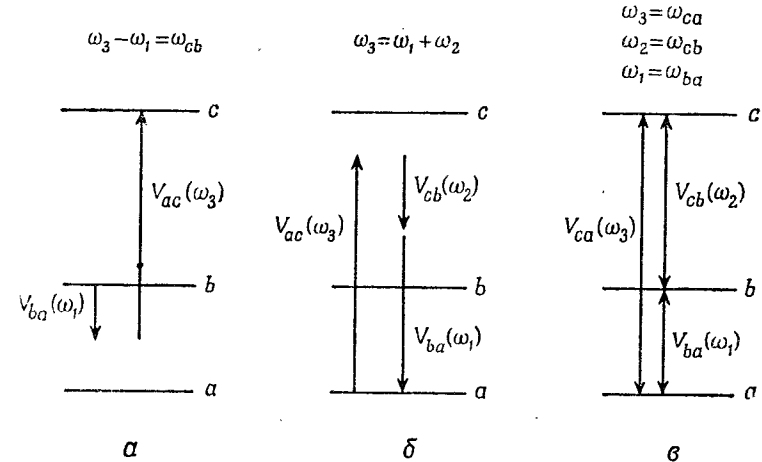
Если частоты выбраны так, что отклик максимален для данного значения амплитуды накачки, то множитель, стоящий вне квадратных скобок, всегда имеет величину порядка единицы. Если расширение линий из-за поля накачки меньше их естественной ширины  $|V_{ac}/\Gamma| \ll \ll 1$ , то этот множитель можно, очевидно, заменить на единицу. Однако при  $|V_{ac}/\Gamma| \gg 1$  рассматриваемый множитель имеет провал при резонансных частотах  $\omega_1 = \omega_{ba}$ ,  $\omega_2 = \omega_{bc}$ , что приводит к характерному расщеплению резонанса. Это непосредственно видно из резонансных условий (3.12), записанных во вращающейся системе координат. Когда частота установлена вне провала в центре так, что отклик максимален, то множитель опять имеет значение порядка единицы.

Первое слагаемое в квадратных скобках равенства (4.5) имеет вид линейного отклика. Разность населенностей  $\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}$  не определяется только температурой, а является функцией мощности накачки  $|V_{ac}|^2$ . Это слагаемое в случае  $\rho_{bb}^{(0)} - \rho_{aa}^{(0)} > 0$  описывает мазерное действие.

Второе слагаемое соответствует индуцированному комбинационному эффекту. Вероятность перехода с уровня  $|b\rangle$  на  $|c\rangle$  с поглощением кванта  $\hbar\omega_3$  и излучением кванта  $\hbar\omega_1$  должна быть пропорциональна  $\rho_{bb} - \rho_{cc}$ . Второе слагаемое отражает также процесс с вероятностью, пропорциональной  $\rho_{aa} - \rho_{bb}$ , который должен быть добавлен к индуцированному комбинационному переходу. Он представляет собой одноквантовое поглощение, связанное с переходом  $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$  и сопровождаемое одновременным рассеянием одного или более квантов  $\hbar\omega_3$ .

Третье и четвертое слагаемые в квадратных скобках имеют вид параметрических членов. Приложенные поля с частотой  $\omega_3$  и  $\omega_2$  создают поляризацию с частотой  $\omega_1$ . Однако эти слагаемые представляют не только процесс рассеяния с участием трех квантов. Они описывают так-

же интерференцию между однофотонными и комбинационными процессами в выражении для вероятности перехода между уровнями  $|a\rangle$  и  $|b\rangle$ , которые связаны матричным элементом вида  $V_{ab} + c'V_{ac}V_{cb}$ . Это приводит к поглощению, пропорциональному  $V_{ab}V_{bc}V_{ca}$ . Полученным в этом приближении выражением уже очень трудно дать наглядную физическую интерпретацию и связать их с элементарными квантовыми процессами.



Фиг. 2. Нелинейные процессы в трехуровневой системе.

*a* — комбинационный процесс; *b* — параметрический процесс; *в* — комбинация процессов насыщения, мазерных, индуцированных комбинационных и параметрических процессов (все схемы не следует понимать слишком буквально).

Схему на фиг. 2 не следует понимать слишком буквально. Макроскопическое поведение описывается комплексными восприимчивостями параметрического или комбинационного типа. Первые соответствуют поляризации на комбинационной частоте, индуцированной полями, приложенными на других частотах. Комплексное значение восприимчивости определяет фазу поляризации по отношению к этим приложенным полям. Не зная фазы на комбинационной частоте, нельзя решить, происходит ли поглощение. Восприимчивость комбинационного типа описывает комплексное изменение линейного показателя преломления, пропорциональное интенсивности поля

с другой частотой. Его мнимая часть соответствует положительному или отрицательному поглощению.

