

FUNDAMENTALS OF QUANTUM ELECTRONICS

by

R. H. PANTELL,
Professor, Electrical Engineering
Stanford University,
Stanford, California

H. E. PUTHOFF,
Research Associate
Stanford University,
Stanford, California

JOHN WILEY & SONS, INC.,
NEW YORK, LONDON, SYDNEY, TORONTO
1963

Р. Пантел, Г. Путхоф

ОСНОВЫ КВАНТОВОЙ ЭЛЕКТРОНИКИ

Перевод с английского

Э. С. ВОРОНИНА и В. С. СОЛОМАТИНА

Под редакцией

Ю. А. ИЛЬИНСКОГО

С предисловием

чл.-корр. АН СССР Р. В. ХОХЛОВА

ИЗДАТЕЛЬСТВО «МИР»

Москва 1972

ПРЕДИСЛОВИЕ К РУССКОМУ ИЗДАНИЮ

На современном этапе развития науки и техники квантовая электроника играет все возрастающую роль.

Молекулярные генераторы, ставшие стандартами частоты, парамагнитные усилители с предельно низкими собственными шумами и, наконец, лазеры, открывшие эру когерентной оптики, характеризуют основные этапы становления квантовой электроники как науки.

В настоящее время большое число ученых и инженеров занято изучением проблемы взаимодействия лазерного излучения с веществом и его использования в разнообразных практических устройствах. Возникают новые направления, например, нелинейная оптика и голография, обязанные своим появлением лазерам. Лазеры уже используются в системах связи, локации, обработки материалов, в метеорологии, медицине, в агротехнике и т. д. Можно без преувеличения утверждать, что внедрение достижений квантовой электроники в промышленность и другие области народного хозяйства явится одним из наиболее важных направлений в осуществлении научно-технического прогресса. В этих условиях изучение квантовой электроники как дисциплины в вузах приобретает очень большое значение.

Книга Р. Пантела и Г. Путхофа — это фактически хороший учебник по квантовой электронике, написанный с большим педагогическим мастерством. Предполагается, что этот предмет изучается после курсов квантовой механики и электродинамики. Отбор материала представляется удачным, книга посвящена физическим основам квантовой электроники; описание работы конкретных приборов имеет лишь иллюстративное значение. Это обстоятельство, а также выяснение физической сущности рассматриваемых явлений, а не только их математическое описание, что иногда имеет место, делают учебник особенно ценным и обеспечивают ему долгую жизнь.

Изложение материала последовательно и не перегружено деталями. Особенно хочется отметить удачно подобранные задачи и упражнения, которыми заканчивается каждая глава. Для лиц, специализирующихся в области квантовой электроники, пользы их проработки трудно переоценить.

Книга написана на основе курса лекций, читавшегося авторами в Стенфордском университете — одном из ведущих центров

США в области квантовой электроники. Проф. Пантел — крупный ученый, автор многих важных работ по квантовой электронике и нелинейной оптике, д-р Путхоф — его ближайший сотрудник. Поэтому научный уровень изложения очень высок. Следует специально отметить, что собственные научные интересы авторов при отборе материала проявлены в разумной степени, а не чрезмерно, как это часто случается.

Таким образом, книга является хорошим учебным пособием, полезным и для студентов, и для специалистов, работающих как в области квантовой электроники, так и в смежных областях.

Р. ХОХЛОВ

ПРЕДИСЛОВИЕ

В связи с тем, что за последнее время квантовая электроника нашла весьма широкое применение, возникла необходимость в создании учебника, в котором к анализу физического характера явления и описанию приборов квантовой электроники подходили бы с единой точки зрения. Такой подход желателен для любой вновь возникающей области науки, но необходимость в нем особенно велика в квантовой электронике в связи с ее быстрым развитием, поскольку соответствующая информация должна поступать от физика-теоретика к специалисту в области прикладной физики и далее к инженеру. В результате специалисты в области прикладной физики и инженеры должны усваивать обширный материал, от основных элементов квантовой механики до исследования поведения таких сложных макроскопических устройств, как лазеры и параметрические системы.

Мы надеемся, что предлагаемый учебник поможет специалисту в области прикладной физики и инженеру ликвидировать разрыв между теорией и экспериментом, т. е. начиная с основных принципов теории (уравнение Шредингера или его эквивалент) при помощи довольно стройного последовательного анализа перейти к описанию макроскопического поведения приборов квантовой электроники, применяемых на практике. Изложенный в учебнике материал использовался как основа курса для выпускников и главным образом аспирантов первого года обучения Стенфордского университета, специализирующихся в области прикладной физики или электроники, т. е. для тех, кто прослушал вводный курс квантовой механики. Таким образом, слушатели были подготовлены к тому, чтобы овладеть основными элементами квантовой механики, излагаемыми в этом курсе, а затем переходить к изучению более мощного аппарата для анализа поведения макроскопических систем, в основе которого лежат такие процессы, как вынужденное излучение, многофотонные процессы и фотон-фононные взаимодействия. Представленный в книге материал как раз предназначен для этой цели и, следовательно, служит вводным курсом к более детальному изучению квантовой электроники, теории полупроводников и оптических свойств твердых тел. Методы анализа, развитые в книге, иллюстрируются на примерах применения их к задачам,

представляющим интерес. Однако упор делается на развитие методов анализа для решения таких задач, а не на обсуждение приборов квантовой электроники.

Цель нашей книги — совершить переход от математических постулатов и формализмов квантовой механики к уравнениям, включающим интересующие нас макроскопические переменные. При этом макроскопические наблюдаемые определяются средними значениями оператора, соответствующего наблюдаемой величине, а среднее значение определяется матрицей плотности. Затем уравнения записываются только через средние значения путем подстановки эквивалентных выражений для матрицы плотности. В результате приходим к системе уравнений, выраженных через такие макроскопические переменные, как поляризация и электрическое поле. При полуклассическом подходе, когда электромагнитное поле не квантуется, необходимо к уравнениям для средних значений добавить максвелловские уравнения электромагнитного поля. Так образуется самосогласованная система уравнений.

Существенное внимание было уделено вопросу выбора единиц измерений, т. е. использовать ли единицы СГС или МКС. Несмотря на то что в литературе по квантовой электронике широко применяется система единиц СГС, при составлении курса, адресованного в основном специалистам по прикладной физике и инженерам, необходимо было учесть возрастающую тенденцию к использованию системы МКС. На основании просьб самих студентов, зная при этом о разногласиях, встречающихся в литературе, с одной стороны, и о том, что студент считает удобной ту систему единиц, которую легче изучать, с другой стороны, было окончательно отдано предпочтение последней системе, т. е. была принята система МКС.

Гл. 1 книги представляет собой обзор некоторых вопросов квантовой механики, имеющих отношение к материалу, излагаемому в последующих главах. Раскрывается понятие матрицы плотности и подчеркивается ее значимость, поскольку матрица плотности образует основу взаимосвязи квантовомеханических операторов и наблюдаемых величин.

В гл. 2 рассматривается взаимодействие между полем излучения и двухуровневой квантованной средой. Вводятся полуклассические уравнения, связывающие поляризацию, электромагнитное поле и населенность уровней энергии для случаев как дипольного перехода, так и перехода в системах со спином $1/2$.

Гл. 3 касается резонансного поглощения, насыщения и дисперсии. Параметры дипольного перехода выражаются через величины, которые получаются экспериментально, что позволяет оценить матричные элементы и времена релаксации. Обсуж-

дается частотная зависимость комплексного показателя преломления при наличии дипольного взаимодействия.

В гл. 4 дается описание лазера, включая условия самовозбуждения, стационарные режимы, переходные процессы, а также работу лазера с модулированной добротностью. Лазер с однородно уширенной линией описывается с помощью кинетических уравнений, полученных в предыдущей главе. Для лазера с неоднородно уширенной линией используются полуклассические уравнения.

В гл. 5 рассматривается взаимодействие нерезонансных полей и квантованной среды, т. е. случай, когда частота поля излучения отличается от частоты, связанной с переходом. Проводится анализ многофотонного поглощения и генерации гармоники. Для такого типа процессов высокого порядка вычислены вероятности переходов.

Гл. 6 посвящена сравнению полуклассического и квантово-электродинамического подходов к изучению взаимодействия излучения и вещества. В частности, в этой главе обсуждается случай, когда в уравнения входят члены, учитывающие спонтанное излучение, что приводит к модификации предыдущих результатов.

В гл. 7 изучается взаимодействие излучения с молекулярными колебаниями. Рассматриваются вынужденное и спонтанное рамановское и бриллюэновское рассеяние¹⁾, определяется порог возбуждения и условия фазового синхронизма.

В гл. 8 описываются оптические явления в полупроводниках и рассматривается взаимодействие излучения и системы, имеющей непрерывный энергетический спектр. В этой главе освещаются вопросы поглощения и фотопроводимости, а также рассматриваются полупроводниковые лазеры.

Громоздкие выводы, которые могли бы нарушить стройность изложения, либо вынесены в приложения, либо включены в задачи, приводимые в конце каждой главы. Задачи следует рассматривать как необходимое дополнение к тексту для развития некоторых концепций; последние лучше всего усваиваются при решении конкретного примера. Ряд задач носит характер скорее небольшого научного исследования, чем чисто иллюстративный. На практике исследователь должен уметь делать подходящие предположения и научиться пользоваться большим количеством дополнительной литературы. При решении задач исследовательского характера студент получит представление о том, чего

¹⁾ В отечественной литературе в этом случае используются термины «комбинационное рассеяние» и «рассеяние Манделштама — Бриллюэна». В переводе везде сохранена терминология автора. — *Прим. перев.*

могут ожидать от него или при работе над диссертацией или после ее окончания.

Авторы выражают свою благодарность проф. Иллинойского университета П. Коулмену, профессорам Калифорнийского университета в Беркли С. Шварцу и Е. Виннери за просмотр рукописи перед выходом в свет.

*Ричард Пантел
Гарольд Путхоф*

Стенфорд, Калифорния
июнь 1969 г.

ОБОЗНАЧЕНИЯ ¹⁾

- A — скорость спонтанной эмиссии
- A^\dagger — оператор, сопряженный с A
- $\langle A \rangle$ — среднее значение оператора A
- \mathbf{A} — векторный потенциал
- a — постоянная решетки
- a^\dagger, a — операторы рождения и уничтожения для бозонного поля (легко отличающиеся от постоянной решетки по контексту)
- $[A, B]$ — коммутатор операторов A и B
- \mathcal{A} — коэффициент затухания для мощности
- \mathbf{B} — магнитная индукция
- B_{ij} — тензор относительной диэлектрической непроницаемости
- b^* — величина, комплексно сопряженная с b
- C_T, C_L — постоянные жесткости кристалла для поперечных и продольных волн
- c — скорость света в вакууме
- \mathbf{D} — электрическая индукция
- d^3k — элемент объема в k -пространстве
- E_k — собственное значение энергии для k -го состояния
- \mathbf{E}, \mathcal{E} — напряженность электрического поля
- e — заряд электрона
- \mathbf{f} — сила
- f_{ji} — сила осциллятора для перехода $i \rightarrow j$
- F — коэффициент заполнения
- \mathbf{G} — вектор обратной решетки
- g — спектроскопический фактор расщепления
- $g_G(\Omega_i, \omega_0)$ — функция гауссовой формы линии
- g_i — кратность вырождения i -го уровня
- $g_L(\omega, \Omega)$ — функция лоренцевой формы линии (действительная часть)
- $\tilde{g}_L(\omega, \Omega)$ — комплексная функция лоренцевой формы линии
- g_s — стоксов коэффициент усиления на единицу длины

¹⁾ Остальные обозначения поясняются в тексте.

- H** — напряженность магнитного поля
 \hbar — $(1/2\pi) \times$ постоянную Планка
 $\hbar\mathbf{J}$ — момент количества движения
 $\hbar\Omega$ — разность энергий двух состояний
 \mathcal{H} — гамильтониан
 \mathcal{H}' — гамильтониан взаимодействия или гамильтониан возмущения
 \mathcal{H}_0 — невозмущенный гамильтониан
 \mathcal{H}^r — гамильтониан случайных взаимодействий
I — интенсивность (мощность на единицу площади)
i — мнимая единица, $\sqrt{-1}$
J — плотность тока
k, $|\mathbf{k}|$ — величина волнового вектора
 \mathbf{k} — волновой вектор
L — поправочный множитель Лоренца
 \mathbf{L} — момент количества движения
 \mathcal{L} — лагранжиан
M — масса атома
 \mathbf{M} — намагниченность
m — масса электрона
 m^* — эффективная масса электрона
 \mathbf{m} — магнитный дипольный момент
 m_h^* — эффективная масса дырки
N — разность населенностей единицы объема, $N_2 - N_1$
 \bar{N} — разность населенностей единицы объема, нормированная к стационарному значению
 N^e — разность населенностей единицы объема при равновесных условиях
 N_V — число частиц в единице объема
n — число фотонов
 \mathcal{N} — число
P — мощность
 \mathbf{P} — поляризация
p — канонический импульс, сопряженный с координатой *q*
 p_n — вероятность того, что квантовомеханическая система характеризуется вектором состояния $|\psi_n\rangle$
 $p(\omega)$ — плотность мод (число мод на единицу объема и единицу частотного интервала)
 p_{ijrs} — фотоупругие коэффициенты
 \mathcal{P} — мощность на единицу объема
Q — относительное смещение атомов или молекул, $q_2 - q_1$
 Q_c, Q_l — добротность резонатора, определяющая ширину линии

- q — обобщенная координата
 \mathcal{R} — коэффициент отражения по мощности
 T — температура
 T_1 — время продольной релаксации
 T_2 — время поперечной релаксации
 \mathbf{T} — вращательный момент
 Sp — след
 U — энергия на единицу объема
 V — объем
 \mathcal{U}° — потенциал
 v — скорость
 W_{jk} — скорость перехода из состояния j в состояние k
 \mathcal{W}° — энергия
 Z — эффективный заряд
 α — поляризуемость
 β — магнетон Бора
 Γ — коэффициент затухания для мощности
 γ — гиромагнитное отношение
 $\Delta\omega_G$ — ширина гауссовой линии
 $\Delta\omega_L$ — ширина лоренцевой линии
 δ_{ij} — символ Кронекера
 $\delta(x - x')$ — дельта-функция Дирака
 ϵ — диэлектрическая проницаемость
 ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума
 ζ — телесный угол
 η — показатель преломления
 κ — постоянная Больцмана или диэлектрическая постоянная (различие видно из текста)
 λ — длина волны
 μ — магнитная проницаемость
 μ_e — подвижность электронов
 μ_h — подвижность дырок
 μ_0 — магнитная проницаемость вакуума
 $\boldsymbol{\mu}$ — электрический дипольный момент
 $|\mu_k\rangle$ — не зависящий от времени собственный вектор состояния
 $|\mu_{12}|$ — матричный элемент оператора дипольного момента, связывающий состояния $|1\rangle$ и $|2\rangle$
 ν — частота
 ρ — оператор плотности
 ρ_{ij} — ij -й матричный элемент оператора плотности ρ
 ρ_m — плотность массы
 $\rho(k)$ — вероятность того, что электрон будет найден в единице объема в k -пространстве
 $\rho(\nu)$ — электромагнитная энергия на единицу объема и единицу частотного интервала

- σ — электропроводность
 σ_c — эффективное сечение
 $\sigma, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$ — спиновые операторы Паули
 τ — постоянная затухания
 τ_c — постоянная затухания резонатора
 τ_d — постоянная затухания, связанная с дифракционными потерями резонатора
 τ_m — постоянная затухания, связанная с потерями на зеркалах резонатора
 τ_s — постоянная затухания, связанная с потерями на рассеяние и поглощение в резонаторе
 τ_{sp} — время спонтанной эмиссии
 Φ — скалярный потенциал
 $|\Phi_k\rangle$ — собственный вектор
 φ — плотность фотонов (плотность электромагнитной энергии, деленная на $\hbar\omega$)
 $\bar{\varphi}$ — нормированная к стационарному значению плотность фотонов
 χ_B — бриллюэновская восприимчивость
 χ_R — рамановская восприимчивость
 $\chi = \chi' + i\chi''$ — восприимчивость
 ψ — волновая функция
 $|\psi\rangle$ — произвольный вектор состояния
 ω — угловая частота
 ω_c — угловая частота резонатора
 $\mathbf{1}_x, \mathbf{1}_y, \mathbf{1}_z$ — единичные векторы в направлениях x, y, z

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

Вводные курсы квантовой механики обычно начинаются с обзора прогрессирующей несостоятельности классической физики при объяснении некоторых физических экспериментов. Затем эта несостоятельность подчеркивается при объяснении корпускулярно-волнового дуализма и присущего материи свойства дискретности — концепций, которые полностью не могут быть развиты с классической точки зрения. Чтобы более полно объяснить эти концепции, необходимо переформулировать фундаментальные постулаты, на которых основывалась классическая физика. Для этой цели вводится понятие волновой функции ψ и постулируется, что эта функция содержит всю информацию, которая может быть известна о системе. Эта функция в нерелятивистском случае удовлетворяет волновому уравнению Шредингера

$$\mathcal{H}\psi = i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t}. \quad (1.1)$$

Затем излагается теория волновой механики и в процессе ее развития подробно решается большое количество относительно простых задач, таких, например, как задача о гармоническом осцилляторе и атоме водорода.

К сожалению, даже эти сравнительно простые задачи требуют соответствующего математического фундамента. Поэтому у студента может сложиться впечатление, что решение задач, представляющих не только чисто академический интерес, безнадежно сложно. В действительности же применение квантовой механики к решению некоторых важных практических задач часто проще во многих отношениях.

В начальной стадии изучения квантовой механики много усилий направлено на установление явной формы волновой функции ψ , которая определяется гамильтонианом, описывающим рассматриваемую систему. Однако при применении квантовой механики к макроскопическим процессам обычно нет необходимости определять точный вид волновой функции. Можно более успешно подойти к решению проблемы, поступая так, как это делается при выводе теоремы Эренфеста. Напомним, что из

теоремы Эренфеста, вывод которой является основным в квантовой механике, следует, что уравнения движения для средних значений представляют собой близкие аналоги классических уравнений. Этот вывод весьма важен, поскольку результирующие уравнения не зависят от точного вида волновых функций. Таким образом обеспечивается «мост» для перехода от уравнений квантовой механики к уравнениям, по форме аналогичным классическим.

Введение формализма матрицы плотности, позволяющее получить уравнения движения для средних значений квантовомеханических переменных без необходимости определять в явном виде используемые волновые функции, дает наиболее компактный способ приложения описанного выше подхода. В этом подходе нам необходимо лишь предположить, что существует полный набор известных, но не конкретных волновых функций, а затем непосредственное применение формализма квантовой механики приведет к необходимым уравнениям.

Гл. 1 посвящена обзору некоторых вопросов квантовой механики, относящихся к развитию формализма матрицы плотности. В § 2 и 3 приводятся постулаты и обсуждается математический аппарат, необходимый в дальнейшем. В § 4 дается определение оператора плотности и рассматриваются его свойства.

§ 2. НЕКОТОРЫЕ ОСНОВНЫЕ ПОНЯТИЯ

Предположим, что всю возможную информацию о системе можно получить из *функции состояния* ψ , которая удовлетворяет уравнению Шредингера (1.1), где \mathcal{H} — оператор Гамильтона, а $2\pi\hbar$ — постоянная Планка. Функцию ψ удобно нормировать следующим образом:

$$\int \psi^* \psi dV = 1.$$

Здесь звездочка означает комплексное сопряжение, а интеграл берется по всем координатам, от которых зависит ψ . В общем случае ψ можно выразить через целый ряд независимых переменных, таких, как пространственные координаты, спин или импульс.

Запись можно упростить, если принять обозначения «бра» и «кет», введенные Дираком [1]. Вектор состояния ψ обозначается $|\psi\rangle$ и называется *кет-вектором*. Существует одно-однозначное соответствие между каждым кет-вектором и другим вектором $\langle\psi|$, называемым *бра-вектором*, причем произведение бра- и кет-векторов $\langle\psi|\psi\rangle$ представляет собой интеграл $\int \psi^* \psi dV$. Вообще произведение любых бра-векторов $\langle u|$ и кет-векторов $|v\rangle$ пред-

ставляет собой $\int u^* v dV$. Постулируем, что это произведение, называемое *скалярным* произведением, имеет следующие свойства:

$$\begin{aligned}\langle u | v \rangle &= \langle v | u \rangle^*, \\ \langle u | u \rangle &\geq 0.\end{aligned}$$

Эти свойства согласуются с интегральным представлением скалярного произведения.