Решение (4.5) для  $\rho_{ab}^{(1)} = \rho_{ba}^{(1)*}$  и  $\rho_{bc}^{(1)} = \rho_{cb}^{(1)*}$  можно снова подставить в уравнения для населенностей и для  $\rho_{ac} = \rho_{ca}^*$ , что определит второе приближение, квадратичное по амплитудам слабых полей  $|V_{ab}|^2$ ,  $|V_{bc}|^2$ ,  $V_{ab}V_{bc}$  и  $V_{cb}V_{ba}$ . В третьем приближении можно воспользоваться уравнениями (4.4а) и (4.4б), чтобы получить соотношение между  $\rho_{ba}^{(3)}$  и  $\rho_{bb}^{(2)} - \rho_{aa}^{(2)}$  и т. д. Эта процедура трудоемка, и в случае, когда поля с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  сравнимы с параметрами затухания,  $|V_{ab, bc}/\Gamma_{ab, bc}| \sim 1$ , можно с тем же успехом решать полную матрицу (4.4).

Обсудим теперь несколько подробнее относительную роль различных членов в (4.5). Если расширение линии из-за поля накачки мало по сравнению с ее естественной шириной и все частоты близки к резонансным, то первый член доминирует, и мы получим известный случай трехуровневого лазера на твердом теле.

При очень больших  $|V_{ac}|$  второй, комбинационный, член не обязательно будет больше первого, так как при этом разность населенностей  $\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{cc}^{(0)}$  стремится к нулю. Следует помнить, что индекс (0) относится к нулевой степени амплитуд только малых полей. Фактически оптимальный отклик, т. е. максимальное значение  $\rho_{ba}^{(1)}$ , будет иметь место при  $|V_{ac}^2/\Delta^2| \sim 1$ , как уже пояснялось выше. В этом случае комбинационный член имеет тот же порядок величины, что и мазерный член, и для подробного сравнения необходимо знать точные значения  $|V_{ca}/\Delta_{ac}|$  и  $|V_{ca}/\Delta_{bc}|$ .

Существует, однако, ситуация, в которой комбинационный член всегда доминирует. Так будет обстоять дело в том случае, когда только одна частота  $\omega_2 = \omega_{cb}$  является резонансной и приложенное на этой частоте поле очень мало,  $V_{bc} = 0$ . В силу последнего условия параметрические члены обращаются в нуль. Поскольку ни частота  $\omega_1$ , ни частота накачки  $\omega_3$  не резонансны, т. е.  $|\omega_1 - \omega_{ba}| > \Gamma_{ba}$  и  $|\omega_1 - \omega_{ba}| = |\omega_3 - \omega_{ca}| > |V_{ca}| > \Gamma_{ca}$ , мнимая часть первого члена, соот-

ветствующая линейному поглощению, равна  $\Gamma_{ba}|\Delta_{ba}|^{-2}V_{ba}(\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)})$ . Отношение комбинационного члена к линейному поглощению легко может быть сделано больше единицы:

$$\frac{|V_{ca}|^2(\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{cc}^{(0)})}{\Gamma_{bc}\Gamma_{ba}(\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)})} > 1.$$

Так как поле накачки нерезонансно, населенности фактически имеют равновесные значения. Если расширение линии, обусловленное полем накачки, больше естественных ширин  $\Gamma_{bc}$  и  $\Gamma_{ba}$ , то доминирует комбинационный процесс. Перечисленные условия, конечно, в точности соответствуют условиям, при которых наблюдалось действие комбинационного лазера [34].

Если все три частоты достаточно далеки от резонанса, то параметрические члены в (4.5) могут всегда быть сделаны преобладающими. Отношение параметрического члена к линейному поглощению в этом случае больше единицы, если

$$\left| \frac{V_{bc}V_{ca}\Delta_{ba}}{V_{ba}\Gamma_{ba}\Delta_{bc}} \right| > 1.$$

Это условие может быть выполнено даже в случае, когда уширение линий из-за накачки меньше ее естественной ширины. Если первоначально амплитуда  $V_{ba}$  очень мала, то большие приложенные поля с частотами  $\omega_3$  и  $\omega_2$  создадут поляризацию на частоте  $\omega_1$ . Этот «чисто параметрический» случай иллюстрируется на фиг. 2, б, хотя следует помнить, как отмечалось выше, ограниченность такого наглядного представления. Если приложенные частоты далеки от резонансных, то процедура укорочения, которая привела к равенству (4.5), уже неприменима. Очевидно, что в этом случае следует вернуться к общему методу, описанному в § 2.

До сих пор предполагалось, что амплитуды полей заданы. Это предположение выполняется при расчете макроскопических восприимчивостей. Если приложенное поле с частотой  $\omega_1$  исчезает,  $V_{ab} = 0$ , то в (4.5) остаются только параметрические члены. Они создадут поляризацию с частотой  $\omega_1$ , которая в свою очередь приведет

к появлению поля с частотой  $\omega_1$ . Предположение, что  $V_{ab} = 0$ , не самосогласовано. На примере этого крайнего случая ясно видна важность вопроса о связи амплитуд полей с реакцией материальной системы на поля.

### § 5. Связь между нелинейной средой и электромагнитными типами колебаний

Вопрос об обратной реакции материальной системы на электромагнитные типы колебаний давно анализировался Бломбергенем и Паундом [35]. Они рассматривали прецессирующую намагниченность при магнитном резонансе как источник электромагнитных типов колебаний. Этот способ применялся в дальнейшем многими авторами [15—17, 36, 37]. Математически уравнения движения классического гармонического осциллятора (или осцилляторов), соответствующего электромагнитному типу (или типам) колебаний, добавляются к уравнениям движения для элементов матрицы плотности. Мы ограничимся случаем электрического дипольного взаимодействия и разложим электрическое поле по нормальным типам колебаний с динамическими переменными  $p_\lambda(t)$ :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -(4\pi)^{1/2} \sum_{\lambda} p_{\lambda}(t) \mathbf{E}_{\lambda}(\mathbf{r}), \quad (5.1)$$

где действительные функции  $\mathbf{E}_{\lambda}$  образуют нормированную ортогональную систему

$$\int \mathbf{E}_{\lambda}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}_{\mu}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \delta_{\lambda\mu}. \quad (5.2)$$

Джейнс [36] дал изящное рассмотрение связи между полуклассическим подходом и строгой теорией с квантованными гармоническими осцилляторами. Классическое уравнение движения для  $\lambda$ -го гармонического осциллятора можно представить в виде

$$\ddot{p}_{\lambda}(t) + \frac{\omega_{\lambda}}{Q_{\lambda}} \dot{p}_{\lambda}(t) + \omega_{\lambda}^2 p_{\lambda}(t) = -\frac{(4\pi)^{1/2}}{\epsilon\mu} \int \frac{\partial^2 \langle \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \rangle}{\partial t^2} \times \\ \times \mathbf{E}_{\lambda}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + \frac{1}{2} (F_{\text{внешн}} e^{-i\omega t} + F_{\text{внешн}}^* e^{+i\omega t}). \quad (5.3)$$

Затухание типа колебаний, которое обусловлено наведенными токами и потерями за счет связи, описывает-

ся феноменологическим членом, содержащим добротность  $Q_{\lambda}$ ; через  $\epsilon$  и  $\mu$  обозначены линейные электрическая и магнитная восприимчивости среды, не содержащие членов, которые явно входят в среднее значение поляризации;

$$\langle \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \rangle = N \sum_{nn'} \mathfrak{P}_{nn'} \rho_{nn'}(\mathbf{r}, t). \quad (5.4)$$

Последний член в (5.3) представляет внешнюю вынуждающую силу, которой является, например, входной когерентный сигнал или мощность, поступающая от внешнего генератора накачки.

Уравнения (5.3) после подстановки выражения (5.4) нужно решить совместно с уравнениями движения (2.1) для элементов матрицы плотности. Заметим, что  $\mathcal{H}_{\text{ког}}$  — линейная функция динамических переменных  $p_{\lambda}(t)$ . Теперь также возможно найти стационарное решение, разложив в ряды все элементы  $\rho_{nn'}(t)$  и все переменные  $p_{\lambda}(t)$ . Эта процедура, которая быстро становится громоздкой, будет проиллюстрирована на нескольких примерах.

В случае СВЧ или оптического квантового генератора с некогерентной накачкой мы имеем двухуровневую атомную систему и один электромагнитный тип колебаний, который создает осциллирующее поле в месте расположения активных частиц (с плотностью  $N \text{ см}^{-3}$ ). Следует рассматривать совместно четыре уравнения: уравнения для постоянной составляющей разности населенностей  $\rho_{bb}^{\text{пост}} - \rho_{aa}^{\text{пост}}$  для двух недиагональных фурье-компонент матрицы плотности  $\rho_{ba}^{(\omega)} = \rho_{ab}^{(-\omega)*}$  и  $\rho_{ab}^{(\omega)} = \rho_{ba}^{(-\omega)*}$  и для фурье-компоненты (для частоты  $\omega$ ) динамической переменной  $p_{\lambda}^{(\omega)}$ , соответствующей единственному типу колебаний с резонансной частотой  $\omega_{\lambda}$ , близкой к  $\omega$ . Уравнение (5.3) для этой стационарной компоненты можно написать в явной форме