В обозначениях Дирака волновое уравнение для кет-вектора имеет вид

$$\mathcal{H} |\psi\rangle = i\hbar \frac{\partial |\psi\rangle}{\partial t},$$

а соответствующее условие нормировки будет

$$\langle \psi | \psi \rangle = 1.$$

Рассмотрим сначала изолированную систему, свободную от какого-либо взаимодействия или возмущения. Для такой системы существует ряд состояний, обозначаемых $|\Phi_k\rangle$, которые, в принципе, можно найти, решая уравнение Шредингера в виде

$$\mathcal{H}_0 |\Phi_k\rangle = i\hbar \frac{\partial |\Phi_k\rangle}{\partial t}, \quad (1.2)$$

где \mathcal{H}_0 — невозмущенный гамильтониан системы, считающийся не зависящим от времени, а k — индекс k -го квантового состояния. Рассмотрим теперь полную систему не зависящих от времени векторов состояния $|u_k\rangle$, каждый из которых удовлетворяет уравнению на собственные значения

$$\mathcal{H}_0 |u_k\rangle = E_k |u_k\rangle \quad (1.3)$$

и условию ортонормируемости

$$\langle u_k | u_l \rangle = \delta_{kl} = \begin{cases} 0, & k \neq l, \\ 1, & k = l, \end{cases}$$

где δ_{kl} — символ Кронекера. Тогда уравнение (1.2) можно решить, предполагая, что решение имеет вид произведения

$$|\Phi_k\rangle = a_k(t) |u_k\rangle. \quad (1.4)$$

Подставляя (1.4) и (1.3) в (1.2), получаем уравнение

$$\frac{da_k}{dt} = -\frac{i}{\hbar} E_k a_k,$$

решением которого является

$$a_k = a_k(0) e^{-i\omega_k t}.$$

Здесь частота $\omega_k = E_k/\hbar$. Если условие нормировки $\langle \psi | \psi \rangle = 1$ применить к каждому из собственных векторов $|\Phi_k\rangle$, то с точностью до произвольного фазового множителя найдем¹⁾

$$|\Phi_k\rangle = e^{-i\omega_k t} |u_k\rangle. \quad (1.5)$$

Если изолированная система находится не в одном из ее собственных состояний, а в состоянии $|\psi\rangle$, представляющем линейную комбинацию собственных состояний, то вектор состояния дается суперпозицией собственных векторов

$$|\psi\rangle = \sum_k c_k |\Phi_k\rangle = \sum_k c_k e^{-i\omega_k t} |u_k\rangle, \quad (1.6)$$

где $|c_k|^2$ — вероятность того, что при измерении мы найдем систему в ее k -м собственном состоянии. Коэффициенты разложения c_k не зависят от времени, так как мы предположили отсутствие взаимодействия или возмущения, изменяющих систему. Любое данное измерение энергии системы дает одно из собственных значений гамильтониана, а чтобы установить полную форму общего вектора состояния $|\psi\rangle$, требуется найти распределение последовательности таких измерений. Условие нормировки $\langle \psi | \psi \rangle = 1$ означает, что $\sum_k |c_k|^2 = 1$. т. е. сумма вероятностей нахождения системы в каком-либо из собственных состояний равна единице.

В уравнении (1.6) вектор состояния $|\psi\rangle$ представлен в виде суммы членов, содержащих собственные векторы гамильтониана. Иногда для такого представления $|\psi\rangle$ полезно взять собственные векторы другого оператора, например оператора импульса. Данная система функций, которая используется для разложения, называется системой *базисных* векторов. В общем случае в качестве базисных векторов выбирают ортонормированные функции, так как это упрощает большинство математических операций. Например, прямым следствием ортонормированности $|u_k\rangle$ является равенство $c_k = \langle \Phi_k | \psi \rangle$. Вектор состояния $|\psi\rangle$ часто записывается в виде столбца коэффициентов при ортонор-

¹⁾ Из свойства скалярного произведения $\langle u | v \rangle = \langle v | u \rangle^*$ следует, что бра-вектор, соответствующий кет-вектору $|\Phi_k\rangle$, равен

$$\langle \Phi_k | = e^{i\omega_k t} \langle u_k |.$$

Таким образом, при переходе от бра-векторов к кет-векторам, и наоборот, постоянные заменяются комплексно сопряженными, а бра- и кет-векторы взаимозаменяются.

мированных базисных векторах:

$$|\psi\rangle \rightarrow \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \\ c_3 \\ \vdots \\ \vdots \end{pmatrix}$$

что является матричной записью вектора состояния.

Если возмущение или взаимодействие \mathcal{H}_1 действует на систему и изменяет ее динамическое состояние, то для решения уравнения Шредингера (1.1) нужно использовать полный гамильтониан $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$. Однако даже при взаимодействии удобно рассматривать разложение по базисным векторам $|u_k\rangle$, которые являются собственными векторами невозмущенного гамильтониана и находятся из уравнения (1.3). В этом случае решение можно записать в виде (1.5) с той разницей, что коэффициенты разложения являются функциями времени:

$$|\psi\rangle = \sum_k c_k(t) |\Phi_k\rangle = \sum_k c_k(t) e^{-i\omega_k t} |u_k\rangle.$$

Подставляя это разложение в уравнение Шредингера (1.1), получаем систему дифференциальных уравнений для коэффициентов разложения $c_k(t)$, которую можно решить методами приближений, как это делается, например, в теории возмущений. Однако вместо этого мы будем развивать те математические способы вычисления, которые пригодны для метода матрицы плотности и во многих отношениях представляют более полезный путь решения.

§ 3. НЕКОТОРЫЕ СВОЙСТВА ОПЕРАТОРОВ

Оператор — это правило или ряд правил, по которым один вектор преобразуется в другой. Таким правилом может быть: «взять производную по времени» или «продифференцировать по x ». Уравнение в операторной форме имеет вид

$$|\dot{w}\rangle = A|v\rangle,$$

где $|v\rangle$ и $|w\rangle$ — векторы, а A — оператор.

Произведение бра- и кет-векторов $\langle u|y\rangle$ является скаляром; произведение кет- и бра-векторов $|y\rangle\langle u|$, как можно показать, будет оператором. Действительно, если A определить как $|y\rangle\langle u|$, то

$$A|v\rangle = |y\rangle\langle u|v\rangle.$$

Следовательно, $A|v\rangle$ является произведением константы на вектор $|y\rangle$, а произведение $|y\rangle\langle u|$ является оператором.

Так же, как мы могли разложить вектор по ортонормированной системе базисных векторов $|u_i\rangle$, можно разложить оператор по системе операторов $|u_i\rangle\langle u_j|$:

$$A = \sum_{i,j} A_{ij} |u_i\rangle\langle u_j|.$$

Из свойства ортонормируемости векторов $|u_i\rangle$ находим

$$A_{ij} = \langle u_i | A | u_j \rangle, \quad (1.7)$$

и A_{ij} называется ij -м матричным элементом оператора A . Элементы матрицы, для которых $i = j$, называются диагональными. В матричном обозначении оператор записывается в виде таблицы элементов A_{ij} :

$$A \rightarrow \begin{pmatrix} A_{11} & A_{12} & A_{13} & \dots \\ A_{21} & A_{22} & A_{23} & \dots \\ A_{31} & A_{32} & A_{33} & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix}.$$

Полезным оператором является единичный оператор I , который удовлетворяет условию $IA = AI = A$, где A — любой оператор. Используя систему ортонормированных базисных векторов, запишем

$$I = \sum_k |u_k\rangle\langle u_k|.$$

То, что это выражение является единичным оператором, можно показать следующим образом:

$$\begin{aligned} IA &= \left[\sum_k |u_k\rangle\langle u_k| \right] \left[\sum_{ij} A_{ij} |u_i\rangle\langle u_j| \right] = \\ &= \sum_{i,j,k} A_{ij} |u_k\rangle\langle u_k | u_i\rangle\langle u_j| = \sum_{i,j,k} A_{ij} |u_k\rangle\delta_{ki}\langle u_j| = \\ &= \sum_{ij} A_{ij} |u_i\rangle\langle u_j| = A. \end{aligned}$$

Матричный элемент единичного оператора равен

$$\langle u_i | I | u_j \rangle = \sum_k \langle u_i | u_k \rangle \langle u_k | u_j \rangle = \delta_{ij}.$$

Таким образом, диагональные элементы равны единице, а недиагональные — нулю.

Если оператор A соответствует наблюдаемой величине, то среднее значение этой наблюдаемой величины равно

$$\langle A \rangle = \langle \psi | A | \psi \rangle. \quad (1.8)$$

Этот постулат позволяет перейти от математического формализма квантовой механики к уравнениям движения для величин, представляющих интерес в связи с конкретным прибором или экспериментом. Например, считается, что измеряемое значение дипольного момента молекулы равно $\langle \mu \rangle$, где μ — оператор дипольного момента; измеряемое значение электрического поля равно $\langle E \rangle$, где E — оператор электрического поля и т. д.

Оператор B называется *сопряженным* оператору A , если справедливо следующее равенство:

$$\langle \phi | A | \psi \rangle = \langle \psi | B | \phi \rangle^*. \quad (1.9)$$

В этом случае B записывается как A^\dagger . Если $A = A^\dagger$, то оператор A называется самосопряженным, или *эрмитовым*. Оператор A , соответствующий наблюдаемой величине, эрмитов. Это следует из того, что среднее значение $\langle A \rangle$ представляет собой измеряемую величину и поэтому является вещественным, что в свою очередь требует, чтобы оператор A был эрмитовым. В матричном обозначении условие самосопряженности оператора (1.9) сводится к равенству $A_{ij} = A_{ji}^*$.

§ 4. ОПЕРАТОР ПЛОТНОСТИ

В общем случае нет достаточно полной информации о системе, чтобы описать ее с помощью определенного вектора состояния $|\psi\rangle$. Предположим, например, что имеются две группы гармонических осцилляторов, приготовленных различным образом, так что при $t = t_0$

$$|\psi_a(t_0)\rangle = \sum_k a_k |u_k\rangle,$$

$$|\psi_b(t_0)\rangle = \sum_k b_k |u_k\rangle.$$

Здесь $|u_k\rangle$ — ортонормированная система базисных векторов, $|\psi_a(t_0)\rangle$ — вектор состояния одной группы осцилляторов, а $|\psi_b(t_0)\rangle$ — вектор состояния другой группы при $t = t_0$. Средние значения оператора A для двух отдельных групп равны соответственно $\langle \psi_a(t) | A | \psi_a(t) \rangle$ и $\langle \psi_b(t) | A | \psi_b(t) \rangle$. Если N_a осцилляторов, характеризующихся вектором состояния $|\psi_a(t)\rangle$, смешиваются с N_b осцилляторами, характеризующимися вектором состояния $|\psi_b(t)\rangle$, и при этом предполагается, что частицы

в двух группах не взаимодействуют, то среднее значение A для этой смеси будет равно

$$\langle A \rangle = p_a \langle \psi_a(t) | A | \psi_a(t) \rangle + p_b \langle \psi_b(t) | A | \psi_b(t) \rangle,$$

где $p_a = N_a / (N_a + N_b)$ — вероятность того, что осциллятор характеризуется вектором состояния $|\psi_a(t)\rangle$. Следовательно, если необходимо описать систему более чем одним вектором состояния, то среднее значение оператора определяется следующим образом:

$$\langle A \rangle = \sum_n p_n \langle \psi_n | A | \psi_n \rangle, \quad (1.10)$$

где p_n — вероятность того, что система описывается вектором $|\psi_n\rangle$. Различные векторы состояния могут быть ортогональными и не ортогональными. Все p_n можно определить, если провести достаточное количество измерений в системе. Если же серия измерений неполная, то для оценки вероятностей необходимо использовать теорию статистического распределения.

Вероятность p_n , введенная здесь, отличается от вероятности $|c_n|^2$, полученной прежде в связи с распределением собственных состояний. В случае, обсуждаемом ранее, предполагалось, что система находится в известном состоянии $|\psi\rangle$, которое является линейной комбинацией собственных состояний $|u_k\rangle$. Такое состояние известно как чистое состояние. Вероятность $|c_n|^2$ найти систему в n -м собственном состоянии не связана с недостатком знаний о состоянии системы. Она зависит от природы процесса измерений, присущей квантовой механике (процесс измерения возмущает систему так, что она переходит в одно из собственных состояний).

С другой стороны, вероятность p_n отражает недостаток информации о том, в каком из нескольких возможных состояний $|\psi_i\rangle$ может находиться система. Это может быть обусловлено просто недостаточным количеством измерений или, что эквивалентно, отсутствием знаний о приготовлении системы. Следовательно, возникает необходимость статистического усреднения в том же смысле, что и в классической физике. В этом случае квантовое состояние описывается смесью чистых состояний с соответствующими статистическими весами и называется смешанным состоянием. Возможные состояния системы и соответствующие им средние значения оператора приведены в табл. 1. Для дальнейшего рассмотрения этих вопросов отсылаем читателя к работе [3] (гл. 6).

Можно ввести оператор плотности, переписав (1.10) в виде

$$\langle A \rangle = \sum_{nk} p_n \langle \psi_n | A | u_k \rangle \langle u_k | \psi_n \rangle. \quad (1.11)$$

Таблица 1

Состояние системы	Среднее значение оператора A
Собственное состояние $ u_k\rangle$	$\langle A \rangle = \langle u_k A u_k \rangle$
Чистое состояние $ \psi\rangle$	$\langle A \rangle = \langle \psi A \psi \rangle$
Смешанное состояние $ \psi_a\rangle, \psi_b\rangle, \dots$	$\langle A \rangle = \sum_n p_n \langle \psi_n A \psi_n \rangle$

Выражение (1.11) идентично (1.10), так как $\sum_k |u_k\rangle \langle u_k|$ — единичный оператор. Переставив два скалярных произведения в правой части (1.11), получим

$$\langle A \rangle = \sum_{n, \kappa} p_n \langle u_\kappa | \psi_n \rangle \langle \psi_n | A | u_\kappa \rangle \equiv \sum_k \langle u_k | \rho A | u_k \rangle,$$

где

$$\rho \equiv \sum_n p_n |\psi_n\rangle \langle \psi_n|. \quad (1.12)$$

При таком определении оператора плотности ρ среднее значение любого оператора A равно сумме диагональных матричных элементов произведения ρA . След (шпур) матрицы, обозначаемый кратко Sp , определяется как сумма диагональных элементов, так что

$$\langle A \rangle = \text{Sp}(\rho A). \quad (1.13)$$

Поскольку, используя (1.13), можно получить среднее значение любой наблюдаемой величины, то оператор плотности ρ содержит всю существенную с точки зрения физики информацию, которую можно получить о данной системе. Поэтому переформулировка квантовой механики в терминах оператора плотности ρ чрезвычайно полезна в приложениях к физическим задачам.

Если векторы состояния выражаются в виде линейных комбинаций собственных функций гамильтониана, то матричные элементы ρ просто связаны с коэффициентами разложения. В соответствии с (1.6) можно записать $|\psi_n\rangle$ в виде

$$|\psi_n\rangle = \sum_k c_{nk} e^{-i\omega_k t} |u_k\rangle. \quad (1.14)$$

Подставляя (1.14) в (1.12), получаем

$$\rho = \sum_{n, k, i} p_n c_{nk} c_{ni}^* e^{-i(\omega_k - \omega_i)t} |u_k\rangle \langle u_i|. \quad (1.15)$$

Поскольку матричный элемент ρ_{mj} определяется как

$$\rho_{mj} = \langle u_m | \rho | u_j \rangle,$$

то из (1.15)

$$\rho_{mj} = \sum_n p_n c_{nm} c_{nj}^* e^{-i(\omega_m - \omega_j)t}. \quad (1.16)$$

При $m = j$ из (1.16) найдем выражение для диагональных элементов ρ :

$$\rho_{jj} = \sum_n p_n |c_{nj}|^2. \quad (1.17)$$

Диагональный элемент ρ_{jj} есть вероятность того, что система находится в собственном состоянии $|u_j\rangle$. Так как вероятность найти систему в состоянии $|\psi_n\rangle$ равна p_n и так как вероятность того, что система в состоянии $|\psi_n\rangle$ может быть обнаружена в состоянии $|u_j\rangle$, равна $|c_{nj}|^2$, то произведение $p_n |c_{nj}|^2$ есть вероятность нахождения системы в состоянии $|\psi_n\rangle$ и одновременно в собственном состоянии $|u_j\rangle$. Следовательно, полная вероятность ρ_{jj} найти систему в состоянии $|u_j\rangle$ равна $\sum_n p_n |c_{nj}|^2$.

Для чистого состояния существует только одно $|\psi_n\rangle$, поэтому индекс n можно опустить, и получим

$$\rho_{jj} = |c_j|^2. \quad (1.18)$$

1. Некоторые свойства оператора плотности ρ

Для дальнейшего рассмотрения полезны следующие два свойства оператора плотности ρ :

1. ρ — эрмитов оператор.
2. $\text{Sp}(\rho) = 1$.

Эрмитовость оператора плотности докажем следующим образом:

$$\begin{aligned} \langle \phi | \rho | \phi \rangle &= \sum_n p_n \langle \phi | \psi_n \rangle \langle \psi_n | \phi \rangle = \\ &= \sum_n p_n (\langle \phi | \psi_n \rangle \langle \psi_n | \phi \rangle)^* = \langle \phi | \rho | \phi \rangle^*. \end{aligned}$$

Для доказательства соотношения $\text{Sp}(\rho) = 1$ предположим, что все $|\psi_n\rangle$ нормированы так, что $\langle \psi_n | \psi_n \rangle = 1$ и $\sum_n p_n = 1$. Так как p_n есть вероятность, то условие $\sum_n p_n = 1$ означает, что полная вероятность обнаружения системы в каком-либо из состояний равна единице. Из определения следа следует

$$\text{Sp}(\rho) = \sum_k \langle u_k | \rho | u_k \rangle = \sum_{k,n} p_n \langle u_k | \psi_n \rangle \langle \psi_n | u_k \rangle = \sum_n p_n \langle \psi_n | \psi_n \rangle = 1. \quad (1.19)$$

Суммирование по k выпадает, так как $\sum_k |u_k\rangle \langle u_k|$ является единичным оператором.

2. Зависимость ρ от времени

Если известен оператор плотности, то с помощью (1.13) можно найти среднее значение любой наблюдаемой величины. Поэтому наша следующая задача — получить уравнение для оператора плотности ρ . Дифференцируя ρ по времени, получаем

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = i\hbar \sum_n p_n \left[\frac{\partial |\psi_n\rangle}{\partial t} \langle \psi_n| + |\psi_n\rangle \frac{\partial \langle \psi_n|}{\partial t} \right]. \quad (1.20)$$

Используя волновое уравнение, можно заменить производные бра- и кет-векторов по времени в (1.20) эквивалентными выражениями. Волновое уравнение для кет-вектора имеет вид

$$\mathcal{H} |\psi_n\rangle = i\hbar \frac{\partial |\psi_n\rangle}{\partial t}.$$

Умножая обе части этого уравнения на $\langle \psi|$, переходя к комплексно сопряженным величинам и используя свойство эрмитовости гамильтониана \mathcal{H} , находим волновое уравнение для бра-вектора:

$$\langle \psi_n| \mathcal{H} = -i\hbar \frac{\partial \langle \psi_n|}{\partial t}.$$

Подставляя в (1.20) значения производных по времени, найденные из волновых уравнений, получаем

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = \sum_n p_n [\mathcal{H} |\psi_n\rangle \langle \psi_n| - |\psi_n\rangle \langle \psi_n| \mathcal{H}] = [\mathcal{H}\rho - \rho\mathcal{H}].$$

Оператор $\mathcal{H}\rho - \rho\mathcal{H}$ называется *коммутатором* и записывается в виде $[\mathcal{H}, \rho]$. Таким образом,

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [\mathcal{H}, \rho]. \quad (1.21)$$

Уравнения (1.13) и (1.21) являются основными, так как их одновременное решение приводит к уравнениям движения для наблюдаемых величин.

Полезно получить дифференциальные уравнения для матричных элементов ρ , используя в качестве базисных векторов собственные векторы невозмущенного гамильтониана среды \mathcal{H}_0 . Пусть гамильтониан имеет вид $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1$, где $\mathcal{H}_0 |u_k\rangle = E_k |u_k\rangle$ и \mathcal{H}_1 — оператор энергии взаимодействия между средой и возмущением. Используя (1.21), можно показать, что

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = (E_i - E_j) \rho_{ij} + [\mathcal{H}_1, \rho]_{i,j}, \quad (1.22)$$

где индекс ij означает ij -й матричный элемент.

3. Релаксационные члены

Удобно разбить \mathcal{H}_1 на сумму двух частей: части \mathcal{H}' , соответствующей взаимодействию между средой и внешним возмущением, таким, как электромагнитное поле, и части \mathcal{H}^r , соответствующей энергиям внутреннего взаимодействия. Например, \mathcal{H}^r может включать энергию взаимодействия между атомом и решеткой или обмен энергии при столкновениях молекул. Члены, входящие в \mathcal{H}^r , в гамильтониане, вообще говоря, описывают изменения в элементах оператора плотности в отсутствие внешнего возмущения.

Таким образом, записываем

$$\mathcal{H}_1 = \mathcal{H}' + \mathcal{H}^r. \quad (1.23)$$

Подставляя (1.23) в (1.22), получаем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = (E_i - E_j) \rho_{ij} + [\mathcal{H}', \rho]_{ij} + [\mathcal{H}^r, \rho]_{ij}. \quad (1.24)$$

Можно показать, что если система при $t = 0$ характеризуется вектором состояния $|u_1\rangle$, так что при $t = 0$ имеем $\rho_{ij} = \delta_i \delta_{j1}$, то наличие части \mathcal{H}^r , не зависящей от времени, вызывает временной спад ρ_{11} по экспоненциальному закону. Этот результат был впервые получен Вайскопфом и Вигнером [2]. При малых значениях t член ρ_{11} — наибольший элемент матрицы плотности, и при $\mathcal{H}' = 0$ из (1.24) имеем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{1j}}{\partial t} \approx (E_1 - E_j) \rho_{1j} - \rho_{11} \mathcal{H}_{1j}^r \quad \text{для } j \neq 1 \quad (1.25)$$

и

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} = \sum_k [\mathcal{H}_{1k}^r \rho_{k1} - \rho_{1k} \mathcal{H}_{k1}^r]. \quad (1.26)$$

Как показано в приложении 1, можно получить решение для $\rho_{11}(t)$ с помощью преобразования Лапласа

$$\rho_{11}(t) = e^{-t/\tau}, \quad (1.27)$$

где τ определяется из уравнения (П. 1.7). Поэтому влияние \mathcal{H}^r можно приближенно учесть, заменяя в (1.24) последний член релаксационным. Полезность любой аппроксимации зависит от того, насколько хорошо она предсказывает истинное событие, и на основании этого можно судить, является ли приближение хорошим.