$$p_{\lambda}^{(\omega)} = \rho_{\lambda}^{(-\omega)*} = \frac{(4\pi)^{1/2} N \omega^2}{\epsilon\mu (-\omega^2 + \omega_{\lambda}^2 - i\omega\omega_{\lambda}/Q_{\lambda})} \times \\ \times \left[ \int \mathfrak{P}_{ba} \cdot \mathbf{E}_1(\mathbf{r}) \rho_{ab}^{(\omega)}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + \int \mathfrak{P}_{ab} \cdot \mathbf{E}_1(\mathbf{r}) \rho_{ba}^{(\omega)}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right]. \quad (5.5)$$

Здесь были использованы свойства ортонормированности действительных функций  $E_{\lambda}$ . Решение уравнения (5.5) совместно с уравнениями для элементов матрицы плотности детально описано Файном [18] и Дэвисом [37]. Ими получено условие возбуждения стационарных колебаний в мазере.

В качестве следующего примера рассмотрим параметрический случай низшего порядка, обсуждавшийся в § 2. Предположим, что имеются три типа колебаний резонатора с резонансными частотами  $\omega_{\lambda_1} \sim \omega_1$ ,  $\omega_{\lambda_2} \sim \omega_2$  и  $\omega_{\lambda_3} \sim \omega_1 + \omega_2$ . После того как уравнения для матричных элементов плотности решены и элементы выражены через полевые динамические переменные  $p_{\lambda_1}$ ,  $p_{\lambda_2}$  и  $p_{\lambda_3}$ , из уравнений (2.22) и (5.1) получаются выражения для среднего значения поляризации в функции этих полевых переменных. Они могут быть представлены с помощью линейной и нелинейной восприимчивостей

$$\begin{aligned} \langle P^{(\omega_1)}(r) \rangle &= -\chi(\omega_1) (4\pi)^{3/2} \cdot E_{\lambda_1}(r) p_{\lambda_1}^{(\omega_1)} + \\ &+ (4\pi)^2 \chi^{NL}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2) : E_{\lambda_3}(r) E_{\lambda_2}(r) p_{\lambda_2}^{(-\omega_2)} p_{\lambda_3}^{(\omega_3)}, \\ \langle P^{(\omega_2)}(r) \rangle &= -\chi(\omega_2) (4\pi)^{3/2} \cdot E_{\lambda_2}(r) p_{\lambda_2}^{(\omega_2)} + \\ &+ (4\pi)^2 \chi^{NL}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : E_{\lambda_3}(r) E_{\lambda_1}(r) p_{\lambda_1}^{(-\omega_1)} p_{\lambda_3}^{(\omega_3)}, \\ \langle P^{(\omega_3)}(r) \rangle &= -\chi(\omega_3) (4\pi)^{3/2} \cdot E_{\lambda_3}(r) p_{\lambda_3}^{(\omega_3)} + \\ &+ (4\pi)^2 \chi^{NL}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : E_{\lambda_1}(r) E_{\lambda_2}(r) p_{\lambda_1}^{(\omega_1)} p_{\lambda_2}^{(\omega_2)}. \end{aligned} \quad (5.6)$$

Эти выражения следует подставить в уравнения (5.3) для удерживаемых фурье-компонент динамических переменных  $p_{\lambda_1}^{(\omega_1)} = p_{\lambda_1}^{(-\omega_1)*}$ ,  $p_{\lambda_2}^{(\omega_2)} = p_{\lambda_2}^{(-\omega_2)*}$ ,  $p_{\lambda_3}^{(\omega_3)} = p_{\lambda_3}^{(-\omega_3)*}$ . Все другие фурье-компоненты отбрасываются как нерезонансные. Таким образом получается система уравнений, описывающих нелинейную связь низшего порядка между электромагнитными типами колебаний

$$\begin{aligned} \left( -\omega_1^2 + \omega_{\lambda_1}^2 - \frac{i\omega_1 \omega_{\lambda_1}}{Q_{\lambda_1}} \right) p_{\lambda_1}^{(\omega_1)} &= -\frac{(4\pi)^2}{\epsilon\mu} \omega_1^2 p_{\lambda_1}^{(\omega_1)} \int E_{\lambda_1}(r) \cdot \\ &\cdot \chi(\omega_1) \cdot E_{\lambda_1}(r) dr + \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &+ \frac{(4\pi)^{5/2}}{\epsilon\mu} \omega_1^2 p_{\lambda_3}^{(\omega_3)} p_{\lambda_2}^{(-\omega_2)} \int E_{\lambda_1}(r) \cdot \chi^{NL}(\omega_1 = \\ &= \omega_3 - \omega_2) : E_{\lambda_3}(r) E_{\lambda_2}(r) dr + \frac{1}{2} F_{\text{внешн}} \end{aligned} \quad (5.7)$$

и два аналогичных равенства для  $p_{\lambda_2}^{(\omega_2)}$  и  $p_{\lambda_3}^{(\omega_3)}$ . Интеграл в первом члене правой части берется по всему объему резонатора. Он равен произведению «фактора заполнения» на линейную часть восприимчивости, не включенную в  $\epsilon$ . Второй член соответствует нелинейной связи низшего порядка. С помощью аналогичных методов Лэмб [38] (см. также [39]) рассмотрел нелинейную связь между типами колебаний в газовом оптическом квантовом генераторе.

Уравнения (5.7) аналогичны, конечно, связанным уравнениям для амплитуд, полученным в работе Армстронга и др. [3] (см. в особенности уравнение (4.9) работы [3]). Это скорее алгебраические, а не дифференциальные уравнения, так как они описывают стационарный отклик системы на периодические вынуждающие силы и колебательные нелинейные эффекты, а не эффекты для бегущих волн. Уравнения (5.7) являются несколько более общими, чем соответствующие уравнения Армстронга, поскольку в них учитывается механизм затухания и в нелинейной среде, и в стенках резонатора. Интегралы по объему образца в нелинейном члене соответствуют условию сохранения момента, или согласования фазовых скоростей в случае бесконечной однородной среды без потерь и однородных плоских волн. При  $\omega_1 = \omega_2$  уравнения (5.7) удобно применять для описания генерации второй СВЧ гармоники в ферритах или генерации гармоник в резонаторах лазеров.

Эту процедуру легко, конечно, обобщить на случай, когда учитываются нелинейные эффекты высших порядков, включая комбинационные эффекты. При равной нулю вынуждающей силе система нелинейных однородных уравнений может иметь отличное от нуля решение в том случае, когда случайное поле накачки создает некоторую инверсию населенностей. Если на одной частоте, скажем  $\omega_3$ , имеется большой входной сигнал, то на двух других,

меньших частотах могут одновременно возникнуть колебания из-за параметрических членов, смешанных с мажорными и индуцированными комбинационными членами. Чтобы показать, что все нелинейности в принципе включены в этот формализм, рассмотрим снова трехуровневую систему. Предположим, что три поля с частотами  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  и  $\omega_3$  возникают вследствие возбуждения трех электромагнитных типов колебаний с резонансными частотами  $\omega_{\lambda_1} \sim \omega_1$ ,  $\omega_{\lambda_2} \sim \omega_2$ ,  $\omega_{\lambda_3} \sim \omega_3$ . Сохраним только резонансные фурье-компоненты динамических переменных, соответствующих этим типам колебаний. Следовательно, реакция материальной системы на поля будет учтена, если к девяти уравнениям для матричных элементов плотности (4.4) прибавить следующие три уравнения для типов колебаний:

$$\begin{aligned}
 p_{\lambda_1}^{(\omega_1)} &= \frac{(4\pi)^{1/2}(\epsilon\mu)^{-1}\omega_1^2 N}{-\omega_1^2 + \omega_{\lambda_1}^2 - i\omega_1\omega_{\lambda_1}/Q_{\lambda_1}} \times \\
 &\times \int (\mathfrak{P}_{ab} \cdot \mathbf{E}_{\lambda_1}(\mathbf{r})) \rho_{ba}^{(\omega_1)}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + F^{(\omega_1)}, \\
 p_{\lambda_2}^{(\omega_2)} &= \frac{(4\pi)^{1/2}(\epsilon\mu)^{-1}\omega_2^2 N}{-\omega_2^2 + \omega_{\lambda_2}^2 - i\omega_2\omega_{\lambda_2}/Q_{\lambda_2}} \times \\
 &\times \int (\mathfrak{P}_{bc} \cdot \mathbf{E}_{\lambda_2}(\mathbf{r})) \rho_{cb}^{(\omega_2)}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + F^{(\omega_2)}, \\
 p_{\lambda_3}^{(\omega_3)} &= \frac{(4\pi)^{1/2}(\epsilon\mu)^{-1}\omega_3^2 N}{-\omega_3^2 + \omega_{\lambda_3}^2 - i\omega_3\omega_{\lambda_3}/Q_{\lambda_3}} \times \\
 &= \int (\mathfrak{P}_{ac} \cdot \mathbf{E}_{\lambda_3}(\mathbf{r})) \rho_{ca}^{(\omega_3)}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} + F^{(\omega_3)}.
 \end{aligned} \tag{5.8}$$