При тепловом равновесии диагональные элементы матрицы плотности ρ , являющиеся вероятностями заселенности, задаются распределением Больцмана

$$\rho_{ii} = \frac{e^{-E_i/kT}}{\sum_m e^{-E_m/kT}}, \quad (1.28)$$

где κ — постоянная Больцмана, T — температура. С помощью статистической механики можно показать, что при тепловом равновесии недиагональные элементы матрицы плотности ρ равны нулю [3]:

$$\rho_{ij} = 0 \quad \text{для } i \neq j. \quad (1.29)$$

Роль \mathcal{H}^r проявляется в создании таких изменений ρ_{ij} в отсутствие какого-либо внешнего возмущения, чтобы возмущенная система достигала равновесия с окружающей средой.

При $\mathcal{H}^r = 0$ и $i \neq j$ элементы ρ_{ij} обращаются в нуль при равновесии, так что, видоизменяя (1.24), получаем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}}{\partial t} = \hbar \omega_{ij} \rho_{ij} + [\mathcal{H}^r, \rho]_{ij} - \frac{i\hbar}{\tau_{ij}} \rho_{ij}, \quad (1.30)$$

где $\omega_{ij} = (E_i - E_j)/\hbar$ и $[\mathcal{H}^r, \rho]_{ij}$ заменены релаксационными членами. Постоянная τ_{ij} берется вещественной и положительной, так что $\rho_{ij} \rightarrow 0$ при $\mathcal{H}^r = 0$. Поскольку ρ является эрмитовым оператором, необходимо, чтобы $\tau_{ij} = \tau_{ji}$.

Диагональные элементы ρ_{jj} при $\mathcal{H}^r \rightarrow 0$ стремятся к не зависящим от времени равновесным значениям ρ_{jj}^e . Вероятность перехода W_{ij} определяется как отнесенная к единице времени вероятность перехода из состояния, характеризуемого энергией E_i , в состояние, характеризуемое энергией E_j , при $\mathcal{H}^r = 0$. Введение W_{ij} позволяет учитывать изменение заселенности различных энергетических состояний в отсутствие внешнего возмущения \mathcal{H}^r . Это дает возможность получить соответствующее статистическое распределение. В результате этих модификаций получим

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}}{\partial t} = [\mathcal{H}^r, \rho]_{jj} + i\hbar \sum_k (\rho_{kk} W_{kj} - \rho_{jj} W_{jk}). \quad (1.31)$$

Здесь члены вида $\rho_{kk} W_{kj}$ характеризуют возрастание в единицу времени вероятности заселенности j -го состояния в результате переходов из k -го в j -е состояние, а члены вида $-\rho_{jj} W_{jk}$ — уменьшение в единицу времени вероятности заселенности j -го состояния в результате переходов из j -го состояния в k -е. При $\mathcal{H}^r = 0$ и в состоянии равновесия необходимо, чтобы ρ_{jj} не зависели от времени и отсутствовало испускание или поглощение излучения на любой частоте перехода. Как показано в приложении 2, чтобы удовлетворить этим условиям, число переходов в единицу времени из j -го состояния в k -е должно быть равно числу переходов в единицу времени из k -го состояния в j -е, т. е.

$$\rho_{kk}^e W_{kj} = \rho_{jj}^e W_{jk}. \quad (1.32)$$

Целесообразно ввести время релаксации T_{jk} , определяемое следующим образом:

$$T_{jk} = \frac{\rho_{kk}^e}{W_{jk}}. \quad (1.33)$$

Из уравнения (1.32) видно, что $T_{hj} = T_{jh}$. Поэтому (1.31) можно записать в виде

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}}{\partial t} = [\mathcal{H}', \rho]_{jj} + i\hbar \sum_k \left(\rho_{kk} \frac{\rho_{jj}^e}{T_{jk}} - \rho_{jj} \frac{\rho_{kk}^e}{T_{jk}} \right). \quad (1.34)$$

Интересно рассмотреть случай, когда все T_{jk} равны, что приводит к упрощению выражения (1.34). Полагая $T_{jk} = T_1$, из (1.34) получаем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}}{\partial t} = [\mathcal{H}', \rho]_{jj} + \frac{i\hbar}{T_1} \sum_k (\rho_{kk} \rho_{jj}^e - \rho_{jj} \rho_{kk}^e). \quad (1.35)$$

Выше было показано, что $\text{Sp}(\rho) = 1 = \text{Sp}(\rho^e)$, поэтому (1.35) принимает вид

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}}{\partial t} = [\mathcal{H}', \rho]_{jj} + \frac{i\hbar}{T_1} (\rho_{jj}^e - \rho_{jj}). \quad (1.36)$$

При $\mathcal{H}' = 0$ диагональные элементы ρ_{jj} изменяются с постоянной времени T_1 , стремясь к равновесному значению ρ_{jj}^e .

Если ограничиться рассмотрением системы, для которой существенны только два собственных состояния, соответствующих собственным значениям оператора энергии E_1 и E_2 , то имеются только две постоянные времени: постоянная времени для диагональных матричных элементов T_{12} и постоянная времени для недиагональных τ_{12} . Постоянная T_{12} обычно записывается как T_1 и называется временем продольной, спин-решеточной или диполь-решеточной релаксации. Эта постоянная характеризует время, в течение которого система переходит из возмущенного состояния в состояние энергетического равновесия с окружающей средой. Члены в \mathcal{H}' , из которых определяется T_1 , обязаны своим происхождением взаимодействиям между молекулой и решеткой, взаимодействиям молекул при столкновениях в газе или в жидкости или спонтанному излучению, как будет показано в гл. 6.

Постоянная τ_{12} обычно обозначается через T_2 и называется временем поперечной, диполь-дипольной или спин-спиновой релаксации. Как показано в гл. 3, эта постоянная связана с шириной линии перехода. В общем случае нас интересует электрический или магнитный момент совокупности молекул, а он зависит от фазовых соотношений между моментами отдельных молекул.

Если первоначально допустить, что все молекулы колеблются в фазе, то T_2 будет определять время, через которое молекулы будут находиться в различных фазах друг относительно друга. Любой механизм, влияющий на время релаксации T_1 , например потеря энергии при взаимодействии молекулы с решеткой, дает вклад и в T_2 , поэтому $T_2 \leq T_1$. Однако могут иметь место случайные дополнительные взаимодействия между молекулами, которые дают вклад в T_2 , но не дают вклада в T_1 . Например, если при упругом столкновении одна молекула совершает переход $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, а другая — переход $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$, то в системе энергия не изменяется, и взаимодействие не влияет на T_1 . Эти переходы обычно приводят к потерям информации о фазах и влияют на время T_2 . В табл. 2 указаны два типа релаксации. Причина, по которой релаксация называется «продольной» и «поперечной», будет обсуждена в гл. 2 при рассмотрении спиновых взаимодействий.

Таблица 2

Механизмы релаксации

Обозначение	T_1	T_2
Название	Продольная релаксация; спин-решеточная релаксация; диполь-решеточная релаксация	Поперечная релаксация; спин-спиновая релаксация; диполь-дипольная релаксация
Влияющие факторы	Спонтанное излучение; взаимодействие с решеткой; неупругие столкновения	Все факторы, влияющие на T_1 ; упругие столкновения

4. Оператор плотности системы, имеющей непрерывный спектр собственных значений

До сих пор мы рассматривали систему с дискретной совокупностью энергий собственных состояний. Однако (как будет сказано в гл. 8) иногда приходится иметь дело с системами, обладающими непрерывным спектром собственных значений. Например, собственное значение энергии для электрона в кристалле есть непрерывная функция вектора \mathbf{k} . Запишем вектор состояния $|\psi\rangle$ в виде

$$|\psi\rangle = \int d^3k c(\mathbf{k}) |u(\mathbf{k})\rangle,$$

где $d^3k = dk_x dk_y dk_z$ — элементарный объем в \mathbf{k} -пространстве, а $|u(\mathbf{k})\rangle$ — базисные функции, удовлетворяющие условию

ортогональности

$$\langle u(\mathbf{k}') | (\mathbf{k}) \rangle = \delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k}).$$

Здесь $\delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k})$ — дельта-функция Дирака (см. также [4]).

Для чистого состояния ρ определяется как

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi|,$$

и матричные элементы ρ имеют вид

$$\rho(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \langle u(\mathbf{k}) | \rho | u(\mathbf{k}') \rangle = c(\mathbf{k}) c^*(\mathbf{k}'). \quad (1.37)$$

Диагональные элементы $\rho(\mathbf{k}, \mathbf{k}) \equiv \rho(\mathbf{k})$ являются плотностями вероятности, и, следовательно, $\rho(\mathbf{k})$ — вероятность того, что электрон будет находиться в единичном объеме \mathbf{k} -пространства. Уравнение, соответствующее условию $\text{Sp}(\rho) = 1$, теперь имеет вид

$$\int d^3k \rho(\mathbf{k}) = 1, \quad (1.38)$$

где интегрирование производится по всему \mathbf{k} -пространству.

Если для совокупности дискретных уровней коммутатор равен

$$[\mathcal{H}', \rho]_{ij} = \sum_l [\mathcal{H}'_{il} \rho_{lj} - \rho_{il} \mathcal{H}'_{lj}],$$

то в случае непрерывного спектра собственных значений коммутатор имеет вид

$$[\mathcal{H}', \rho]_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = \int d^3k'' [\mathcal{H}'_{\mathbf{k}\mathbf{k}''} \rho(\mathbf{k}'', \mathbf{k}') - \rho(\mathbf{k}, \mathbf{k}'') \mathcal{H}'_{\mathbf{k}''\mathbf{k}'}]. \quad (1.39)$$

Уравнения движения для матричных элементов оператора плотности (1.30) и (1.36) все еще применимы, однако для непрерывного спектра собственных значений коммутатор следует брать в интегральной форме (1.39).

Часто бывает удобно выразить плотность вероятности $\rho(\mathbf{k})$ в виде произведения трех величин:

$$\rho(\mathbf{k}) = n(\mathbf{k}) P N_V^{-1}, \quad (1.40)$$

где $n(\mathbf{k})$ — число собственных состояний в единице объема \mathbf{k} -пространства на единицу объема в координатном пространстве; P — вероятность того, что собственное состояние системы занято электроном; N_V — число электронов в единице объема координатного пространства.

Любой оператор A имеет среднее значение, определяемое как

$$\langle A \rangle = \text{Sp}(\rho A) = \int d^3k \int d^3k' \rho(\mathbf{k}, \mathbf{k}') A_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}, \quad (1.41)$$

где $A_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}$ имеет обычный смысл

$$A_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} = \langle u(\mathbf{k}') | A | u(\mathbf{k}) \rangle.$$

Уравнения, рассмотренные в этом параграфе, будут использованы в гл. 8 при изучении взаимодействия электромагнитного излучения с электронами в кристалле.

5. Производные по времени от средних значений оператора

В последующих главах нас будут интересовать производные по времени от средних значений какого-либо оператора. В частности, рассмотрим случай равенства друг другу как всех τ_{ij} , так и всех T_{ij} , т. е. можно записать

$$\begin{aligned}\tau_{ij} &= T_2, \\ T_{ij} &= T_1.\end{aligned}$$

Поскольку $\langle A \rangle = \text{Sp}(\rho A)$, то для оператора, не зависящего явно от времени, имеем

$$\langle \dot{A} \rangle = \text{Sp}(\dot{\rho} A), \quad (1.42)$$

где

$$\langle \dot{A} \rangle \equiv \frac{\partial \langle A \rangle}{\partial t}.$$

Подставляя выражения (1.30) и (1.36) в правую часть уравнения (1.42), получаем

$$\begin{aligned}\langle \dot{A} \rangle &= \frac{1}{i\hbar} \sum_{i,j} [\mathcal{H}', \rho]_{ij} A_{ji} + \frac{1}{T_1} \sum_i (\rho_{ii}^e - \rho_{ii}) A_{ii} - \\ &\quad - i \sum_{i,j} \omega_{ij} \rho_{ij} A_{ji} - \frac{1}{T_2} \sum_{i \neq j} \rho_{ij} A_{ji}.\end{aligned} \quad (1.43)$$

Уравнение (1.43) можно упростить, замечая, что

$$\sum_{i,j} [\mathcal{H}', \rho]_{ij} A_{ji} = \text{Sp}([\mathcal{H}', \rho] A) = \text{Sp}(\rho [A, \mathcal{H}']) = \langle [A, \mathcal{H}'] \rangle \quad (1.44)$$

и

$$\sum_{i,j} \hbar \omega_{ij} \rho_{ij} A_{ji} = \langle [A, \mathcal{H}_0] \rangle. \quad (1.45)$$

Поскольку $\rho_{ij}^e = 0$ для $i \neq j$, то сумму $\sum_i \rho_{ii}^e A_{ii}$ можно выразить следующим образом:

$$\sum_i \rho_{ii}^e A_{ii} = \text{Sp}(\rho A)^e = \langle A \rangle^e. \quad (1.46)$$

Здесь $\langle A \rangle^e$ — равновесное значение $\langle A \rangle$ при $\mathcal{H}' = 0$. Подставляя (1.44)–(1.46) в (1.43) и преобразуя некоторые члены, получаем

$$\langle \dot{A} \rangle + \frac{\langle A \rangle}{T_2} - \frac{\langle A \rangle^e}{T_1} = \frac{1}{i\hbar} \langle [A, \mathcal{H}] \rangle + \left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right) \sum_i \rho_{ii} A_{ii}, \quad (1.47)$$

где

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'.$$

Особый интерес представляют следующие два случая.

1. Все диагональные элементы оператора A равны нулю. Тогда выражение (1.47) сводится к уравнению

$$\langle \dot{A} \rangle + \frac{\langle A \rangle}{T_2} = \frac{1}{i\hbar} \langle [A, \mathcal{H}] \rangle. \quad (1.48)$$

2. Только диагональные элементы оператора A не равны нулю. В этом случае уравнение (1.47) запишется в виде

$$\langle \dot{A} \rangle + \frac{\langle A \rangle - \langle A \rangle^e}{T_1} = \frac{1}{i\hbar} \langle [A, \mathcal{H}] \rangle. \quad (1.49)$$

Уравнения (1.48) и (1.49) будут использованы в последующих главах при рассмотрении целого ряда задач.

В дальнейшем потребуется также вторая производная по времени от оператора, у которого диагональные элементы равны нулю. Дифференцируя по времени уравнение (1.48), получаем

$$\langle \ddot{A} \rangle + \frac{\langle \dot{A} \rangle}{T_2} = \frac{1}{i\hbar} \langle [A; \mathcal{H}] \rangle. \quad (1.50)$$

Правая часть уравнения (1.50) вычисляется на основании уравнения (1.47), в результате чего имеем

$$\langle \ddot{A} \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{A} \rangle + \frac{1}{T_2^2} \langle A \rangle = - \frac{1}{\hbar^2} \langle [[A, \mathcal{H}], \mathcal{H}] \rangle + \frac{1}{i\hbar} \left[\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1} \right] \sum_i \rho_{ii} [A, \mathcal{H}']_{ii}. \quad (1.51)$$

Вообще говоря, нас интересует случай, когда $[A, \mathcal{H}] = 0$, т. е. когда последний член в правой части уравнения (1.51) равен нулю.

Уравнения для производных по времени от операторов будут использованы в гл. 2 при изучении дипольного перехода. Там получаются уравнения движения в терминах наблюдаемых величин, чтобы от формализма квантовой механики можно было перейти к описанию явлений, исследуемых лабораторным путем. Гл. 3 будет посвящена рассмотрению некоторых экспериментально наблюдаемых явлений, таких, как резонансное поглощение, насыщение и дисперсия.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Dirac P.*, The Principles of Quantum Mechanics, 4th ed., Oxford, 1958, Ch. 1—5. (См. перевод: П. А. Дирак, Принципы квантовой механики, Физматгиз, 1960.)
2. *Weisskopf V. F., Wigner E.*, Zs. Phys., **63**, 54 (1930).
3. *Louisell W.*, Radiation and Noise in Quantum Electronics, New York, 1964, Sec. 6.6.
4. *Mandl F.*, Quantum Mechanics, London, 1957.
5. *Fano U.*, Description of States in Quantum Mechanics by Density Matrix and Operator Techniques, Rev. Mod. Phys., **29**, 74 (January 1957).

ДОПОЛНИТЕЛЬНАЯ ЛИТЕРАТУРА¹⁾

6. *Sherwin C. W.*, Introduction to Quantum Mechanics, New York, 1959.
7. *Lindsay P. A.*, Introduction to Quantum Mechanics for Electrical Engineers, New York, 1967.
8. *Pauling L., Wilson E. B.*, Introduction to Quantum Mechanics, New York, 1935.
9. *White R. L.*, Basic Quantum Mechanics, New York, 1966.
10. *Messiah A.*, Quantum Mechanics, Vol. I, II, Amsterdam, 1961.
11. *Dicke R. H., Wittke J. P.*, Introduction to Quantum Mechanics, Reading, Mass., 1961.
12. *Mandl F.*, Quantum Mechanics, London, 1957.
13. *Schiff L. I.*, Quantum Mechanics, New York, 1955. (См. перевод: Л. Шифф, Квантовая механика, ИЛ, 1959.)
- 14*. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.*, Квантовая механика, Физматгиз, 1963.
- 15*. *Давыдов А. С.*, Квантовая механика, Физматгиз, 1963.
- 16*. *Соколов А. А., Лоскутов Ю. М., Тернов И. М.*, Квантовая механика, Учпедгиз, 1962.
- 17*. *Блохинцев Д. И.*, Основы квантовой механики, М., Высшая школа, 1961.

Задачи

1.1. Доказать или опровергнуть следующие утверждения:

- а) оператор с вещественными собственными значениями всегда эрмитов;
- б) собственные значения эрмитового оператора всегда вещественны;
- в) если среднее значение оператора вещественно для любого произвольного вектора состояния, то оператор эрмитов.

1.2. Определить условия, которым должна удовлетворять функция $U(t, t_0)$, если

$$|\psi(t)\rangle = U(t, t_0)|\psi(t_0)\rangle$$

есть общее решение волнового уравнения, причем при $t = t_0$ $|\psi(t)\rangle$ равна $|\psi(t_0)\rangle$.

1.3. Показать, что $\text{Sp}(\rho^2) \leq 1$. Чему равен $\text{Sp}(\rho^2)$ для собственного состояния; чистого состояния; смешанного состояния?

¹⁾ Литература, отмеченная звездочкой, добавлена переводчиком.

1.4. Оператор плотности для системы, находящейся в тепловом равновесии с окружающей средой, имеет вид [3] (см. также [15], стр. 59)

$$\rho = \frac{\exp(-\mathcal{H}/\kappa T)}{\text{Sp} \exp(-\mathcal{H}/\kappa T)},$$

где

$$\exp\left(-\frac{\mathcal{H}}{\kappa T}\right)|u_i\rangle = \exp\left(-\frac{E_i}{\kappa T}\right)|u_i\rangle,$$

если

$$\mathcal{H}|u_i\rangle = E_i|u_i\rangle;$$

здесь κ — постоянная Больцмана [в общем случае $f(A)|u_i\rangle = f(A_i)|u_i\rangle$, где A — любой оператор, $|u_i\rangle$ — собственная функция, соответствующая собственному значению A_i оператора A , $f(A)$ — любая функция от A]. Показать, что диагональные элементы матрицы плотности ρ дают распределение Больцмана, а недиагональные равны нулю. Сравнить этот результат с равновесными значениями матричных элементов ρ , определяемыми из (1.30) и (1.36).

1.5. Энтропия системы есть мера недостатка информации о системе. Если энтропия увеличивается, то мы знаем меньше о состоянии системы, и наоборот, при уменьшении энтропии наши знания о системе возрастают. Энтропию \mathcal{S} можно выразить через оператор плотности

$$\mathcal{S} = -\kappa \text{Sp}(\rho \ln \rho),$$

где κ — постоянная Больцмана. Для базиса, в котором матрица плотности диагональна, проделать следующее:

- показать, что для системы, находящейся в чистом состоянии, энтропия равна нулю;
- получить выражение для энтропии системы, которая с равной вероятностью может находиться в любом собственном состоянии (при условии $\text{Sp} \rho = 1$);
- показать, что значение энтропии, полученное в п. «б», является максимальным.

1.6. В книге дается вероятностная интерпретация диагональных элементов матрицы плотности. Показать, что для системы, находящейся в чистом состоянии, $|\rho_{ij}|$ при $i \neq j$ есть среднее геометрическое вероятностей того, что состояния $|u_i\rangle$ и $|u_j\rangle$ заняты.

1.7. а) При выводе (1.44) было использовано соотношение

$$\text{Sp}([\mathcal{H}', \rho]A) = \text{Sp}(\rho[A, \mathcal{H}']).$$

Доказать это соотношение.

б) Получить (1.45).

1.8. а) Рассмотрим двухуровневую систему с гамильтонианом

$$\mathcal{H}_0 = \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix},$$

где E_1 и E_2 — собственные значения энергии. Получить дифференциальное уравнение второго порядка по времени для $\langle A \rangle$ при условии, что $\mathcal{H}' = bA$, где $b = \text{const}$ и

$$A = \begin{pmatrix} 0 & a \\ a^* & 0 \end{pmatrix}.$$

Рассмотреть физическую систему, которая описывается оператором A . Какая величина в такой системе является наблюдаемой, соответствующей оператору A ?

б) Для системы, указанной в п. «а», рассмотреть оператор

$$B = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Какая наблюдаемая величина соответствует оператору B ? Получить дифференциальное уравнение первого порядка по времени для $\langle B \rangle$. Каков физический смысл этого уравнения?