Недиагональные матричные элементы, полученные из уравнений (4.4) и зависящие от всех степеней  $p_{\lambda_1}^{(\pm\omega_1)}$ ,  $p_{\lambda_2}^{(\pm\omega_2)}$  и  $p_{\lambda_3}^{(\pm\omega_3)}$ , можно представить в (5.8). Этот метод описания соответствует эксперименту Келлингтона [40]. Полученные алгебраические уравнения могут быть в принципе решены относительно компонент  $p_{\lambda}^{(\pm\omega)}$ . Вслед-

ствие сложных нелинейностей в правой части необходимо применять приближенные методы. Представляется, однако, маловероятным, что способ, использованный Клогстоном [16], который в выражении для поля реакции удерживал линейные по  $p_{\lambda_1}^{(\omega_1)}$  и  $p_{\lambda_2}^{(\omega_2)}$  члены, позволит получить удовлетворительное описание квантовых генераторов.

## § 6. Заключение

Получены общие выражения для комплексных нелинейных восприимчивостей при наличии затухания, которые одновременно описывают параметрические, мазерные и индуцированные комбинационные эффекты. Если приложенные поля близки к резонансам атомной системы и их амплитуды соответствуют расширениям линий, превышающим их естественную ширину, разделить эти эффекты невозможно. При этом следует рассматривать общую поляризацию, которая является смесью линейных и нелинейных эффектов, и считать ее источником, взаимодействующим с электромагнитными полями. Получены связанные уравнения для динамических переменных поля и матрицы плотности произвольной нелинейной среды; однако для нахождения стационарных решений в явном виде необходимо удерживать только малое число членов в степенном разложении, отбрасывать нерезонансные члены и применять другие приближения.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Blaton J., Zs. Phys., **69**, 835 (1931).
2. Guttinger P., Helv. Phys. Acta, **5**, 237 (1932).
3. Armstrong J., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S., Phys. Rev., **127**, 1918 (1962). (См. приложение I к настоящей книге.)
4. Karplus R., Schwinger J., Phys. Rev., **73**, 1020 (1948).
5. Kubo R., Tomita K., Journ. Phys. Soc. Japan, **9**, 888 (1954).
6. Wangsness R. K., Bloch F., Phys. Rev., **89**, 278 (1953).
7. Bloch F., Phys. Rev., **102**, 104 (1956).
8. Redfield A. G., IBM Journ., **1**, 19 (1957).
9. Abragam A., Principles of Nuclear Magnetism, Oxford, 1961. (Имеется перевод: А. Абрагам, Ядерный магнетизм, ИЛ, 1964.)

10. Hubbard P. S., Rev. Mod. Phys., **33**, 249 (1961).
11. Javan A., Phys. Rev., **107**, 1579 (1957).
12. Winter J. M., Journ. Phys. Rad., **19**, 802 (1958).
13. Javan A., Journ. Phys. Rad., **19**, 806 (1959).
14. Yatsiv S., Phys. Rev., **113**, 1538 (1959).
15. Anderson P. W., Journ. Appl. Phys., **28**, 1049 (1957).
16. Clogston A. M., Journ. Chem. Phys. Sol., **4**, 271 (1958). (Имеется перевод в сб. «Квантовые парамагнитные усилители», ИЛ, 1960.)
17. Файн В. М., Ханин Я. И., Яшин Э. Г., ЖЭТФ, **41**, 986 (1961).
18. Файн В. М., Ханин Я. И., ЖЭТФ, **41**, 1498 (1961).
19. Kastler A., Rendiconti S. I. F. XVII Corso, New York, 1962, p. 167.
20. Barrat J. P., Journ. Phys. Rad., **20**, 541, 633, 657 (1959).
21. Cohen-Tannoudji C., Rendiconti S. I. F. XVII Corso, New York, 1962, p. 240.
22. Wilcox L. R., Lamb W. E., Phys. Rev., **119**, 1915 (1960).
23. Lamb W. E., Sanders T. M., Phys. Rev., **119**, 1901 (1960).
24. Feynman R. P., Vernon F. L., Hellwarth R. W., Journ. Appl. Phys., **28**, 49 (1957).
25. Ayres W. P., Vartanian P. H., Melchor J. L., Journ. Appl. Phys., **27**, 188 (1956).
26. Bloembergen N., Proceeding of the Third International Conference on Quantum Electronics, New York, 1963.
27. Price P. J., Phys. Rev., **130**, 1792 (1963).
28. Kelley P. L., Journ. Phys. Chem. Sol., **24**, 607 (1963).
29. Messiah A., Quantum Mechanics, New York, 1961.
30. Shen Y. R., Phys. Rev. (в печати).
31. Fiutak J., Canad. Journ. Phys., **41**, 12 (1963).
32. Dirac P. A. M., Proc. Roy. Soc., **A114**, 143, 720 (1927).
33. Kramers H. A., Quantum Mechanics, Amsterdam, 1959, p. 482.
34. Eckard G., Hellwarth R. W., McClung F. J., Schwarz J. E., Weiner D., Woodbury E. J., Phys. Rev. Lett., **9**, 455 (1962).
35. Bloembergen N., Pound R. V., Phys. Rev., **95**, 8 (1954).
36. Jaynes E. T., Cummings F. W., Proc. IEEE, **51**, 89 (1963).
37. Davis L. W., Proc. IEEE, **51**, 76 (1963).
38. Lamb W. E., Phys., Rev., **134**, A1429 (1964).
39. Haken H., Sauerman H., Zs. Phys., **173**, 261 (1963).
40. Kellington C. M., Phys., Rev. Lett., **9**, 57 (1962).