1.9. Обычно полагают, что для эрмитового оператора всегда можно записать

$$\int_{x_1}^{x_2} dx f^* A g = \int_{x_1}^{x_2} dx (A f)^* g,$$

где A — оператор, а f и g — функции x . Однако справедливость этого соотношения зависит от граничных условий. Показать, например, что если A — оператор импульса, то равенство выполняется лишь при условии

$$f^*(x_1) g(x_1) = f^*(x_2) g(x_2).$$

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

Настоящая глава посвящена более подробному изучению взаимодействия излучения с двухуровневой квантованной средой. Это взаимодействие объясняет многие явления, связанные со свойствами веществ, такие, как поглощение и дисперсия света, насыщение и просветление переходов, генерация когерентного электромагнитного излучения в мазерах и лазерах. Рассмотрены как электрический дипольный, так и магнитный дипольный (спин $1/2$) переходы.

При исследовании этих явлений будет использован полуклассический подход, при котором поля описываются классически, а среда — квантовомеханически. Такой подход справедлив, пока не рассматриваются шумовые явления, так как макроскопически наблюдаемые поля имеют высокие числа заполнения. Состоянию сильного возбуждения отвечает использование больших квантовых чисел, а это в свою очередь в согласии с принципом соответствия квантовой механики означает, что можно ожидать классическое поведение полей. Подробное сравнение полуклассического и квантовоэлектродинамического подходов отложено до гл. 6, где исследовано явление спонтанной эмиссии, которым пренебрегают при полуклассическом подходе.

§ 2. ГАМИЛЬТониан атома в электромагнитном поле

Начнем с рассмотрения упрощенной модели атома. Предположим, что атом состоит из единственного электрона с зарядом $-e$ и массой m , движущегося вокруг бесконечно тяжелого ядра с эффективным потенциалом $\mathcal{V}^\circ(\mathbf{r})$, где \mathbf{r} — положение электрона относительно ядра. Пренебрегая спином и релятивистскими эффектами, гамильтониан электрона обычно записывают в виде [1]

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2m} (\mathbf{p} + e\mathbf{A})^2 + \mathcal{V}^\circ - e\Phi. \quad (2.1)$$

Величина \mathbf{p} является каноническим импульсом электрона и связана с обычным импульсом $m\mathbf{v}$ соотношением

$$\mathbf{p} = m\dot{\mathbf{r}} - e\mathbf{A},$$

где точка над переменной означает полную производную по времени. В этих выражениях величины Φ и \mathbf{A} являются соответственно скалярным и векторным потенциалами внешнего электромагнитного поля, а $e = |e|$ — абсолютная величина заряда электрона.

Следует указать на то важное обстоятельство, что уравнение (2.1) представляет собой не единственную, а лишь одну из многих форм записи гамильтониана. Его можно получить подходящим выбором лагранжиана $\mathcal{L}(q, \dot{q}, t)$ и применением преобразования

$$\mathcal{H}(q, p, t) = \sum_i \dot{q}_i p_i - \mathcal{L}(q, \dot{q}, t), \quad (2.2)$$

где q — координата, а канонический импульс p_i определяется соотношением $p_i = \partial \mathcal{L} / \partial \dot{q}_i$. Индекс i относится к направлению координат, поэтому, например, в декартовой системе

$$\sum_i \dot{q}_i p_i = \dot{q}_x p_x + \dot{q}_y p_y + \dot{q}_z p_z.$$

Подходящий выбор лагранжиана просто означает, что при подстановке его в уравнения Лагранжа (см. [1])

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} \right) - \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial q_i} \right) = 0$$

получаются правильные уравнения движения. Лагранжиан, на котором основано выражение (2.1), имеет вид

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}^2 - \mathcal{V} + e\Phi - e\dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{A}. \quad (2.3)$$

1. Разложение по мультиполям

Векторный потенциал поля \mathbf{A} , в котором находится электрон, в общем случае изменяется от точки к точке пространства. Однако из-за относительно малых размеров атома пространственное изменение \mathbf{A} в пределах атома незначительно для внешних приложенных полей, представляющих для нас интерес.

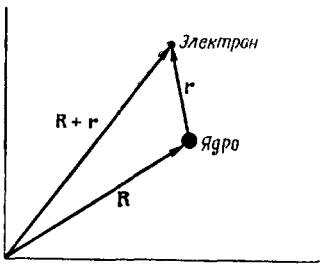
Для частот, лежащих ниже ультрафиолетовой области спектра, длины волн составляют сотни ангстремов и более ($1 \text{ \AA} = 10^{-8} \text{ см}$). Для сравнения укажем, что радиус боровской орбиты основного состояния атома водорода имеет величину $a_0 = 0,529 \text{ \AA}$. Следовательно, удобно разложить векторный потенциал $\mathbf{A}(x, y, z, t)$ в ряд Тейлора относительно положения ядра \mathbf{R} , как показано на фиг. 2.1:

$$\mathbf{A}(\mathbf{R} + \mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{R}, t) + (\mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}}) \mathbf{A}(\mathbf{R}, t) + \dots \quad (2.4)$$

В приведенном выше выражении $\nabla_{\mathbf{R}}$ для прямоугольной системы координат определяется соотношением

$$\nabla_{\mathbf{R}} = \mathbf{1}_x \frac{\partial}{\partial R_x} + \mathbf{1}_y \frac{\partial}{\partial R_y} + \mathbf{1}_z \frac{\partial}{\partial R_z},$$

где $\mathbf{1}_x$, $\mathbf{1}_y$ и $\mathbf{1}_z$ — единичные векторы в направлениях осей x , y и z , а $\partial/\partial R_x$ означает частную производную по x , взятую в точке расположения ядра. Разложение (2.4) приводит к появлению в гамильтониане членов взаимодействия, соответствующих электрическому дипольному, магнитному дипольному, электрическому квадрупольному и другим взаимодействиям с внешним электромагнитным полем.



Фиг. 2.1. Геометрическое представление при разложении по мультиполям.

По нашему мнению, целесообразнее развить метод, предложенный первоначально Гепперт-Майер [2, 3], чем подставлять полученное выше разложение непосредственно в гамильтониан. В методе Гепперт-Майер это разложение подставляется в лагранжиан (2.3), в результате чего значительно упрощаются некоторые математические операции.

2. Электрическое дипольное взаимодействие

Подстановка первого члена разложения (2.4) в лагранжиан (2.3) дает

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}^2 - \mathcal{V} + e\Phi - e\dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{R}, t). \quad (2.5)$$

Это приближение совсем не учитывает пространственного изменения потенциала \mathbf{A} в пределах атома. Так как уравнения движения системы не изменяются при добавлении к лагранжиану полной производной по времени [1], то, прибавляя член

$$e \frac{d}{dt} [\mathbf{r} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{R}, t)],$$

можно преобразовать лагранжиан к виду

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}^2 - \mathcal{V} + e\Phi + e\dot{\mathbf{r}} \cdot \dot{\mathbf{A}}(\mathbf{R}, t). \quad (2.6)$$

Следовательно, в результате получаемого упрощения это преобразование смещает производную по времени с координаты электрона на векторный потенциал. В этом случае канонический импульс $p_i = \partial\mathcal{L}/\partial\dot{q}_i$ равен

$$\mathbf{p} = m\dot{\mathbf{r}},$$

а соответствующий гамильтониан, согласно (2.2), будет иметь вид

$$\mathcal{H} = \frac{p^2}{2m} + \mathcal{V} - e\Phi - e\mathbf{r} \cdot \dot{\mathbf{A}}(\mathbf{R}, t). \quad (2.7)$$

В свободной от зарядов области можно выбрать потенциалы таким образом, что скалярный потенциал Φ обращается в нуль, а поля можно выразить только через векторный потенциал с помощью соотношений [4]

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}. \quad (2.8)$$

Следовательно, можно переписать (2.7) в виде

$$\mathcal{H} = \frac{p^2}{2m} + \mathcal{V} - \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t). \quad (2.9)$$

Здесь введено определение электрического дипольного момента $\boldsymbol{\mu} = -e\mathbf{r}$ и отмечено, что на ядре

$$\dot{\mathbf{A}}(\mathbf{R}, t) \equiv \frac{d\mathbf{A}(\mathbf{R}, t)}{dt} = \frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{R}, t)}{\partial t} = -\mathbf{E}(\mathbf{R}, t).$$

Проведенное выше преобразование, в котором используется первый член разложения $\mathbf{A}(\mathbf{R} + \mathbf{r}, t)$ относительно положения ядра \mathbf{R} , называется электрическим дипольным приближением, так как взаимодействие электрона с внешним полем имеет вид, характерный для электрического диполя в квазистатическом поле. Электрическое дипольное приближение является исключительно хорошим даже для оптических полей, простирающихся в далекую ультрафиолетовую область. Такие поля изменяются значительно лишь на расстояниях порядка длины волны, типичное значение которой составляет тысячи ангстремов, в то время как атомные размеры — порядка нескольких ангстремов. Следовательно, в первом приближении пространственным изменением \mathbf{A} можно пренебречь и использовать гамильтониан в форме (2.9).

3. Электрическое квадрупольное, магнитное дипольное и диамагнитное взаимодействия

Если учесть второй член разложения (2.4), то в лагранжиане появляется дополнительный член

$$-e\dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{A}(\mathbf{R}, t).$$

Следуя способу, примененному в дипольном случае, добавим полную производную по времени вида

$$\frac{e}{2} \frac{d}{dt} [\mathbf{r} \cdot \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{A}(\mathbf{R}, t)].$$

Если продифференцировать это выражение и затем использовать векторное тождество

$$\mathbf{r} \cdot \dot{\mathbf{r}} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{A}(\mathbf{R}, t) = \dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{A} + \dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \times [\nabla_{\mathbf{R}} \times \dot{\mathbf{A}}(\mathbf{R}, t)],$$

то для лагранжиана получим

$$\begin{aligned} \mathcal{L} = \frac{1}{2} m \dot{\mathbf{r}}^2 - \mathcal{V} + e\Phi + e\mathbf{r} \cdot \dot{\mathbf{A}}(\mathbf{R}, t) + \frac{e}{2} \mathbf{r} \cdot \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \dot{\mathbf{A}}(\mathbf{R}, t) + \\ + \frac{e}{2} \dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{r} \times [\nabla_{\mathbf{R}} \times \mathbf{A}(\mathbf{R}, t)]. \quad (2.10) \end{aligned}$$

Канонический импульс $p_i = \partial \mathcal{L} / \partial \dot{q}_i$ определяется теперь выражением

$$\mathbf{p} = m \dot{\mathbf{r}} + \frac{e}{2} \mathbf{r} \times [\nabla_{\mathbf{R}} \times \mathbf{A}(\mathbf{R}, t)],$$

а соответствующий гамильтониан равен

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = \frac{1}{2m} \left[\mathbf{p} - \frac{e}{2} \mathbf{r} \times \mathbf{B}(\mathbf{R}, t) \right]^2 + \mathcal{V} - \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t) + \\ + \frac{e}{2} \mathbf{r} \cdot \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{E}(\mathbf{R}, t). \quad (2.11) \end{aligned}$$

Здесь опять потенциалы выбраны так, что скалярный потенциал Φ обращается в нуль, а электрическое и магнитное поля определяются только векторным потенциалом \mathbf{A} в соответствии с (2.8).

Если в (2.11) выражение, заключенное в скобки, возвести в квадрат и перегруппировать члены, то гамильтониан можно представить в форме, в которой каждый член определяет некоторый физический процесс. При возведении в квадрат перекрестные члены вида $\mathbf{p} \cdot \mathbf{r} \times \mathbf{B}$ можно записать, используя обычное правило векторно-скалярного произведения, как $-\mathbf{r} \times \mathbf{p} \cdot \mathbf{B}$. Хотя квантовомеханические операторы \mathbf{r} и \mathbf{p} не коммутируют, в нашем случае не требуется соблюдать особую осторожность, необходимую при обращении с некоммутирующими операторами. Действительно, вектор $\mathbf{r} \times \mathbf{B}$ перпендикулярен \mathbf{r} , и, следовательно, скалярное произведение его на \mathbf{p} не приводит к появлению некоммутирующего произведения. Чтобы получить окончательный вид гамильтониана, используем тот факт, что движущаяся частица с зарядом $-e$ и массой m имеет магнитный момент \mathbf{m} , который связан с механическим моментом количества движения $\mathbf{L} = \mathbf{r} \times \mathbf{p}$ соотношением $\mathbf{m} = -(e/2m)\mathbf{L}$. В результате получаем

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = \frac{p^2}{2m} + \mathcal{V} + \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}, t) - \mathbf{m} \cdot \mathbf{B}(\mathbf{R}, t) + \\ + \frac{e}{2} \mathbf{r} \cdot \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{E}(\mathbf{R}, t) + \frac{e^2}{8m} [\mathbf{r} \times \mathbf{B}(\mathbf{R}, t)]^2. \quad (2.12) \end{aligned}$$

Первые два члена составляют невозмущенный гамильтониан в отсутствие внешнего электромагнитного поля. Третий и четвертый члены соответствуют электрическому и магнитному дипольным взаимодействиям. Пятый член представляет электрическое квадрупольное взаимодействие, при котором учитывается градиент электрического поля. Шестой член учитывает, например, диамагнитные свойства атома.

С помощью рассмотренного выше метода можно учесть взаимодействие сколь угодно высокого порядка. Но так как с увеличением порядка взаимодействия величина его уменьшается, то такая необходимость возникает редко. Изящный вывод для общего случая с помощью канонического преобразования основной формы гамильтониана (2.1) был получен Футакком [5].

В тех случаях, когда обращается в нуль член, соответствующий электрическому дипольному взаимодействию, важное значение приобретают моменты более высокого порядка. Однако в дальнейшем нас будут интересовать главным образом такие случаи, когда электрическое дипольное взаимодействие преобладает. Метод, который будет подробно рассмотрен для электрического дипольного взаимодействия, при необходимости можно применить также и в других случаях.

4. Системы многих частиц

До сих пор мы рассматривали случай, когда вблизи ядра находится один-единственный электрон. Однако к интересующим нас задачам относится рассмотрение систем многих частиц, таких, как атом со многими электронами или кристалл. Поэтому уместно рассмотреть электрическое дипольное взаимодействие для этого случая. Гамильтониан (2.9) можно обобщить простым переходом к сумме по энергиям всех электронов

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2m} \sum_k \mathbf{p}_k^2 + \mathcal{V}(\mathbf{r}_k) - \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}. \quad (2.13)$$

Здесь электрический дипольный момент системы характеризуется теперь соотношением $\boldsymbol{\mu} = -e \sum_k \mathbf{r}_k$, а потенциальная энергия $\mathcal{V}(\mathbf{r}_k)$ определяется кулоновским взаимодействием между отдельными электронами с координатами \mathbf{r}_k , а также взаимодействием электронов с ядрами [6]. Предполагается также, что в этом случае рассматриваемая область достаточно мала по сравнению с характерными размерами пространственного изменения электрического поля. Поэтому на все электроны действует одинаковое поле.

Приведенный выше гамильтониан можно переписать в виде

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'.$$

Здесь \mathcal{H}_0 — невозмущенный гамильтониан в отсутствие внешнего электромагнитного поля:

$$\mathcal{H}_0 = \frac{1}{2m} \sum_k \mathbf{p}_k^2 + \mathcal{V}(\mathbf{r}_k), \quad (2.14)$$

а гамильтониан взаимодействия \mathcal{H}' равен

$$\mathcal{H}' = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}. \quad (2.15)$$

Очевидно, что обобщение на систему многих частиц не изменяет существенно проведенного ранее рассмотрения электрического дипольного взаимодействия атома с приложенным электромагнитным полем. Такое же утверждение относится к другим членам мультипольного разложения. Однако сложность рассмотрения системы многих частиц состоит не в этом, а в трудности определения собственных функций и собственных значений невозмущенного гамильтониана (2.14). В этой книге предполагается, что гамильтониан табулирован.

§ 3. МАТРИЧНЫЕ ЭЛЕМЕНТЫ И ПОНЯТИЕ ЧЕТНОСТИ

Взаимодействие атомной или молекулярной системы с внешним электромагнитным полем описывается членом \mathcal{H}' в гамильтониане. Величина взаимодействия зависит от матричных элементов оператора \mathcal{H}' , которые в принципе можно определить с помощью квантовомеханических расчетов, если известны волновые функции. Однако даже в случае, если волновые функции не известны явно, часто можно определить, будет ли взаимодействие сильным, исходя только из симметрии волновой функции, которая в свою очередь определяется симметрией системы. Такие рассуждения проводят с помощью понятия четности, к рассмотрению которого мы и перейдем.

1. Электрический дипольный переход

Для электрического дипольного взаимодействия матричные элементы оператора \mathcal{H}' имеют вид

$$\mathcal{H}'_{mn} = \langle u_m | \mathcal{H}' | u_n \rangle = - \langle u_m | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | u_n \rangle. \quad (2.16)$$

Предполагается, что $|u_n\rangle$ являются собственными векторами невозмущенного гамильтониана \mathcal{H}_0 , т. е. выполняется уравнение

$$\mathcal{H}_0 |u_n\rangle = E_n |u_n\rangle. \quad (2.17)$$

Как говорилось выше, в дипольном приближении предполагается, что пространственное изменение электрического поля \mathbf{E} в пределах атомных размеров незначительно. Следовательно, при заданном расположении атома электрическое поле является

только функцией времени, его можно вынести из квантовомеханического скалярного произведения в (2.16). В результате матричные элементы оператора \mathcal{H}' определяются матричными элементами оператора электрического дипольного момента $\boldsymbol{\mu}$, а электрическое поле \mathbf{E} является сомножителем:

$$\mathcal{H}'_{mn} = -\boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}. \quad (2.18)$$

Покажем теперь, что из довольно элементарных соображений можно определить для данной системы, какие матричные элементы $\boldsymbol{\mu}_{mn}$ остаются и какие обращаются в нуль. Это позволяет определить, например, существует ли постоянный электрический дипольный момент и возможен ли электрический дипольный переход между определенной парой состояний под влиянием приложенного электромагнитного поля. Оба эти вопроса важны при определении, например, спектров поглощения вещества.

Для широкого класса систем преобразование инверсии $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$, примененное к невозмущенному гамильтониану $\mathcal{H}_0(\mathbf{r})$, оставляет форму гамильтониана неизменной, т. е.

$$\mathcal{H}_0(\mathbf{r}) = \mathcal{H}_0(-\mathbf{r}). \quad (2.19)$$

Если гамильтониан является функцией нескольких координат r_1, r_2, \dots , то это преобразование следует применить одновременно ко всем координатам. Инвариантность гамильтониана по отношению к этой операции имеет место, например, в системе, обладающей центром симметрии. Другим важным примером является изолированный многоэлектронный атом, потенциальная энергия которого $\mathcal{V}(\mathbf{r}_k)$ является функцией только расстояния между частицами:

$$\mathcal{V}(\mathbf{r}_k) = \mathcal{V}(\mathbf{r}_{ij}), \quad r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|.$$

Считая, что условие симметрии (2.19) выполнено, рассмотрим первый случай, когда собственные функции гамильтониана невырождены и гамильтониан действует на любую собственную функцию в соответствии с (2.17):

$$\mathcal{H}_0(\mathbf{r}) u_n(\mathbf{r}) = E_n u_n(\mathbf{r}). \quad (2.20)$$

Применяя преобразование $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$ и используя (2.19), получаем

$$\mathcal{H}_0(\mathbf{r}) u_n(-\mathbf{r}) = E_n u_n(-\mathbf{r}). \quad (2.21)$$

Из (2.20) и (2.21) видно, что $u_n(\mathbf{r})$ и $u_n(-\mathbf{r})$ являются собственными функциями, соответствующими E_n . Для невырожденного энергетического уровня существует только одна такая функция. Поэтому для того, чтобы одновременно выполнялись соотношения (2.20) и (2.21), необходимо [7, 8]

$$u_n(-\mathbf{r}) = \pm u_n(\mathbf{r}).$$

Иными словами, собственная функция является либо четной, либо нечетной функцией g . Когда собственная функция есть четная функция g , то говорят, что соответствующее состояние является четным состоянием. Если собственная функция является нечетной функцией g , то говорят о нечетном состоянии. Следовательно, собственные состояния могут быть либо четными, либо нечетными. Говорят, что такие состояния имеют определенную четность. Можно показать, что даже в случае вырождения собственные функции можно выбрать так, что они будут обладать определенной четностью [7].

Таким образом, если гамильтониан инвариантен относительно преобразования $g \rightarrow -g$, то собственные состояния имеют определенную четность. Они могут быть либо четными, либо нечетными. Полезность понятия четности как способа классификации состояний будет очевидна из следующего рассмотрения.

1. Если два собственных состояния $|u_m\rangle$ и $|u_n\rangle$, принадлежащих различным собственным значениям энергии E_m и E_n , имеют одинаковую четность, то матричный элемент μ_{mn} равен нулю. Действительно, в этом случае вычисление содержит интегралы по всему пространству вида

$$\int u_m^*(\mathbf{r}) g u_n(\mathbf{r}) dV,$$

а подынтегральное выражение является нечетной функцией. В § 4 будет показано, что если матричный элемент равен нулю, то переходы между двумя состояниями под действием приложенного электромагнитного поля запрещены. Под «запрещением» понимается запрещение в электрическом дипольном приближении. Для процессов более высокого порядка, таких, как электрический квадрупольный переход, переходы все же могут иметь место, но вероятность их в общем случае на несколько порядков меньше. Следовательно, *электрический дипольный переход может происходить только между состояниями противоположной четности*. Этот тип запрета известен как правило отбора.

2. Если собственные состояния невырождены и имеют определенную четность, то диагональные элементы оператора дипольного момента μ , а следовательно, и гамильтониана взаимодействия (2.18) обращаются в нуль, так как в расчеты входят интегралы вида

$$\int u_n^*(\mathbf{r}) g u_n(\mathbf{r}) dV.$$

При этом условии постоянный электрический дипольный момент, т. е. постоянное, или статическое, среднее значение оператора $\mu = -eg$, не может существовать. Это можно показать

с помощью следующего вычисления, которое в то же время иллюстрирует обычную процедуру перехода от квантовомеханического оператора к наблюдаемой величине. Наблюдаемая величина, в данном случае дипольный момент, получается просто нахождением среднего значения соответствующего оператора. Таким образом,

$$\langle \mu \rangle = \text{Sp} (\rho \mu) = \text{Sp} \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \dots \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \dots \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & \mu_{12} & \dots \\ \mu_{21} & 0 & \dots \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix}.$$

Заметим, что результат содержит лишь недиагональные элементы ρ_{ij} . Из (1.30) следует, что для стационарного состояния в отсутствие гамильтониана взаимодействия ρ_{ij} обращается в нуль. Поэтому система не имеет постоянного, или статического, дипольного момента. Это справедливо, например, для основных состояний всех атомов.

3. С другой стороны, если собственные состояния, хотя и имеют определенную четность, но являются вырожденными или близки к этому в отношении теплового возбуждения, то возможно существование постоянного дипольного момента [8—10]. Это имеет место для некоторых сложных молекул. В таком случае для вычисления матричных элементов нужна система ортогональных базисных векторов. Чтобы найти ее, нужно смешать состояния различной четности. Поэтому базисные векторы не имеют определенной четности. Диагональные элементы оператора электрического дипольного момента, которые определяют постоянный дипольный момент системы, в этом случае могут быть отличны от нуля. Вращательные спектры молекул полностью обусловлены взаимодействиями с постоянными электрическими дипольными моментами [11].

4. В тех системах, для которых условие инвариантности (2.19) не справедливо, собственные состояния не обладают определенной четностью. В этом случае могут быть отличны от нуля все матричные элементы оператора дипольного момента μ . Следовательно, в общем случае может существовать постоянный электрический дипольный момент и возможны дипольные переходы между всеми состояниями. Примером такой системы служит атом, помещенный в среду, в которой существует электростатическое поле (например, поле кристалла или внешнее приложенное поле). Такое поле дает вклад в член \mathcal{U}^0 в (2.14), который нарушает симметрию и не позволяет собственным состояниям иметь определенную четность. Индуцируемый постоянный дипольный момент соответствует появлению диагональных членов оператора μ . Следовательно, наложение электростати-

ческого поля приводит к тому, что в данном веществе могут происходить определенные процессы, которые в ином случае были бы запрещены условиями симметрии.

Важное применение понятия четности состоит в том, что оно полезно при определении правила отбора для сложных молекул из соображений симметрии даже в том случае, если нет информации о точном виде волновых функций.

2. Электрический квадрупольный и магнитный дипольный переходы

Как видно из соображений четности, электрические дипольные переходы между определенными состояниями запрещены. Для таких случаев полезно выяснить, могут ли иметь место переходы между рассматриваемыми состояниями за счет мультипольных членов высокого порядка, таких, как магнитный дипольный или электрический квадрупольный. В качестве примера применения понятий четности к переходам высокого порядка рассмотрим случай электрического квадрупольного перехода

Согласно разложению (2.12), гамильтониан взаимодействия, соответствующий электрическому квадрупольному взаимодействию, имеет матричные элементы вида

$$\begin{aligned} \mathcal{H}'_{mn} &= \langle u_m | \mathcal{H}' | u_n \rangle = \frac{e}{2} \langle u_m | \mathbf{r} \cdot \mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{E}(\mathbf{R}, t) | u_n \rangle = \\ &= \frac{e}{2} \langle u_m | \mathbf{r} \cdot \mathbf{r} \cdot | u_n \rangle \nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{E}(\mathbf{R}, t). \end{aligned} \quad (2.22)$$

Так как функция $\nabla_{\mathbf{R}} \mathbf{E}$ не зависит от координаты электрона \mathbf{r} , то ее можно вынести из квантовомеханического скалярного произведения. При вычислении написанных выше произведений векторов сначала определяется скаляр $\mathbf{r} \cdot \nabla_{\mathbf{R}}$. Затем этот скаляр действует на \mathbf{E} , давая в результате вектор. И, наконец, полученный вектор скалярно умножается на первый вектор \mathbf{r} . Любая другая последовательность операций нарушает правила векторной алгебры.

В этом случае видно, что если два собственных состояния $|u_m\rangle$ и $|u_n\rangle$, соответствующих различным собственным значениям энергии E_m и E_n , имеют противоположную четность, то матричные элементы в (2.22) обращаются в нуль. Действительно, вычисление содержит интегралы по всему пространству вида

$$\int u_m^*(\mathbf{r}) x u_n(\mathbf{r}) dV,$$

в которых подынтегральное выражение есть нечетная функция. Следовательно, *электрические квадрупольные переходы могут происходить только между состояниями одинаковой четности.*

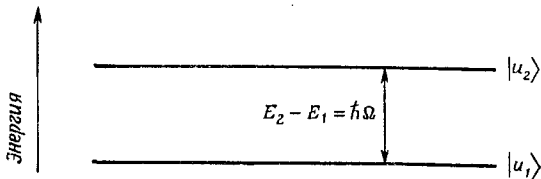
Это условие противоположно условию для электрического дипольного случая. Поэтому, когда из соображений четности для одного случая переход запрещен, для другого он разрешен.

Подобным образом можно показать, что, как и для электрического квадрупольного случая, *магнитные дипольные переходы могут происходить только между состояниями одинаковой четности*. Соображения четности можно аналогичным образом применить к мультипольным взаимодействиям высокого порядка.

§ 4. УРАВНЕНИЯ ДВИЖЕНИЯ ДЛЯ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ДИПОЛЬНОГО ПЕРЕХОДА

1. Гамильтониан

Взаимодействие, которое имеет место между классическим электромагнитным полем и квантованной средой за счет электрического дипольного перехода, можно описать системой связанных нелинейных дифференциальных уравнений, которые будут получены в этом разделе. Электрические дипольные переходы обычно ответственны за поглощение и дисперсионные свойства веществ в ультрафиолетовой, видимой и ближней инфракрасной областях оптического спектра.



Фиг. 2.2. Диаграмма уровней энергии для электрического дипольного перехода.

Предположим, что среда состоит из набора атомов или молекул, обладающих парой невырожденных собственных состояний противоположной четности $|u_1\rangle$ и $|u_2\rangle$. Разность энергий, как показано на фиг. 2.2, равна $E_2 - E_1 = \hbar\Omega$.

Гамильтониан такой системы определяется выражением

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}', \quad (2.23)$$

где \mathcal{H}_0 — гамильтониан невозмущенной среды, а гамильтониан взаимодействия \mathcal{H}' соответствует электрическому дипольному переходу

$$\mathcal{H}' = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} = -\mu_\alpha E_\alpha. \quad (2.24)$$

Индекс $\alpha = x, y, z$ обозначает координатное направление. По повторяющимся индексам подразумевается суммирование, т. е.

$$\mu_\alpha E_\alpha \equiv \mu_x E_x + \mu_y E_y + \mu_z E_z.$$

Основной гамильтониан \mathcal{H}_0 , удовлетворяющий уравнению на собственные значения $\mathcal{H}_0|u_n\rangle = E_n|u_n\rangle$, имеет матричные элементы $(\mathcal{H}_0)_{mn} \equiv \langle u_m|\mathcal{H}_0|u_n\rangle = E_n\delta_{mn}$ и, следовательно, может быть записан в матричном виде

$$\mathcal{H}_0 = \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix}. \quad (2.25)$$

Из соображений четности, рассмотренных в предыдущем разделе, ясно, что оператор электрического дипольного момента для двухуровневой системы, обладающей невырожденными собственными состояниями противоположной четности, дается выражением ¹⁾

$$\mu_\alpha = \begin{pmatrix} 0 & \mu_\alpha \\ \mu_\alpha^* & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.26)$$

В написанной выше матрице матричный элемент μ_x , например, является просто x -компонентой матричного элемента оператора μ , взятого между состояниями $|u_1\rangle$ и $|u_2\rangle$:

$$\mu_x = \langle u_1|\mu|u_2\rangle \cdot \mathbf{1}_x.$$

Здесь $\mathbf{1}_x$ — единичный вектор в направлении оси x . Комплексное сопряжение появляется в (2.26) потому, что оператор μ соответствует физической наблюдаемой величине и должен быть эрмитовым.

Так как оператор электрического дипольного момента определяется выражением (2.26), то соответствующий гамильтониан взаимодействия (2.24) равен

$$\mathcal{H}' = \begin{pmatrix} 0 & -\mu_\alpha E_\alpha \\ -\mu_\alpha^* E_\alpha & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.27)$$

Здесь снова по повторяющимся индексам подразумевается суммирование.

Выведем теперь уравнения движения для классических наблюдаемых величин. Развитая здесь техника имеет общую применимость и будет использована для решения многочисленных задач повсюду в тексте.

¹⁾ Заметим, что символ μ_α используется для обозначения как оператора дипольного момента, так и его матричных элементов. Однако из контекста всегда ясно, что этот символ обозначает. Запись же значительно упрощается. Иначе нужно было бы использовать громоздкие обозначения типа

$$\mu_\alpha = \begin{pmatrix} 0 & (\mu_\alpha)_{12} \\ (\mu_\alpha)_{12}^* & 0 \end{pmatrix}.$$

2. Электрический дипольный момент

Важной наблюдаемой величиной в случае электрического дипольного перехода является среднее значение дипольного момента $\langle \mu_\alpha \rangle$, определяемое следом

$$\langle \mu_\alpha \rangle = \text{Sp} (\rho \mu_\alpha). \quad (2.28)$$

Согласно (2.26), все диагональные элементы μ_α равны нулю. Следовательно, соответствующее уравнение движения для первой производной $\langle \mu_\alpha \rangle$ получим с помощью (1.48)

$$\langle \dot{\mu}_\alpha \rangle + \frac{\langle \mu_\alpha \rangle}{T_2} = \frac{1}{i\hbar} \langle [\mu_\alpha, \mathcal{H}] \rangle. \quad (2.29)$$

Здесь точка обозначает операцию $\partial/\partial t$.

Вычисление коммутатора $[\mu_\alpha, \mathcal{H}]$ с помощью выражений (2.23) — (2.27) дает

$$\begin{aligned} [\mu_\alpha, \mathcal{H}] &= [\mu_\alpha, \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'] = [\mu_\alpha, \mathcal{H}_0] + [\mu_\alpha, \mathcal{H}'] = \\ &= [\mu_\alpha, \mathcal{H}_0] = \hbar\Omega \begin{pmatrix} 0 & \mu_\alpha \\ -\mu_\alpha^* & 0 \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (2.30)$$

где $\hbar\Omega = E_2 - E_1$. В полученной матрице (2.30) нельзя узнать ни одного оператора из определенных ранее. Однако желательно получить выражение, зависящее только от средних значений величин. Поэтому с помощью (1.51) перейдем к выражению для второй производной $\langle \mu_\alpha \rangle$:

$$\langle \ddot{\mu}_\alpha \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{\mu}_\alpha \rangle + \frac{1}{T_2^2} \langle \mu_\alpha \rangle = -\frac{1}{\hbar^2} \langle [[\mu_\alpha, \mathcal{H}], \mathcal{H}] \rangle. \quad (2.31)$$

Так как $[\mu_\alpha, \mathcal{H}'] = 0$, то второй член в правой части (1.51) исчезает.

Внутренний коммутатор в правой части (2.31) определяется из (2.30). Вычисление внешнего коммутатора, выполненное аналогично, дает

$$[[\mu_\alpha, \mathcal{H}], \mathcal{H}] = \begin{pmatrix} -2\hbar\Omega\mu_\alpha\mu_\beta^*E_\beta & \hbar^2\Omega^2\mu_\alpha \\ \hbar^2\Omega^2\mu_\alpha^* & 2\hbar\Omega\mu_\alpha\mu_\beta^*E_\beta \end{pmatrix}. \quad (2.32)$$

При выводе этого уравнения использован тот факт, что $\mu_\alpha\mu_\beta^*$ является, как доказано в приложении 3, вещественной величиной.

Матрицу (2.32) можно представить в виде двух матриц, одна из которых соответствует оператору дипольного момента μ_α и определяется выражением (2.26), а другая является диагональной:

$$[[\mu_\alpha, \mathcal{H}], \mathcal{H}] = \hbar^2\Omega^2\mu_\alpha - 2\hbar\Omega\mu_\alpha\mu_\beta^*E_\beta D.$$

Здесь D — диагональная матрица

$$D = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (2.33)$$

Чтобы определить, какую наблюдаемую величину представляет матрица D , воспользуемся выражением (2.28):

$$\langle D \rangle = \text{Sp} \left[\begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \right] = (\rho_{11} - \rho_{22}). \quad (2.34)$$

Таким образом, диагональная матрица соответствует разности вероятностей заселения нижнего и верхнего энергетических собственных состояний. Следовательно, уравнение движения для электрического дипольного момента (2.31) преобразуется к виду

$$\langle \dot{\mu}_\alpha \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \mu_\alpha \rangle + \Omega^2 \langle \mu_\alpha \rangle = \frac{2\Omega}{\hbar} (\mu_\alpha \mu_\beta^*) (\rho_{11} - \rho_{22}) E_\beta^{\text{лок}}. \quad (2.35)$$

В этом конечном уравнении принято $\Omega^2 \gg 1/T_2^2$, что справедливо для большинства случаев, представляющих для нас интерес. Физически это соответствует тому, что ширина линии перехода мала по сравнению с резонансной частотой. Кроме того, поле записано в виде $E_\beta^{\text{лок}}$, чтобы подчеркнуть, что на каждый атом или молекулу действует локальное поле. В плотной среде это поле не совпадает с полем, входящим в уравнения Максвелла. Локальное поле, действующее на молекулу, отличается от макроскопического поля вследствие влияния поляризуемости вещества. Этот вопрос будет подробно рассмотрен в п. 6.

3. Усреднение по молекулам

Предположим, что в единице объема содержится $N = \mathcal{N}/V$ атомов или молекул, дипольный момент которых определяется выражением (2.35). Полную макроскопическую поляризацию среды найдем как сумму вкладов от каждой молекулы:

$$P_\alpha = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^{\mathcal{N}} \langle \mu_\alpha \rangle^i = N_V \overline{\langle \mu_\alpha \rangle}. \quad (2.36)$$

Черта сверху указывает на усреднение по всем молекулам. Величина $\langle \mu_\alpha \rangle$ меняется от молекулы к молекуле, так как каждая из них может иметь различную ориентацию.

Суммируя и проводя усреднение по ориентациям в (2.35), в правой части получаем выражение

$$N_V \overline{(\mu_\alpha \mu_\beta^*) (\rho_{11} - \rho_{22})}. \quad (2.37)$$

При этом предполагается, что поле $E_{\beta}^{\text{лок}}$ постоянно по всему объему. Если важно пространственное изменение величины $E_{\beta}^{\text{лок}}$, то поле должно быть учтено, когда производится усреднение. Так как ρ_{ii} есть вероятность заселения i -го состояния, а $N_V \bar{\rho}_{ii}$ — усредненное по ориентациям среднее значение числа молекул, находящихся в i -м состоянии в единице объема, то используем определение

$$(N_1 - N_2) \equiv N_V \bar{\rho}_{11} - N_V \bar{\rho}_{22} = N_V \langle \bar{D} \rangle. \quad (2.38)$$

Величина $(N_1 - N_2)$ будет называться разностью населенностей в единице объема.

Предположим сначала, что величина $(\rho_{11} - \rho_{22})$ приблизительно одинакова для всех молекул независимо от их ориентаций. Это условие часто выполняется, так как величина $(\rho_{11} - \rho_{22})$ устанавливается в результате, например, теплового равновесия с окружающей средой или равновесия с изотропным источником излучения. При этом условии выражение (2.37) для пространственного усреднения можно переписать в виде

$$\overline{(\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*)} N_V (\rho_{11} - \rho_{22}) = \overline{(\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*)} (N_1 - N_2). \quad (2.39)$$

Если значение $(\rho_{11} - \rho_{22})$ зависит от ориентации, но все молекулы ориентированы одинаково, как, например, в однодоменном кристалле, то выражение (2.37) снова сводится к (2.39). Если на систему молекул действует сильно поляризованное поле, то величина $(\rho_{11} - \rho_{22})$ может изменяться, так как имеет место большое число переходов. При произвольной ориентации молекул $(\rho_{11} - \rho_{22})$ зависит от ориентации так же, как и $\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*$. Для этого случая (2.37) преобразуется к виду

$$b \overline{(\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*)} (N_1 - N_2), \quad (2.40)$$

где

$$b \equiv \frac{\overline{(\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*)} (\rho_{11} - \rho_{22})}{\overline{(\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*)} (\rho_{11} - \rho_{22})}.$$

При этом $0 \leq b \leq 1$. В дальнейшем будем предполагать, что $b \approx 1$, так что справедливо (2.39). В этом случае среднее по ориентации значение произведения $\overline{(\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*)} (\rho_{11} - \rho_{22})$ равно произведению средних значений, и обе функции в произведении являются независимыми в отношении ориентации. При $b \neq 1$ применимы те же уравнения, если $\overline{(\mu_{\alpha} \mu_{\beta}^*)}$ умножить на b . В гл. 3, § 4 и в приложении 5 сделана оценка ошибки, появляющейся при использовании выражения (2.39) для сильного поля. Найдено, что эта ошибка в общем случае незначительна.

Производя суммирование в обеих частях (2.35) и учитывая приведенные выше рассуждения, находим уравнение движения для макроскопической поляризации $P_\alpha = N_V \overline{(\mu_\alpha)}$:

$$\ddot{P}_\alpha + \frac{2}{T_2} \dot{P}_\alpha + \Omega^2 P_\alpha = \frac{2\Omega}{\hbar} \overline{(\mu_\alpha \mu_\beta^*)} (N_1 - N_2) E_\beta^{\text{лок}}. \quad (2.41)$$

Требуемое усреднение величины $(\mu_\alpha \mu_\beta^*)$ состоит в усреднении по всем возможным ориентациям, так как она в общем случае зависит от ориентации молекулы по отношению к фиксированной системе координат, которая используется для вычисления матричных элементов оператора электрического дипольного момента μ . В качестве примера рассмотрим газ произвольно ориентированных анизотропных молекул. Любая данная молекула может иметь в соответствии с (2.35) y -компоненту дипольного момента, появляющуюся за счет x -компоненты приложенного поля, так как вследствие случайной ориентации величина $(\mu_y \mu_x^*)$ может иметь конечное значение. При усреднении, однако, y -компоненты дипольного момента взаимно уничтожаются, так как весь газ является изотропным. Это означает, что x -компонента поля приводит к появлению только x -компоненты поляризации. С другой стороны, в определенных кристаллических структурах возможна лишь одна ориентация. В этом случае средняя величина произведения матричных элементов имеет такое же значение, как для отдельного атома.

В качестве примера усреднения по ориентациям рассмотрим изотропный газ анизотропных молекул, о котором упоминалось выше. Как уже обсуждалось, $\overline{(\mu_\alpha \mu_\beta^*)} = 0$ при $\alpha \neq \beta$, поскольку для изотропной среды индуцированный дипольный момент, усредненный по большому числу молекул, должен иметь то же направление, что и приложенное поле. Следовательно, необходимо рассмотреть только члены $|\overline{\mu_x}|^2$, $|\overline{\mu_y}|^2$ и $|\overline{\mu_z}|^2$. Кроме того, в изотропной среде направления x , y и z равноправны и, следовательно, $|\overline{\mu_x}|^2 = |\overline{\mu_y}|^2 = |\overline{\mu_z}|^2$. Введем величину

$$|\mu_{12}|^2 = |\overline{\mu_x}|^2 + |\overline{\mu_y}|^2 + |\overline{\mu_z}|^2 = 3 |\overline{\mu_x}|^2. \quad (2.42)$$

В изотропном случае, используя (2.42), уравнение (2.41) можно записать в виде

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} = \frac{2\Omega}{\hbar} \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \mathbf{E}^{\text{лок}}. \quad (2.43)$$

Среда с более сложной симметрией рассматривается в гл. 3.

Уравнение (2.41) является основным уравнением для поляризации квантованной среды. Видно, что поляризация среды ведет себя как гармонический осциллятор частоты Ω , возбуждаемый электрическим полем с коэффициентом связи, пропор-

диональным разности населенностей. Первый вывод, который ложно сделать из (2.41), состоит в том, что в отсутствие приложенного поля начальная поляризация будет затухать с постоянной времени поперечной релаксации T_2 вследствие расфазировки индивидуальных диполей в результате взаимодействия их между собой. Другой важный вывод заключается в том, что влияние электрического поля на поляризацию ослабевает, когда населенность двух уровней становится приблизительно одинаковой. В частности, если населенности равны, то связи с электрическим полем нет. Это означает, что поляризационный осциллятор «не чувствует» возбуждающее поле. Позднее будет видно, что этот эффект лежит в основе явления насыщения.

4. Разность населенностей

Другой наблюдаемой величиной, которая представляет интерес в проблеме электрического дипольного перехода, является разность населенностей в единице объема. Эта величина определяется выражением (2.38), которое выводится с помощью диагонального матричного оператора (2.33) и (2.34):

$$(N_1 - N_2) = N_V \overline{(\rho_{11} - \rho_{22})} = N_V \overline{\langle D \rangle}. \quad (2.44)$$

Здесь

$$D = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix},$$

N_V — число атомов или молекул в единице объема, а черта сверху указывает на усреднение по ориентациям.