## СОДЕРЖАНИЕ

Вступительная статья .....	5
Литература .....	28
Предисловие .....	31
<b>Глава 1. Классическое введение. (Перевод Д. Н. Клышко)</b> .....	33
§ 1. Нелинейные восприимчивости .....	33
§ 2. Классические атомные модели нелинейности .....	35
Газ свободных электронов (35). Ангармонический осциллятор (39). Магнитные волчки (42).	
§ 3. Феноменологическая интерпретация нелинейной поляризации .....	44
§ 4. План дальнейшего изложения .....	55
Литература .....	56
<b>Глава 2. Квантовая теория нелинейных восприимчивостей. (Перевод Д. Н. Клышко)</b> .....	59
§ 1. Уравнение Лиувилля для матрицы плотности .....	59
§ 2. Случайные возмущения и затухание .....	61
§ 3. Отклик на периодические возмущения .....	66
§ 4. Нелинейная проводимость низшего порядка .....	72
§ 5. Нелинейные восприимчивости, описывающие процессы типа комбинационного рассеяния .....	80
§ 6. Резонансные эффекты высших порядков .....	88
§ 7. Соотношения Крамерса—Кронига .....	89
§ 8. Квантование полей .....	92
Процессы нелинейного поглощения и рассеяния (92). Сечения рассеяния и нелинейные восприимчивости (98). Когерентные квантовые состояния. Пределы применимости полуклассического подхода (101). Квантовая теория затухания (104).	
Литература .....	108
<b>Глава 3. Уравнения Максвелла в нелинейной среде. (Перевод В. Г. Дмитриева)</b> .....	110
§ 1. Энергетические соотношения .....	111
§ 2. Действующие поля в оптически плотной среде .....	117
§ 3. Уравнения связанных волн в нелинейной среде .....	120
§ 4. Частное решение уравнений Максвелла для недиспергирующей среды с нелинейностью произвольного вида .....	123
Литература .....	125



<b>Глава 4. Распространение волн в нелинейной среде. (Перевод В. Г. Дмитриева)</b> .....	126
§ 1. Генерация волн на комбинационных частотах заданными электромагнитными полями; граничные условия на поверхности нелинейной среды ..... Анизотропная среда (138).	126
§ 2. Взаимодействие двух связанных волн. Генерация второй гармоники .....	140
§ 3. Взаимодействия электромагнитных волн с акустическими волнами ..... Акустические нелинейности (147). Рассеяние Мандельштама — Бриллюэна (150).	147
§ 4. Параметрическое преобразование частоты вниз и параметрическое возбуждение автоколебаний .....	155
§ 5. Вынужденное комбинационное рассеяние .....	164
§ 6. Связь между стоксовыми и антистоксовыми волнами .....	175
Литература .....	187
<b>Глава 5. Экспериментальные результаты. (Перевод А. Г. Ершова)</b> .....	190
§ 1. Экспериментальная проверка законов нелинейного взаимодействия световых волн в объеме и на поверхности нелинейной среды ..... Геометрические соображения (192). Возникновение волн гармоник при отражении (195). Генерация суммарной и разностной частот (199).	190
§ 2. Определение абсолютной величины нелинейной восприимчивости .....	202
§ 3. Многомодовая структура и флуктуационные явления .....	204
§ 4. Нелинейные восприимчивости пьезоэлектрических кристаллов ..... Температурная зависимость и дисперсия нелинейной восприимчивости в KDP (214). Нелинейные восприимчивости полупроводников (217).	210
§ 5. Электрические квадрупольные эффекты .....	221
§ 6. Генерация третьей гармоники .....	224
§ 7. Многофотонное поглощение .....	226
§ 8. Зависимость показателя преломления от интенсивности света .....	229
§ 9. Вынужденное комбинационное рассеяние .....	232
§ 10. Стоксовы и антистоксовы компоненты высших порядков .....	239
§ 11. Комбинационные восприимчивости .....	248
Литература .....	253
<b>Глава 6. Заключение. (Перевод А. Г. Ершова)</b> .....	257
§ 1. Нелинейности в лазерах .....	258
§ 2. Другие нерешенные проблемы .....	259
Литература .....	262