Разность населенностей является мерой энергии, запасенной в квантованной среде. Мощность \mathcal{P} , которая поступает в единицу объема среды, дается выражением

$$\mathcal{P} = - \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{\hbar \Omega}{2} (N_1 - N_2) \right]. \quad (2.45)$$

Таким образом, если в единице объема атом переходит с уровня 1 на уровень 2, то N_1 уменьшается на единицу, а N_2 увеличивается на единицу. Разность уменьшается на 2, а запасенная в единице объема энергия увеличивается на $\hbar \Omega$.

Начнем рассмотрение разности населенностей, определяемой выражением (2.44), с получения уравнения движения для первой производной наблюдаемой величины $\langle D \rangle = (\rho_{11} - \rho_{22})$. Из уравнения (1.49), которое применимо для оператора, выражаемого диагональной матрицей, имеем

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_{11} - \rho_{22}) + \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11} - \rho_{22})^e}{T_1} = \frac{1}{i\hbar} \langle [D, \mathcal{H}] \rangle. \quad (2.46)$$

Вычисление коммутатора $[D, \mathcal{H}]$ с помощью (2.23) — (2.27) дает

$$\begin{aligned} [D, \mathcal{H}] &= [D, \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'] = [D, \mathcal{H}_0] + [D, \mathcal{H}'] = \\ &= [D, \mathcal{H}'] = -2E_\alpha \begin{pmatrix} 0 & \mu_\alpha \\ -\mu_\alpha^* & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (2.47)$$

В результате получается матрица, появившаяся в (2.30). Комбинация выражений (2.29), (2.30) и (2.47) и подстановка в (2.46) приводят к уравнению

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = -\frac{2}{\hbar\Omega} \dot{P}_\alpha E_\alpha^{\text{лок}}. \quad (2.48)$$

При этом проведено пространственное усреднение, указанное в (2.36) и (2.44), а индекс «лок» подчеркивает, что на молекулы действует локальное поле. Кроме того, так как для интересующих нас случаев $\Omega T_2 \gg 1$, то отброшен малый по сравнению с \dot{P}_α член P_α/T_2 .

Уравнение (2.48) для разности населенностей квантованной среды является другой формой записи исходных уравнений для диагональных элементов матрицы плотности. Это уравнение является уравнением баланса мощности. Причем изменение энергии, запасенной в единице объема квантованной среды, определяется мощностью $\dot{P} \cdot E$. Аналогичный член известен из уравнений Максвелла, где в теореме Пойнтинга он представляет энергию, затрачиваемую полем на поляризацию среды.

Если поле отсутствует, то из-за наличия второго члена в левой части уравнения (2.48) начальная разность населенностей $(N_1 - N_2)$ уменьшается, стремясь к равновесному значению с постоянной времени продольной или тепловой релаксации T_1 . Следовательно, второй член соответствует обмену энергией с окружающей средой. Равновесное значение, к которому стремится разность населенностей, обычно определяется распределением Больцмана. Однако позднее будет показано, что при определенных процессах возбуждения возможно другое равновесное значение разности населенностей. Использование таких процессов возбуждения существенно для работы мазеров и лазеров.

Уравнения (2.41) — (2.48) для поляризации и разности населенностей в единице объема получены с помощью метода матрицы плотности, рассмотренного в гл. 1. Этот метод приводит к дифференциальным уравнениям для классических переменных. Такие уравнения имеют физическую интерпретацию, которая помогает понять основные процессы и дает руководство при использовании приближенных методов.

5. Уравнения поля

Уравнения движения для поляризации и разности населенностей описывают поведение среды при наличии электромагнитного поля. Чтобы система уравнений была замкнутой, необходимо включить уравнение поля, которое учитывает обратное воздействие динамических свойств среды на поле.

Уравнения поля для изотропной поляризуемой среды в отсутствие свободных зарядов имеют вид

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0, & \nabla \cdot \mathbf{D} &= 0, \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}, & \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{H}, & \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{\text{полн}}, \\ & & \mathbf{J} &= \sigma \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (2.49)$$

Феноменологический член проводимости $\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}$ учитывает потери, возникающие за счет поглощения и рассеяния, обусловленных всеми остальными переходами, кроме рассматриваемого.

В п. 7 этого параграфа будет показано, что полную поляризацию $\mathbf{P}^{\text{полн}}$ можно разделить на две части. Первая часть, \mathbf{P}^s , появляется за счет рассматриваемого перехода и связана с поляризацией \mathbf{P} , входящей в уравнения движения (2.41) и (2.48). Вторая часть определяется всеми остальными переходами. В результате такого деления выражение для \mathbf{D} можно переписать в виде

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}^s.$$

При такой записи влияние рассматриваемого перехода явно учтено с помощью поляризации \mathbf{P}^s . Вклады в поляризацию, связанные с другими переходами, учитываются путем замены ϵ_0 на ϵ . Соответствующее значение ϵ совпадает с измеренным на частотах выше рассматриваемого перехода [12].

Волновое уравнение для \mathbf{E} можно получить, взяв ротор от уравнения $\nabla \times \mathbf{E}$ и сделав соответствующие подстановки из других уравнений. В результате получаем

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{\eta \mathcal{A}}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^s}{\partial t^2}, \quad (2.50)$$

где $c^2 = 1/\mu_0 \epsilon_0$, а показатель преломления среды $\eta = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$ не включает влияние рассматриваемого перехода. Кроме того, коэффициент затухания $\mathcal{A} = \mu_0 \sigma c / \eta$ введем так, что в отсутствие поляризации энергия плоской волны, пропорциональная $|\mathbf{E}|^2$, при распространении в направлении оси z уменьшается по закону $e^{-\mathcal{A}z}$.

Уравнение такого вида удобно анализировать, представляя поле в виде бегущих плоских волн:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_l \frac{\mathbf{E}_0^l}{2} e^{i(\omega_l t - \mathbf{k}_l \cdot \mathbf{r})} + \text{компл. сопр.}$$

Такой метод обычно используется при рассмотрении явлений поглощения, усиления и генерации гармоник.

Другая форма записи уравнений поля полезна при рассмотрении резонаторов. Она получается разложением полей по нормальным типам колебаний резонатора, как это описано Слэтером [13]. В резонаторах СВЧ, например, нормальные типы колебаний представляют собой обычные стоячие волны.

Разложение по нормальным типам колебаний получается при рассмотрении распределения полей внутри резонатора с идеально проводящими стенками, заполненного диэлектрической средой с проницаемостью ϵ . Граничные условия для такого резонатора состоят в том, что тангенциальные компоненты \mathbf{E} и нормальная компонента \mathbf{B} обращаются в нуль на поверхности. Показано, что решения уравнений поля, удовлетворяющие граничным условиям, можно записать в виде суммы бесконечного дискретного набора нормальных типов колебаний $\mathbf{E}_a(\mathbf{r})$, $\mathbf{H}_a(\mathbf{r})$, которые удовлетворяют уравнениям

$$\nabla \times \mathbf{E}_a = \frac{\omega_a \eta}{c} \mathbf{H}_a, \quad \nabla \times \mathbf{H}_a = \frac{\omega_a \eta}{c} \mathbf{E}_a. \quad (2.51)$$

Из приведенных уравнений видно, что $\mathbf{E}_a(\mathbf{r})$ и $\mathbf{H}_a(\mathbf{r})$ являются собственными функциями оператора $(\nabla \times \nabla \times)$, соответствующими собственным значениям $(\omega_a \eta / c)^2$. Эти функции ортогональны и могут быть нормированы следующим образом:

$$\int \mathbf{E}_a \cdot \mathbf{E}_b dV = \delta_{ab}, \quad \int \mathbf{H}_a \cdot \mathbf{H}_b dV = \delta_{ab}. \quad (2.52)$$

Произвольное поле можно представить в виде разложения по нормальным модам:

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{\sqrt{\epsilon}} \sum_a \rho_a(t) \mathbf{E}_a(\mathbf{r}), \quad \mathbf{H} = \frac{1}{\sqrt{\mu}} \sum_a \omega_a q_a(t) \mathbf{H}_a(\mathbf{r}),$$

где временная зависимость выражается множителями $q_a(t)$, $\rho_a(t)$.

Подставляя разложение по нормальным типам колебаний в волновое уравнение (2.50) и используя (2.51) и (2.52), находим дифференциальное уравнение для $\rho_a(t)$:

$$\ddot{\rho}_a + \frac{\mathcal{A}c}{\eta} \dot{\rho}_a + \omega_a^2 \rho_a = \frac{1}{\sqrt{\epsilon}} \int \ddot{\mathbf{P}}^s \cdot \mathbf{E}_a(\mathbf{r}) dV. \quad (2.53)$$

Если предположить, что преобладает единственный нормальный тип колебаний $\mathbf{E}_c(\mathbf{r})$, то полное поле дается выражением

$$\mathbf{E} = -\frac{p_c(t) \mathbf{E}_c(\mathbf{r})}{V \epsilon}.$$

Следовательно, (2.53) можно записать в виде

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c} \dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2 \mathbf{E} = -\frac{1}{\epsilon} \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) \int \ddot{\mathbf{P}}^s \cdot \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) dV, \quad (2.54)$$

где $\tau_c = \eta/\mathcal{A}c$ — время затухания резонатора, т. е. время, которое требуется для того, чтобы в отсутствие возбуждения энергии в резонаторе уменьшилась в e раз¹⁾.

Во многих случаях поляризация \mathbf{P} сама задается полем и поэтому имеет такое же пространственное распределение, как и нормальный тип колебаний. В этом случае (2.54) можно упростить к виду

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c} \dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2 \mathbf{E} = -\frac{1}{\epsilon} \ddot{\mathbf{P}}^s. \quad (2.55)$$

При выводе (2.55) предполагалось, что источник поляризации целиком заполняет резонатор. Если это не так, то правую часть (2.55) нужно умножить на коэффициент заполнения F , определяемый соотношением $F = \int |\mathbf{E}_c(\mathbf{r})|^2 dV$, где интеграл берется по объему источника поляризации. Так как $\mathbf{E}_c(\mathbf{r})$ есть функция, нормированная по объему резонатора, то $F = 1$, если источник поляризации заполняет весь резонатор. В большинстве случаев хорошим приближением для F является отношение объема источника к объему резонатора. До тех пор, пока это не оговаривается особо, будем полагать $F = 1$.

Если уравнение поля в форме (2.50) или (2.54) и (2.55) добавить к уравнениям предыдущей главы, то получим замкнутую систему, необходимую для полного описания электрического дипольного взаимодействия классического электромагнитного поля с двухуровневой квантованной средой.

¹⁾ Время затухания резонатора введено здесь с учетом потерь за счет проводимости. Однако оно может учитывать все механизмы потерь в резонаторе. Например, для оптического резонатора

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{1}{\tau_m} + \frac{1}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_d},$$

где τ_m — время затухания, определяемое потерями только на излучение через зеркала; τ_s соответствует потерям на рассеяние и поглощение за счет влияния переходов, исключая рассматриваемый переход, и τ_d определяется дифракционными потерями. Выражение для τ_m в зависимости от коэффициента отражения зеркал, составляющих резонатор, получено в гл. 4, п. 4; $\tau_s = \eta/\mathcal{A}c$, где \mathcal{A} — коэффициент ослабления мощности плоской волны, распространяющейся в среде; величина τ_d зависит от геометрических размеров, таких, как расстояние между зеркалами и их радиус [14].

6. Электрический дипольный переход. Краткое изложение результатов

Изложим кратко метод, используемый при получении системы уравнений для электрического дипольного перехода.

1. Выбирается гамильтониан взаимодействия.

2. Средние значения соответствующих наблюдаемых записываются с помощью следов.

3. С использованием выражений гл. 1, § 4 для производных средних значений величин получают дифференциальные уравнения для переменных, представляющих интерес.

4. Для получения замкнутой системы добавляется уравнение поля.

В случае электрического дипольного перехода гамильтониан взаимодействия

$$\mathcal{H}' \rightarrow \begin{pmatrix} 0 & -\mu_\alpha E_\alpha \\ -\mu_\alpha^* E_\alpha & 0 \end{pmatrix}$$

приводит к следующим уравнениям движения для изотропной среды:

$$\begin{aligned} \ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} &= \frac{2\Omega}{\hbar} \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \mathbf{E}^{\text{лок}}, \\ \frac{\partial}{\partial t} (N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} &= -\frac{2}{\hbar\Omega} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}^{\text{лок}}. \end{aligned} \quad (2.56)$$

Уравнение поля имеет вид

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{\eta \mathcal{A}}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^s}{\partial t^2} \quad (\text{для бегущей волны}), \quad (2.57)$$

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c} \dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2 \mathbf{E} = -\frac{1}{\epsilon} \mathbf{E}_c \int \ddot{\mathbf{P}}^s \cdot \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) dV \quad (\text{для резонатора}).$$

7. Поправочный коэффициент для локального поля

Для дальнейшего рассмотрения необходимо перейти от микроскопических величин к макроскопическим. А именно нужно определить соотношения, которые существуют, с одной стороны, между локальным и макроскопическим полями и, с другой стороны, между поляризационным источником \mathbf{P}^s , возбуждающим макроскопическое поле, и действительной поляризацией \mathbf{P} , которая входит в уравнения для среды. Различие в этих величинах связано с влиянием поляризуемого вещества на локальное электрическое поле, которое действует на данный атом или молекулу.

Для двух сред, которые совершенно случайно сильно различаются по плотности, эффекты поляризации можно не учитывать. Во-первых, это разреженный газ, где нет близлежащих молекул, которые влияли бы на локальное поле. Поэтому оно совпадает с макроскопическим полем. Во-вторых, это электроны проводимости в полупроводниках и металлах, где волновые функции электронов скорее размазаны по всему кристаллу, чем локализованы на данном атоме. В результате нужно учитывать макроскопическое поле [3]. Для этих двух случаев можно положить $\mathbf{E}^{\text{лок}}$ равным \mathbf{E} , а \mathbf{P}^s равным \mathbf{P} .

Для других плотных сред различие между локальным и макроскопическим полями проводится с помощью поправочного коэффициента Лоренца, который учитывает изменение локального поля за счет поляризации. Соответствующее вычисление для изотропной среды вынесено в приложение 4. Результаты этого вычисления таковы:

1. Выражение для источника \mathbf{P}^s , которое используется в уравнении поля для учета исследуемого перехода, связано с действительной поляризацией \mathbf{P} соотношением

$$\mathbf{P}^s = \left(\frac{\eta^2 + 2}{3} \right) \mathbf{P}, \quad (2.58)$$

где $\eta = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$ — показатель преломления среды без учета рассматриваемого перехода.

2. Локальное поле связано с макроскопическим полем:

$$\mathbf{E}^{\text{лок}} = \left(\frac{\eta^2 + 2}{3} \right) \mathbf{E}. \quad (2.59)$$

С помощью (2.58) и (2.59) уравнения движения для изотропной среды приводятся к виду

$$\ddot{\mathbf{P}}^s + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}}^s + \Omega^2 \mathbf{P}^s = \frac{2\Omega}{\hbar} \frac{L |\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \mathbf{E}, \quad (2.60a)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = - \frac{2}{\hbar\Omega} \dot{\mathbf{P}}^s \cdot \mathbf{E}, \quad (2.60b)$$

где $L = [(\eta^2 + 2)/3]^2$ — поправочный коэффициент Лоренца для изотропного случая. Уравнения поля остаются в неизменном виде:

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{\eta^2}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^s}{\partial t^2} \quad (\text{для бегущей волны}), \quad (2.60в)$$

$$\ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c} \dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2 \mathbf{E} = - \frac{1}{\epsilon} \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) \int \ddot{\mathbf{P}}^s \cdot \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) dV \quad (\text{для резонатора}). \quad (2.60г)$$

Таким образом, видно, что влияние поляризации среды на вид уравнений для случая электрического дипольного перехода состоит во введении поправочного коэффициента Лоренца L .

Из уравнения (2.60а) видно, что поляризация ведет себя подобно гармоническому осциллятору, возбуждаемому электрическим полем, и коэффициент связи пропорционален разности населенностей. Уравнение (2.60б) для разности населенностей является уравнением баланса мощности и связывает изменения энергии, запасенной в единице объема среды, с возбуждением вида $\dot{P}^s \cdot E$. Уравнения (2.60в) и (2.60г) описывают поведение макроскопического электромагнитного поля, причем влияние среды на поле определяется членом вида \dot{P}^s . Эта система связанных уравнений взята в качестве основы в гл. 3 при рассмотрении различных явлений, таких, как поглощение, дисперсия, насыщение и работа лазера.

Уравнения (2.60) применимы к изотропной среде. Для анизотропной среды, например для сложного кристалла, уравнения в такой форме можно использовать в том случае, если поляризация и поле направлены вдоль главных осей системы. (Главные оси — это такие направления, для которых компонента поляризации зависит лишь от компоненты поля, имеющей то же направление, т. е. тензор, связывающий поле с поляризацией, является диагональным.) Следовательно, результаты, полученные в этой главе на основе уравнений (2.60), применимы и для главных осей при замене

$$e \rightarrow e_\alpha; \quad \eta \rightarrow \eta_\alpha; \quad L \rightarrow L_\alpha; \quad \frac{|\mu_{12}|^2}{3} \rightarrow |(\mu_\alpha)_{12}|^2. \quad (2.61)$$

Новые значения соответствуют направлению поляризации α и будут в общем случае различны для разных направлений.

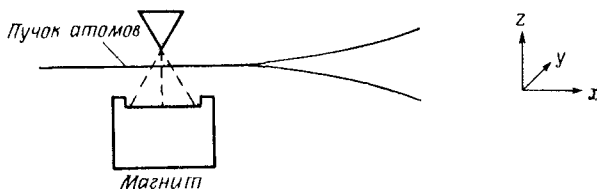
При произвольном направлении поляризации в анизотропной среде необходимо вернуться к выражениям (2.41) и (2.48) и провести в общем виде рассмотрение, представленное для изотропного случая.

§ 5. УРАВНЕНИЯ ДВИЖЕНИЯ ДЛЯ МАГНИТНОЙ ДИПОЛЬНОЙ СИСТЕМЫ, ИМЕЮЩЕЙ СПИН $1/2$

Электрический дипольный переход во многом аналогичен магнитной дипольной системе со спином $1/2$. Одним из примеров системы со спином $1/2$ является электрон. Другими примерами служат протоны, нейтроны и некоторые «одноэлектронные» атомы, такие, как серебро, имеющие заполненные оболочки и подоболочки, спин которых равен нулю и единственный валентный электрон находится в s -состоянии [6]. При дальнейшем рассмотрении мы ограничимся электроном. Магнитный дипольный член, рассмотренный в этом параграфе, не связан с индуциро-

ваным диполем, появляющимся при мультипольном разложении (§ 2). Он соответствует постоянному магнитному диполю.

Электрон имеет измеримый спиновый момент количества движения $\hbar/2$ и магнитный дипольный момент, равный $eh/2m$ в МКС единицах [6]. Эти свойства, хотя и наводят на мысль о вращающемся заряде, не имеют удовлетворительного классического объяснения. Следовательно, они должны рассматриваться как чисто квантовомеханические по своей природе и отражающие определенные внутренние степени свободы частицы.



Фиг. 2.3. Схема эксперимента Штерна и Герлаха.

Экспериментально обнаружено, что спин может иметь только две противоположные ориентации по отношению к некоторому фиксированному направлению в пространстве, которое обычно выбирают в качестве оси z . Одна из этих ориентаций параллельна, другая — антипараллельна исходной оси. Такое поведение можно объяснить квантовомеханически, постулируя существование двух спиновых собственных состояний, обозначаемых $|+\rangle$ и $|-\rangle$, которые удовлетворяют уравнению для собственных значений

$$s_z |\pm\rangle = \pm \frac{\hbar}{2} |\pm\rangle, \quad (2.62)$$

где s_z — оператор спина, соответствующий измерению z -компоненты спина. Собственные значения этого оператора равны $\pm \hbar/2$. Измерения такого типа можно выполнить с помощью опыта Штерна — Герлаха (фиг. 2.3), в котором поток частиц, проходя через неоднородное магнитное поле, делится на два четко разделенных в пространстве пучка в соответствии с их спинами. Отклонение вызывается силой, которая действует на магнитный дипольный момент, связанный со спином [7].

При изучении спина удобно ввести матричные обозначения. Пусть ортогональные собственные состояния $|\pm\rangle$ представлены матрицами

$$|+\rangle \rightarrow \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |-\rangle \rightarrow \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (2.63)$$

При таком обозначении произвольное спиновое состояние

$$|\psi_s\rangle = a_+ |+\rangle + a_- |-\rangle$$

представляется матрицей-столбцом

$$|\psi_s\rangle = a_+ \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + a_- \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_+ \\ a_- \end{pmatrix}.$$

Чтобы одновременно выполнялись соотношения (2.62) и (2.63), оператор s_z должен иметь вид

$$s_z = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (2.64)$$

Если к постулату о существовании двух спиновых собственных состояний добавить постулат о том, что операторы спина удовлетворяют обычным коммутационным соотношениям для момента количества движения

$$[s_i, s_j] = i\hbar s_k, \quad (2.65)$$

где i, j, k образуют циклическую перестановку x, y, z , то операторы s_x и s_y будут определяться выражениями

$$s_x = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad s_y = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}.$$

Постулат (2.65) подтверждается сравнением предсказанных результатов с экспериментальными данными. Введенные выше операторы спина часто записываются в виде $\mathbf{s} = (\hbar/2)\boldsymbol{\sigma}$, где компоненты $\boldsymbol{\sigma}$ являются спиновыми операторами Паули

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (2.66)$$

Электрон имеет магнитный момент \mathbf{m} , который связан со спином \mathbf{s} соотношением

$$\mathbf{m} = -\frac{e}{m} \mathbf{s} = -\frac{\gamma\hbar}{2} \boldsymbol{\sigma}; \quad (2.67)$$

где $e = |e|$ — величина электрического заряда, а γ — гиромагнитное отношение¹⁾. Используя (2.66) и (2.67), для операторов

¹⁾ Уравнение (2.67) является частным случаем общей теоремы квантовой механики, которая утверждает, что магнитный дипольный момент \mathbf{m} и момент количества движения $\hbar\mathcal{J}$ изолированной системы связаны соотношением

$$\mathbf{m} = -g\beta\mathcal{J} = -\gamma\hbar\mathcal{J},$$

где β — магнетон Бора, $\beta = e\hbar/2m$; γ — гиромагнитное отношение, равное $\gamma = ge/2m$ (g — фактор спектроскопического расщепления, равный 2 для спина электрона).

ров магнитного момента получаем

$$m_x = -\frac{\gamma\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad m_y = -\frac{\gamma\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad m_z = -\frac{\gamma\hbar}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (2.68)$$

До сих пор спиновые собственные состояния рассматривались так, как если бы они существовали независимо от остальной части волновой функции электрона. Строго говоря, такое приближение можно сделать, лишь пренебрегая спин-орбитальным взаимодействием между орбитальным и спиновым магнитными моментами атома. Это приближение в действительности является хорошим для всех не слишком тяжелых элементов, так как обычно лишь малая часть энергии взаимодействия приходится на спин-орбитальное взаимодействие. Когда такое приближение справедливо, можно представить собственный вектор электрона в виде произведения орбитального и спинового собственных векторов [6, 14, 15]. Следовательно, данному орбитальному собственному состоянию электрона $|u_k\rangle$ соответствуют два собственных вектора

$$\begin{aligned} |\varphi_1\rangle &= |u_k\rangle |+\rangle, \\ |\varphi_2\rangle &= |u_k\rangle |-\rangle. \end{aligned} \quad (2.69)$$

Орбитальный и спиновый операторы действуют раздельно соответственно на орбитальную и спиновую части полного собственного вектора $|\varphi\rangle$.

1. Гамильтониан

Чтобы учесть взаимодействие магнитного момента электрона с магнитными полями, к гамильтониану электрона (2.1) нужно добавить член вида $-\mathbf{m} \cdot \mathbf{B}$, где \mathbf{B} — магнитная индукция. Полный гамильтониан можно записать в виде

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}' = (\mathcal{H}_{01} + \mathcal{H}_{02}) + \mathcal{H}'. \quad (2.70)$$

Первый член гамильтониана \mathcal{H}_{01} связан с электрон-электронным и электрон-ядерным взаимодействиями и приводит к орбитальным собственным состояниям $|u_k\rangle$, которые удовлетворяют уравнению для собственных значений

$$\mathcal{H}_{01} |u_k\rangle = E_k |u_k\rangle. \quad (2.71)$$

Член \mathcal{H}_{02} является той частью выражения $-\mathbf{m} \cdot \mathbf{B}$, которая обусловлена статической компонентой магнитного поля \mathbf{B}_0 , лежащей в направлении оси z :

$$\mathcal{H}_{02} = -\mathbf{m} \cdot \mathbf{B}_0 = -m_z B_{0z}. \quad (2.72)$$

Через \mathcal{H}' обозначен член взаимодействия, который учитывает влияние зависящего от времени магнитного поля \mathbf{B}' ,

$$\mathcal{H}' = -\mathbf{m} \cdot \mathbf{B}'. \quad (2.73)$$

Матричные элементы приведенного выше гамильтониана вычисляются на основе базисных векторов (2.69); \mathcal{H}_{01} действует только на орбитальную часть собственного вектора $|u_k\rangle$, тогда как \mathcal{H}_{02} и \mathcal{H}' действуют только на спиновую часть собственного вектора. Как и в случае электрического дипольного взаимодействия, рассмотренного в предыдущем разделе, поле описывается классически в духе квазиклассического приближения. Следовательно, матричные элементы \mathcal{H}_{02} и \mathcal{H}' , определяемые (2.72) и (2.73), являются просто матричными элементами \mathbf{m} , а магнитная индукция служит множителем.

Рассмотрим сначала основной гамильтониан $\mathcal{H}_0 = \mathcal{H}_{01} + \mathcal{H}_{02}$. Типичный матричный элемент определяется следующим образом:

$$(\mathcal{H}_0)_{11} = (\mathcal{H}_{01})_{11} + (\mathcal{H}_{02})_{11} = \langle \varphi_1 | \mathcal{H}_{01} | \varphi_1 \rangle + \langle \varphi_1 | \mathcal{H}_{02} | \varphi_1 \rangle.$$

Учитывая, что $|\varphi_1\rangle$ определяется выражением (2.69), получаем

$$\begin{aligned} (\mathcal{H}_0)_{11} &= \langle u_k | \langle + | \mathcal{H}_{01} | u_k \rangle | + \rangle + \langle u_k | \langle + | \mathcal{H}_{02} | u_k \rangle | + \rangle = \\ &= \langle + | + \rangle \langle u_k | \mathcal{H}_{01} | u_k \rangle + \langle u_k | u_k \rangle \langle + | \mathcal{H}_{02} | + \rangle. \end{aligned} \quad (2.74)$$

Из (2.63) имеем $\langle + | + \rangle = 1$; полагая, что собственные векторы $|u_k\rangle$ ортогональны, из (2.71) видим, что $\langle u_k | \mathcal{H}_{01} | u_k \rangle = E_k \langle u_k | u_k \rangle = E_k$; из (2.67) и (2.72) получим $\langle + | \mathcal{H}_{02} | + \rangle = (\gamma \hbar B_{0z})/2$. Следовательно, (2.74) приводится к виду

$$(\mathcal{H}_0)_{11} = E_k + \frac{\gamma \hbar B_{0z}}{2}.$$

Другие матричные элементы определяются аналогично. В результате гамильтониан $\mathcal{H}_0 = \mathcal{H}_{01} + \mathcal{H}_{02}$ запишется в матричном виде следующим образом:

$$\mathcal{H}_0 = \begin{pmatrix} E_k + \frac{\gamma \hbar B_{0z}}{2} & 0 \\ 0 & E_k - \frac{\gamma \hbar B_{0z}}{2} \end{pmatrix}. \quad (2.75)$$

Из (2.17) видно, что уравнения для собственных значений

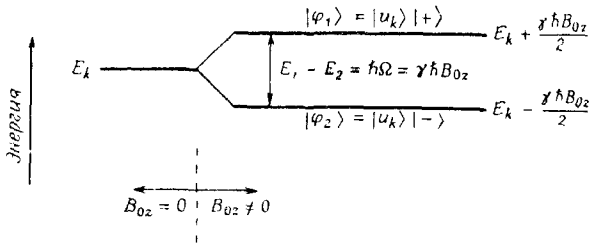
$$\begin{aligned} \mathcal{H}_0 | \varphi_1 \rangle &= E_1 | \varphi_1 \rangle, \\ \mathcal{H}_0 | \varphi_2 \rangle &= E_2 | \varphi_2 \rangle \end{aligned}$$

удовлетворяются, если взять

$$E_1 = E_k + \frac{\gamma \hbar B_{0z}}{2},$$

$$E_2 = E_k - \frac{\gamma \hbar B_{0z}}{2}.$$

Следовательно, в присутствии постоянного магнитного поля собственное состояние электрона $|u_k\rangle$ расщепляется на два энергетических уровня, разность энергий которых равна $\hbar\Omega = \hbar\gamma B_{0z}$, где большая энергия соответствует спиновому собственному состоянию $|+\rangle$ (фиг. 2.4). Заметим, что нумерация уровней, согласно которой уровень 1 соответствует состоянию с более высокой энергией, обратна случаю электрического дипольного перехода, изображенному на фиг. 2.2.



Фиг. 2.4. Диаграмма расщепления энергетического уровня для магнитного дипольного перехода со спином $1/2$.

Методом, аналогичным тому, который использовался для определения матричных элементов \mathcal{H}_0 , найдем, что гамильтониан взаимодействия (2.73) имеет вид

$$\mathcal{H}' = \frac{\gamma \hbar}{2} \begin{pmatrix} B'_z & B'_x - iB'_y \\ B'_x + iB'_y & -B'_z \end{pmatrix}. \quad (2.76)$$

2. Уравнения движения

Теперь можно получить уравнения движения для системы со спином $1/2$. Применяя уравнение (1.48) к оператору дипольного момента m_x , определяемому (2.68), получаем для первой производной среднего значения $\langle m_x \rangle = \text{Sp}(\rho m_x)$

$$\langle \dot{m}_x \rangle + \frac{\langle m_x \rangle}{T_2} = \frac{1}{i\hbar} \langle [m_x, \mathcal{H}] \rangle. \quad (2.77)$$

Вычисление коммутатора $[m_x, \mathcal{H}]$ с помощью (2.75) и (2.76) дает

$$[m_x, \mathcal{H}] = [m_x, \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'] = [m_x, \mathcal{H}_0] + [m_x, \mathcal{H}'] =$$

$$= -i\hbar \Omega m_y + i\hbar \gamma (B'_y m_z - B'_z m_y). \quad (2.78)$$

Следовательно, уравнение (2.77) приводится к виду

$$\langle \dot{m}_x \rangle + \frac{\langle m_x \rangle}{T_2} = \gamma (\mathbf{B}' \times \langle \mathbf{m} \rangle)_x - \Omega \langle m_y \rangle. \quad (2.79)$$

Аналогично найдем, что среднее значение оператора дипольного момента m_y удовлетворяет уравнению

$$\langle \dot{m}_y \rangle + \frac{\langle m_y \rangle}{T_2} = \gamma (\mathbf{B}' \times \langle \mathbf{m} \rangle)_y + \Omega \langle m_x \rangle. \quad (2.80)$$

Чтобы получить уравнение движения для $\langle m_z \rangle = \text{Sp}(\rho m_z)$, применим уравнение (1.49), которое используется для операторов с диагональными матрицами, к оператору дипольного момента m_z :

$$\langle \dot{m}_z \rangle + \frac{\langle m_z \rangle - \langle m_z \rangle^e}{T_1} = \gamma (\mathbf{B}' \times \langle \mathbf{m} \rangle)_z. \quad (2.81)$$

Уравнения (2.79)–(2.81) можно переписать в форме, известной как уравнения Блоха [16]:

$$\begin{aligned} \dot{M}_x + \frac{M_x}{T_2} &= \gamma (\mathbf{B}' \times \mathbf{M})_x - \Omega M_y, \\ \dot{M}_y + \frac{M_y}{T_2} &= \gamma (\mathbf{B}' \times \mathbf{M})_y + \Omega M_x, \\ \dot{M}_z + \frac{M_z - M_z^e}{T_1} &= \gamma (\mathbf{B}' \times \mathbf{M})_z. \end{aligned} \quad (2.82)$$

В приведенных выше уравнениях \mathbf{M} является макроскопической намагниченностью, равной $\mathbf{M} = N_V \langle \overline{\mathbf{m}} \rangle$, где N_V — число электронов в единице объема, дающих вклад в полную намагниченность, а черта сверху указывает на усреднение по ориентациям. Отметим здесь также, что

$$\begin{aligned} M_z &= N_V \overline{\langle m_z \rangle} = N_V \overline{\text{Sp}(\rho m_z)} = -N_V \frac{\gamma \hbar}{2} \overline{\text{Sp} \left[\begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \right]} = \\ &= N_V \frac{\gamma \hbar}{2} \overline{(\rho_{22} - \rho_{11})} = \frac{\gamma \hbar}{2} (N_2 - N_1). \end{aligned}$$

Из этого выражения видно, что компонента намагниченности, параллельная приложенному постоянному магнитному полю, определяется только диагональными элементами матрицы плотности и соответствует разности населенностей двух энергетических уровней. Следовательно, z -компонента намагниченности является мерой энергии, запасенной в спиновой системе. Величина M_z^e является равновесным значением, к которому стремится M_z в отсутствие приложенного поля \mathbf{B}' . Так как частота

Ω связана с постоянным магнитным полем соотношением $\Omega = \gamma B_0$, а полное магнитное поле дается выражением

$$\mathbf{B} = \hat{\mathbf{I}}_z B_0 + \mathbf{B}',$$

то уравнения (2.82) можно упростить:

$$\begin{aligned} \dot{M}_x + \frac{M_x}{T_2} &= \gamma (\mathbf{B} \times \mathbf{M})_x, \\ \dot{M}_y + \frac{M_y}{T_2} &= \gamma (\mathbf{B} \times \mathbf{M})_y, \\ \dot{M}_z + \frac{M_z - M_z^e}{T_1} &= \gamma (\mathbf{B} \times \mathbf{M})_z. \end{aligned} \quad (2.83)$$

Хотя уравнения Блоха могут показаться сложными, они имеют ясную физическую интерпретацию. Без релаксационных членов система (2.83) сводится к уравнению

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma (\mathbf{B} \times \mathbf{M}), \quad (2.84)$$

которое имеет такой же вид, что и классическое уравнение для заряженного вращающегося волчка, помещенного в магнитное поле. Вращение такого волчка приводит к распределению тока, а ток в свою очередь порождает магнитный момент, который взаимодействует с магнитным полем.

Проследим аналогию с вращающимся волчком более подробно. Классический волчок состоит из отрицательно заряженных частиц, имеющих отношение заряда к массе, равное $-e/m$; он обладает магнитным дипольным моментом \mathbf{m} и моментом количества движения \mathbf{L} , как показано на фиг. 2.5. Если ρ_m — плотность массы, а \mathbf{v} — скорость частицы в любой данной точке, то \mathbf{m} и \mathbf{L} определяются выражениями [1]:

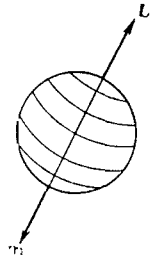
$$\begin{aligned} \mathbf{m} &= \frac{1}{2} \int \mathbf{r} \times \left(-\frac{e}{m} \rho_m \mathbf{v} \right) dV, \\ \mathbf{L} &= \int \mathbf{r} \times (\rho_m \mathbf{v}) dV. \end{aligned}$$

Следовательно, они связаны соотношением

$$\mathbf{m} = -\frac{e}{2m} \mathbf{L}. \quad (2.85)$$

В однородном магнитном поле \mathbf{B} на волчок действует вращательный момент

$$\mathbf{T} = \mathbf{m} \times \mathbf{B}.$$



Фиг. 2.5. Классическая модель заряженного вращающегося волчка.

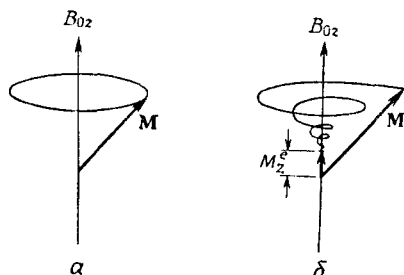
Уравнение движения при наличии такого момента имеет вид

$$\frac{d\mathbf{L}}{dt} = \mathbf{m} \times \mathbf{B}.$$

Используя соотношение (2.85) и определение для γ , его можно переписать следующим образом:

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = \frac{\gamma}{2} (\mathbf{B} \times \mathbf{m}).$$

Следовательно, уравнения Блоха без учета релаксации и уравнение движения заряженного вращающегося волчка формально идентичны и отличаются множителем 2. Этот множитель характеризует различие между классическим и квантовым описаниями заряженного вращающегося тела.



Фиг. 2.6. Прецессия намагниченности \mathbf{M} в статическом магнитном поле B_{0z} .

a — отсутствие потерь; b — при наличии потерь.

В постоянном магнитном поле, имеющем z -направление, намагниченность прецессирует вокруг оси z аналогично вращающемуся волчку. Это ясно из (2.84), так как намагниченность подвергается действию вращательного момента, перпендикулярного магнитному полю, а следовательно, лежащего в плоскости xy . Вращательный момент в плоскости xy вызывает прецессию намагниченности, как показано на фиг. 2.6, a , с частотой $\Omega = \gamma B_{0z}$, где $\hbar\Omega$ — разность энергий между квантованными уровнями системы, имеющей спин.

Если в (2.82) учесть влияние потерь, то описанное выше прецессионное движение затухает, как показано на фиг. 2.6, b . Чтобы показать это, положим в (2.82) $\mathbf{V}' = 0$. Тогда

$$\begin{aligned} \dot{M}_x + \frac{M_x}{T_2} &= -\Omega M_y, \\ \dot{M}_y + \frac{M_y}{T_2} &= \Omega M_x, \\ \dot{M}_z + \frac{M_z - M_z^e}{T_1} &= 0. \end{aligned}$$

Таким образом, T_2 учитывает затухание перпендикулярных к постоянному полю B_{0z} компонент M_x и M_y , а T_1 учитывает

затухание компоненты M_z , которая параллельна B_{0z} . Постоянная T_2 является временем поперечной, или спин-спиновой, релаксации. Она учитывает спин-спиновое взаимодействие, которое вследствие взаимного возмущающего влияния расфазировывает движение отдельных спинов и приводит к тому, что среднее значение поперечных компонент полной намагниченности стремится к нулю. Постоянная T_1 является временем продольной, или спин-решеточной, релаксации. Она учитывает обмен энергией между спиновой системой и окружающей ее средой. Этот обмен приводит к затуханию начальной компоненты M_z , которая пропорциональна энергии $-\mathbf{M} \cdot \mathbf{B} = -M_z B_{0z}$, запасенной спиновой системой в единице объема. Конечное значение M_z^e , к которому стремится M_z , является значением, при котором система находится в равновесии со средой.

Если поле \mathbf{V}' , поляризованное в плоскости xy , имеет частоту, близкую к частоте прецессии Ω , то в соответствии с уравнениями Блоха (2.83) оно вызывает прецессию намагниченности. Это приводит к передаче энергии от поля к спиновой системе. Такое поглощение энергии поля известно как поглощение за счет электронного парамагнитного резонанса. Это явление исследовано более подробно в гл. 3.

3. Уравнения поля для случая магнитной дипольной системы, имеющей спин $1/2$

Уравнения Блоха описывают поведение системы, имеющей спин $1/2$, под действием приложенного магнитного поля. Чтобы система уравнений была полной, добавим уравнения, которые описывают поведение полей при наличии среды.

Уравнения поля в отсутствие свободных зарядов имеют вид

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0, & \nabla \cdot \mathbf{D} &= 0, \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}, & \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \mathbf{B} &= \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}), & \mathbf{D} &= \epsilon \mathbf{E}, \\ & & \mathbf{J} &= \sigma \mathbf{E}, \end{aligned} \quad (2.86)$$

где, как и в случае электрического дипольного взаимодействия, проводимость $\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}$ введена для того, чтобы феноменологически учесть потери. Волновое уравнение для \mathbf{B} получим, взяв ротор от уравнения, содержащего $\nabla \times \mathbf{H}$, и выразив \mathbf{H} через \mathbf{B} . В результате получим

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{B}) + \frac{\eta \mathcal{A}}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} = \mu_0 \nabla \times (\nabla \times \mathbf{M}), \quad (2.87)$$

где $c^2 = 1/\mu_0\epsilon_0$, $\eta = \sqrt{\epsilon/\epsilon_0}$ — показатель преломления среды и $\mathcal{A} = \mu_0 c \sigma / \eta$ — коэффициент затухания, введенный так, что в отсутствие намагниченности \mathbf{M} энергия плоской волны, пропорциональная $|\mathbf{H}|^2$, при распространении вдоль оси z уменьшается как $e^{-\mathcal{A}z}$. Как и в случае электрического дипольного взаимодействия, поля можно выразить либо в виде бегущих волн, либо в виде разложения по нормальным модам резонатора. Однако дальнейшее изучение предмета здесь производиться не будет.

Уравнение поля (2.87) совместно с уравнениями Блоха (2.83) составляют необходимую полную систему уравнений, из которой можно получить самосогласованные решения при взаимодействии электромагнитного поля со спиновой системой. Эти уравнения будут взяты в качестве исходных при анализе электронного парамагнитного резонанса, который дается в гл. 3

ЛИТЕРАТУРА

1. Goldstein H., Classical Mechanics, Reading, Mass., 1950. (См. перевод: Г. Голдстейн, Классическая механика, Гостехиздат, 1957.)
2. Goepfert-Mayer M., Ueber Elementarakte mit zwei Quantensprungen, Ann. Phys., **9**, 273 (1931).
3. Bloembergen N., Nonlinear Optics, New York, 1965. (См. перевод: Н. Бломберген, Нелинейная оптика, изд-во «Мир», 1966.)
4. Born M., Wolf E., Principles of Optics, New York, 1964. (См. перевод: М. Борн, Э. Вольф, Основы оптики, изд-во «Наука», 1970).
5. Fiutak J., The Multipole Expansion in Quantum Theory, Canad. Journ. Phys., **41**, 12 (1963).
6. Raimes S., The Wave Mechanics of Electrons in Metals, Amsterdam, 1961.
7. Messiah A., Quantum Mechanics, Vol. I, Amsterdam, 1961.
8. Bohm D., Quantum Theory, Englewood Cliffs, N. J., 1951. (См. перевод: Д. Бом, Квантовая теория, изд-во «Наука», 1965.)
9. Schiff L. I., Quantum Mechanics, New York, 1955. (См. перевод: Л. Шифф, Квантовая механика, ИЛ, 1959.)
10. Townes C. H., Schawlow A. L., Microwave Spectroscopy, New York, 1955.
11. Herzberg G., Infrared and Raman Spectra, New York, 1945.
12. Kittel C., Introduction to Solid-State Physics, 3rd ed., New York, 1966. (См. перевод: Ч. Киттель, Введение в физику твердого тела, Физматгиз, 1963.)
13. Slater J. C., Microwave Electronics, New York, 1950, Ch. 4.
14. Lengyel B. A., Introduction to Laser Physics, New York, 1966.
15. Dicke R. H., Wittke J. P., Introduction to Quantum Mechanics, Reading, Mass., 1960.
16. Pake G. E., Paramagnetic Resonance, New York, 1962.
- 17*. Файн В. М., Ханин Я. Н., Квантовая радиофизика, изд-во «Советское радио», 1965.