## Приложения

I. Дж. Армстронг, Н. Бломберген, Ж. Дюкуэнг, П. Першан. <b>Взаимодействие световых волн в нелинейном диэлектрике. (Перевод А. Г. Ершова)</b> .....	265
§ 1. Введение .....	265
§ 2. Вывод квантовомеханических выражений для нелинейных источников ..... А. Нелинейные источники, зависящие от $E^2$ (269). Б. Нелинейные источники, зависящие от $E^3$ (276). В. Нелинейная ионная поляризация (279).	268
§ 3. Соотношения между величинами, связанными с макроскопическими полями в нелинейных диэлектриках ..... А. Газы (281). Б. Изотропные и кубические конденсированные среды (286). В. Анизотропные кристаллы (288).	281
§ 4. Связь между электромагнитными волнами .....	292
§ 5. Генерация второй гармоники. Точное решение ... А. Согласованные фазовые скорости (300). Б. Неточное согласование фазовых скоростей (304). В. Среда с потерями (307).	299
§ 6. Три связанные волны. Точное решение ..... А. Точное согласование, $\Delta k=0$ (311). Б. Неточное согласование (317). В. Среда с потерями (318).	308
§ 7. Четыре взаимодействующие волны. Генерация третьей гармоники .....	318
§ 8. Применения теории к анализу экспериментальных ситуаций ..... А. Генерация гармоник и субгармоник (321). Б. Преобразование частоты (324). В. Линейный электрооптический эффект на нулевой частоте и на сверхвысоких частотах (325).	321
§ 9. Об учете действующего поля в анизотропной среде .....	328
§ 10. Заключение .....	330
Литература .....	331
II. Н. Бломберген, П. Першан. <b>Световые волны на границе нелинейной среды. (Перевод В. Г. Дмитриева)</b> ...	333
§ 1. Введение .....	333
§ 2. Гармоники, возникающие на границе (частный случай) .....	335
§ 3. Общие законы преломления и отражения .....	342
§ 4. Поляризация и интенсивность волн с комбинационными частотами ..... А. Перпендикулярная поляризация (348). Б. Параллельная поляризация (350). В. Дальнейшие обобщения и примеры (355).	346
§ 5. Полное отражение и прохождение .....	359

§ 6. Нелинейная плоскопараллельная пластина .....	364
§ 7. Метод интегральных уравнений в задачах о распространении волн в нелинейных средах .....	372
§ 8. Обсуждение и выводы .....	376
Литература .....	381
III. Н. Бломберг, И. Шен. Квантовомеханическое сравнение нелинейных восприимчивостей параметрических сред, лазеров и комбинационных лазеров. (Перевод Д. Н. Клышко) .....	383
§ 1. Введение .....	383
§ 2. Общий расчет нелинейных проводимостей и восприимчивостей .....	387
§ 3. Нелинейные восприимчивости двухуровневой системы .....	396
А. Два вращающихся поля (396). Б. Одно вращающееся поле и одно продольное осциллирующее поле (400). В. Два вращающихся поля и одно продольное поле (405).	
§ 4. Нелинейная восприимчивость трехуровневой системы .....	406
§ 5. Связь между нелинейной средой и электромагнитными типами колебаний .....	414
§ 6. Заключение .....	419
Литература .....	419

Н. Бломберг

### Нелинейная оптика

Редакторы В. В. Рабин и И. Г. Нахимсон  
Художник В. И. Заикин  
Художественный редактор Е. И. Вескова  
Технический редактор Л. М. Харьковская  
Корректор С. Г. Троцкая

Сдано в производство 28/X 1965 г. Подписано к печати 2/VI 1966 г.  
Бумага 84 × 108<sup>1</sup>/<sub>32</sub> = 6,62 бум. л. 22,26 усл. печ. л. Уч.-изд. л. 20,22  
Изд. № 2/3384 Цена 1 р. 68 к. Зак. 1691  
Темплан 1966 г. Изд-ва «Мир» пор. № 54

ИЗДАТЕЛЬСТВО «МИР»  
Москва, 1-й Рижский пер., 2

Экспериментальная типография ВНИИПП Комитета по печати при Совете  
Министров СССР, Москва, И-51, Цветной бульвар, 30.