Задачи

2.1. Показать, что если $\mathcal{H}(-\mathbf{r}) = \mathcal{H}(\mathbf{r})$, то всегда можно выбрать вырожденные собственные функции с определенной четностью. Показать также, что в общем случае эти функции не ортогональны.

2.2. Получить уравнения движения для матричных элементов оператора плотности для двухуровневой системы, гамильтониан взаимодействия которой \mathcal{H}' определяется электрическим квадрупольным взаимодействием. Показать, что если состояния имеют противоположную четность, то их населенности не изменяются при взаимодействии.

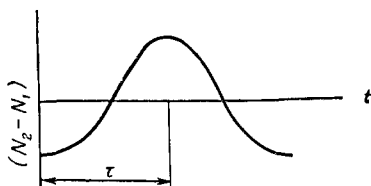
2.3. Показать, как из выражения (2.22) получаются члены вида

$$\int u_m^*(\mathbf{r}) x y u_n(\mathbf{r}) dV.$$

2.4. В (2.48) величина $(\hbar\Omega/2)(\partial/\partial t)(N_2 - N_1)$ является скоростью изменения энергии в квантованной среде. С помощью уравнений Максвелла показать, что величина $\dot{P}_\alpha E_\alpha$ есть скорость обмена энергией между полем и поляризуемой средой.

2.5. Используя (2.43) и (2.48), показать, что если не учитывать релаксацию (т. е. $T_1, T_2 \rightarrow \infty$), то в присутствии приложенного поля E величина $(N_2 - N_1)$ изменяется так, как показано на фиг. 2.7.

Если поле выключено в момент $t = \tau$, то достигается инверсия населенностей. Определить τ . Если можно пренебречь релаксацией, то необходимо, чтобы $\tau \ll T_1, T_2$. Определить минимальное значение $|E|^2$, при котором выполняется это условие.



Фиг. 2.7.

Описанный метод для получения инверсии населенностей известен как 180-градусная импульсная инверсия. В отличие от рассмотренных в гл. 4 методов получения стационарной инверсии здесь мы имеем дело с переходной инверсией.

2.6. В уравнении (2.12) магнитный момент \mathbf{m} определяется выражением

$$\mathbf{m} = -\frac{e}{2m}(\mathbf{r} \times \mathbf{p}).$$

Показать, что для электрона, движущегося по круговой орбите, это определение согласуется с энергией магнитного диполя

$$\mathcal{W}^0 = -\mathbf{m} \cdot \mathbf{B}$$

и вращательным моментом, действующим на диполь,

$$\mathbf{T} = \mathbf{m} \times \mathbf{B}.$$

2.7. В (2.54) была введена постоянная затухания резонатора τ_c . Вычислить значение τ_c для оптического резонатора длиной 1 м, использующего плоские зеркала диаметром 2 см. Можно считать, что световой пучок с длиной волны $\lambda = 6000 \text{ \AA}$ и диаметром 0,5 см является модой TEM_{00n} (плоская волна). Среда, заполняющая резонатор, ослабляет свет на 0,1% на 1 см, а каждое зеркало отражает 95% падающего света. Определить τ_c для резонатора и показать, что дифракционными потерями можно пренебречь.

2.8. Из вида матрицы

$$s_z = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

и соотношения $[s_i, s_j] = i\hbar s_k$ вывести выражения для двух других спиновых матриц.

2.9. При переходе от (2.54) к (2.55) утверждалось, что

$$\mathbf{E}_c(\mathbf{r}) \int \mathbf{P}^s \cdot \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) dV = \mathbf{P}^s,$$

если \mathbf{P}^s имеет ту же пространственную зависимость, что и \mathbf{E}_c , где \mathbf{E}_c — нормальная мода поля. Показать, что написанное выше равенство справедливо при рассматриваемых условиях.

2.10. Мы рассмотрели электрическое дипольное взаимодействие для двух состояний противоположной четности. Показать, что если имеет место взаимодействие при наличии двух состояний смешанной четности, уравнения движения меняются незначительно. Операторы \mathcal{H}' и μ дополнятся диагональными членами. Диагональные члены оператора \mathcal{H}' внесут небольшое изменение в частоту перехода Ω . Получить выражение для этого сдвига частоты. Диагональные члены в μ дают намного меньший вклад в среднее значение $\langle \mu \rangle$, чем недиагональные при $\omega \approx \Omega$. Оценить отношение вклада диагональных членов к вкладу недиагональных членов для матричных элементов, имеющих примерно одинаковую величину, т. е. для

$$|\mu_{ii}| \approx |\mu_{ij}|.$$

2.11. При ядерном магнитном резонансе (ЯМР) имеет место взаимодействие между спиновыми состояниями протона и электромагнитным излучением. Если на вещество действует постоянное магнитное поле 1 вб/м^2 в z -направлении, то какова частота резонансного поглощения, возникающего за счет расщепления спиновых состояний протонов? (Предостережение: оператор спина для протона отличается от оператора спина для электрона.)

2.12. Построить временную зависимость намагниченности \mathbf{M} для следующих случаев (ω_0 — частота прецессии):

$$1) \omega_0 \gg \frac{1}{T_2} \gg \frac{1}{T_1},$$

$$2) \omega_0 \gg \frac{1}{T_2} \approx \frac{1}{T_1},$$

$$3) \omega_0 \approx \frac{1}{T_2} \approx \frac{1}{T_1},$$

$$4) \omega_0 < \frac{1}{T_2}.$$

2.13. Пусть при наличии постоянного поля B_{0z} в течение времени Δt действует высокочастотное поле, имеющее круговую поляризацию и приложенное в плоскости xy , с частотой прецессии ($\omega = \gamma B_{0z}$). Если вектор \mathbf{M} первоначально направлен по оси z , то определить амплитуду высокочастотного поля и время Δt , необходимые для того, чтобы в конце импульса вектор \mathbf{M} лежал в плоскости xy . (Взять $T_1 = 10^{-3}$ сек, $T_2 = 10^{-5}$ сек.) Начертить изменение \mathbf{M} после выключения импульса. Можно ли ожидать, что после выключения импульса будет излучаться сигнал, и если да, то как он будет изменяться во времени? (Этот эффект известен как $\pi/2$ -импульс.)

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

Взаимодействие электромагнитного поля с веществом является резонансным, если частота поля близка к частоте перехода для этого вещества. С резонансным взаимодействием связан ряд важных явлений. (Принятый в спектроскопии термин «резонансные линии» носит ограниченный характер, так как учитывает только те переходы, которые относятся к основному состоянию. Мы будем пользоваться термином «резонансные процессы», имея в виду, что учитываются переходы между любой парой энергетических уровней.) Например, при прохождении через среду излучение может поглощаться, что вызовет затухание падающей волны. Это явление известно как резонансное поглощение. Может случиться, что падающая волна, проходя через среду, усиливается, а не затухает вследствие процессов, называемых отрицательным поглощением, или вынужденным излучением. Это происходит в тех случаях, когда имеется инверсная населенность уровней, т. е. когда среда возбуждена с помощью некоторого внешнего источника энергии так, что на верхних энергетических уровнях находится больше атомов, чем на нижних. На этом явлении основано действие лазера и мазера. Другое важное явление, связанное с резонансным поглощением, — это насыщение перехода под действием сильного сигнала. В результате интенсивность излучения, проходящего через среду, остается неизменной. Этот эффект часто называется *просветлением* перехода и используется на практике для получения больших выходных пиковых мощностей лазеров.

Все эти явления могут быть изучены с помощью уравнений, полученных в предыдущей главе для электрического и магнитного дипольных переходов. Цель настоящей главы — показать, как можно применять эти уравнения для описания упомянутых выше проблем.

Будут рассмотрены только резонансные процессы, или процессы первого порядка, т. е. те случаи, когда частоты электромагнитного поля близки к частотам переходов. Если поле так же, как и среда, квантуется, то процессам первого порядка соответствует поглощение или излучение одного фотона. По-

этому такие процессы называются однофотонными. Процессы высших порядков, эффект от которых, как правило, значительно слабее, чем от резонансного, будут рассмотрены в гл. 5.

§ 2. ЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ДИПОЛЬНЫЙ ПЕРЕХОД В СТАЦИОНАРНОМ СОСТОЯНИИ; ПОГЛОЩЕНИЕ, ДИСПЕРСИЯ И НАСЫЩЕНИЕ

Макроскопические явления, такие, как поглощение и дисперсия света, или когерентное излучение в лазерах, обычно обусловлены электрическими дипольными переходами между различными энергетическими уровнями в атомах и молекулах. Изучение этих явлений мы начнем с анализа уравнений (2.60), полученных в гл. 2 для изотропной среды:

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} = \frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \mathbf{E}, \quad (3.1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)e}{T_1} = - \frac{2}{\hbar\Omega} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E} \quad (3.2)$$

и

$$\begin{aligned} \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{\eta\mathcal{A}}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \\ = - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \text{ (случай бегущей волны), } \end{aligned} \quad (3.3a)$$

$$\begin{aligned} \ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c} \dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2 \mathbf{E} = \\ = - \frac{1}{\epsilon} \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) \int \ddot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) dV \text{ (поле в резонаторе)} \end{aligned} \quad (3.3б)$$

Индекс s , который имеется в исходных уравнениях, здесь опущен. Однако будем помнить, что в этих уравнениях через \mathbf{P} обозначена величина, отличающаяся от обычной поляризации \mathbf{P} в $(\eta^2 + 2)/3$ раз [см. (2.58)].

Как упоминалось в гл. 2, § 4, п. 7, уравнение (3.1) с учетом (3.3) можно применить также к анизотропной среде, когда векторы поляризации и поля направлены вдоль главной оси системы и справедлива подстановка (2.61). Поэтому результаты, полученные на основе уравнений (3.1)–(3.3), можно использовать в анизотропных средах для направлений вдоль главной оси. Для произвольных направлений в анизотропной среде необходимо обратиться к уравнениям (2.41) и (2.48) и провести все вычисления в общем случае так же, как это было сделано для изотропной среды.

Рассматривая эти уравнения, мы в дальнейшем увидим, что поляризационное уравнение описывает главным образом явления поглощения и дисперсии в среде, в то время как уравнение для разности населенностей объясняет эффекты насыщения.

Такие явления существенно стационарны и поэтому могут изучаться на основе относительно простого стационарного подхода.

1. Восприимчивость

В оптическом и СВЧ диапазонах частот обычно интересуются поляризацией на частоте ω , индуцированной полем той же частоты, не сильно отличающейся от частоты перехода Ω . Тогда для плоской волны, распространяющейся в направлении z , решение уравнения (3.1) ищется в виде

$$\mathbf{P} = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{P}} e^{i(\omega t - kz)} + \text{компл. сопр.} \quad (3.4)$$

Аналогично для \mathbf{E} ; здесь тильда (\sim) обозначает комплексную величину, а компл. сопр. — комплексно-сопряженную величину. Используя условие близости к резонансу $\omega \approx \Omega$, получаем решение уравнения (3.1):

$$\tilde{\mathbf{P}} = \frac{1}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \frac{1}{(\Omega - \omega) + i(1/T_2)} \tilde{\mathbf{E}}.$$

Кроме того, предполагаем, что разность населенностей ($N_1 - N_2$) не зависит от времени. Из уравнения (3.2) видно, что в стационарном состоянии ($N_1 - N_2$) имеет высокочастотные компоненты, но они, как правило, малы по сравнению с постоянным членом, так как $\omega T_1 \gg 1$.

Удобно выразить приведенное выше соотношение через линейную восприимчивость $\chi(\omega)$, определяемую соотношением

$$\tilde{\mathbf{P}} = \epsilon_0 \chi(\omega) \tilde{\mathbf{E}}, \quad (3.5)$$

где ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость свободного пространства. Получаем

$$\chi(\omega) = \frac{\pi}{\hbar \epsilon_0} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \tilde{g}_L(\omega, \Omega); \quad (3.6)$$

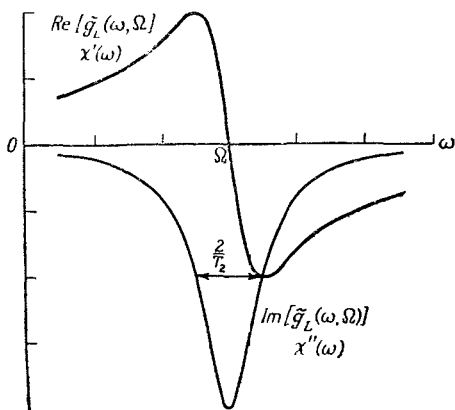
здесь $\tilde{g}_L(\omega, \Omega)$ — зависящая от частоты характеристика формы линии, известная как комплексная функция Лоренца. Графики этой функции приведены на фиг. 3.1

$$\begin{aligned} \tilde{g}_L(\omega, \Omega) &= \frac{1}{\pi} \frac{1}{(\Omega - \omega) + i(1/T_2)} = \\ &= \frac{1}{\pi} \frac{(\Omega - \omega)}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2} - i \frac{1}{\pi} \frac{1/T_2}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2}. \end{aligned} \quad (3.7)$$

Линейная восприимчивость — частотно-зависящее свойство среды, устанавливающее связь между поляризацией и электри-

ческим полем. Восприимчивость называется *линейной*, когда поляризация линейно зависит от вызывающего ее поля.

Для рассматриваемой изотропной среды величина $\chi(\omega)$ есть скаляр, связывающий подобные компоненты поляризации и



Фиг. 3.1. Графическое изображение вещественной и мнимой частей комплексной лоренцевой функции формы линии.

поля (3.6). Для анизотропной среды $\chi(\omega)$ — тензор, устанавливающий связь между заданной компонентой поляризации и всеми компонентами поля, от которых она зависит. Этот более общий случай рассматривается в § 3, п. 3.

2. Поглощение и дисперсия

Как видно из (3.6) и (3.7), выражение для восприимчивости $\chi(\omega)$ имеет как вещественную, так и мнимую части и поэтому может быть записано в виде

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega), \quad (3.8)$$

где

$$\chi'(\omega) = \frac{\pi}{\hbar\epsilon_0} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \left[\frac{1}{\pi} \frac{(\Omega - \omega)}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2} \right] \quad (3.9)$$

и

$$\chi''(\omega) = -\frac{\pi}{\hbar\epsilon_0} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \left[\frac{1}{\pi} \frac{1/T_2}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2} \right]. \quad (3.10)$$

Частотная зависимость вещественной и мнимой частей выражения для восприимчивости, повторяющая зависимость вещественной и мнимой частей лоренцевой функции от частоты, изображена на фиг. 3.1. Покажем теперь, что величины $\chi'(\omega)$ и $\chi''(\omega)$ описывают соответственно дисперсию и поглощение в среде.

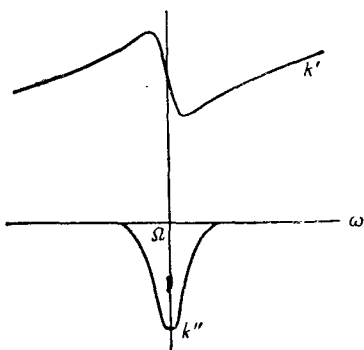
Распространение электромагнитной волны в среде описывается волновым уравнением (3.3а). Для плоской волны (3.4) после подстановки (3.6) в (3.3а) постоянная распространения k имеет вид

$$k^2 = \frac{\eta^2 \omega^2}{c^2} \left[1 + \frac{\chi(\omega)}{\eta^2} \right]. \quad (3.11а)$$

При этом предполагаем, что ролью всех переходов, кроме рассматриваемого, можно пренебречь. Извлекая квадратный корень и используя для случая $\chi(\omega)/\eta^2 \ll 1$ (случай не очень сильного перехода) разложение $\sqrt{1 + \chi/\eta^2} = 1 + \chi/2\eta^2$, получаем

$$k = k' + ik'' \approx \frac{\eta\omega}{c} \left[1 + \frac{\chi'(\omega)}{2\eta^2} \right] + i \frac{\omega\chi''(\omega)}{2\eta c}. \quad (3.11б)$$

На фиг. 3.2 представлены графики вещественной и мнимой частей функции k , построенные на основе уравнений (3.9) -- (3.11). Вещественная часть k зависит от $\chi'(\omega)$ и описывает дисперсионные свойства среды, так как фазовая скорость волны равна $v_p = \omega/k'$.



Фиг. 3.2. Характер изменения комплексного волнового числа $k = k' + ik''$ в окрестности электрического дипольного перехода с частотой Ω .

Таким образом, фазовая скорость равна приблизительно c/η с добавкой, быстро изменяющейся с частотой в окрестности перехода. Это область аномальной дисперсии, так как при приближении к частоте перехода со стороны более низких частот медленное увеличение k' с частотой сменяется быстрым спадом.

Мнимая часть k зависит от $\chi''(\omega)$ и описывает поглощение в среде. В частности, поскольку поле распространяется как e^{-ikz} , то усредненная по времени мощность на единицу площади $I = \eta\epsilon_0 c |\tilde{E}e^{-ikz}|^2/2$, переносимая волной, спадает в пространстве по закону

$$I = I_0 e^{-\Gamma z}, \quad (3.12)$$

где коэффициент поглощения Γ определяется как $\Gamma = -2k''$. Из выражений (3.10) и (3.11) для $\omega \approx \Omega$ находим выражение для коэффициента поглощения

$$\Gamma = \frac{\Omega\pi}{\hbar\epsilon_0 c \eta} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) g_L(\omega, \Omega), \quad (3.13)$$

Здесь $g_L(\omega, \Omega)$ — лоренцева функция формы линии (фиг. 3.5):

$$g_L(\omega, \Omega) = \frac{1}{\pi} \frac{1/T_2}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2}. \quad (3.14)$$

Выражение (3.14) будет подробно обсуждаться в § 2, п. 4. Сравнивая (3.14) с выражением (3.7), видим, что $g_L(\omega, \Omega)$ представляет собой взятую с обратным знаком мнимую часть комплексной лоренцевой функции $\tilde{g}_L(\omega, \Omega)$.

Характеристическая ширина лоренцевой линии $\Delta\omega_L$ определяется следующим образом:

$$\Delta\omega_L = \frac{2}{T_2}.$$

Здесь $\Delta\omega_L$ — полоса частот, заключенная между точками, расположенными по обе стороны от вершины кривой, в которых величина $g_L(\omega, \Omega)$ равна половине максимального значения. Величина $\Delta\omega_L$ называется полной шириной линии на уровне полувывсоты.

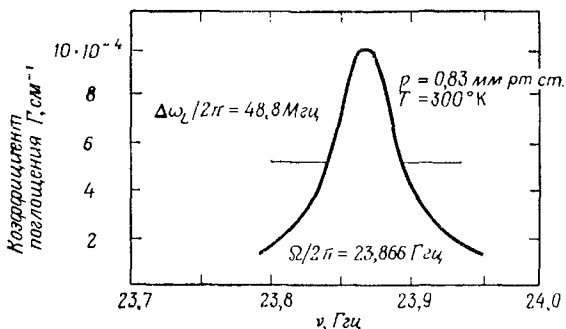
Заметим, что коэффициент поглощения Γ пропорционален разности населенностей в единице объема ($N_1 - N_2$). Коэффициент Γ имеет максимальное значение, если все атомы находятся в нижнем состоянии, т. е. когда $N_2 = 0$. При этом условии имеет место только процесс поглощения энергии электромагнитного поля атомами, находящимися в нижнем состоянии, и переход их в верхнее состояние. Если значение N_2 не равно нулю, то коэффициент поглощения Γ уменьшается. Из выражения (3.13) очевидно, что член, содержащий N_2 , характеризует отрицательное поглощение, или излучение, противодействующее процессу поглощения атомами, находящимися в нижнем состоянии. Процесс противодействия, пропорциональный N_2 , есть процесс вынужденного излучения, характеризующий передачу энергии из среды к полю с помощью атомов, вначале находящихся в верхнем состоянии. Если только N_2 может быть больше N_1 , коэффициент поглощения Γ становится отрицательным, и интенсивность электромагнитной волны нарастает в процессе ее распространения через среду. Последнее условие устанавливает принцип, на котором основано действие лазера и мазера.

Как видно из выражения (3.12), измерение уменьшения мощности на единицу площади при прохождении волны через слабо поглощающий образец

$$dI = -\Gamma I dz$$

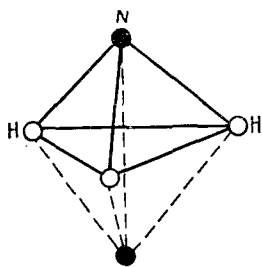
дает прямой метод определения коэффициента поглощения Γ . На фиг. 3.3 приведены результаты таких измерений для «инверсионного» перехода, соответствующего СВЧ диапазону спектра молекулы аммиака NH_3 [1, 2]. Переход называется

инверсионным потому, что частота его соответствует частоте симметричных колебаний атома азота относительно плоскости, содержащей три атома водорода, как показано на фиг. 3.4.



Фиг. 3.3. Линия поглощения молекулы NH_3 для инверсионного перехода.

Дипольный матричный элемент $|\mu_{12}|$ можно вычислить с помощью выражения (3.13), используя экспериментальные данные. В качестве примера приведем расчет для перехода в ам-



Фиг. 3.4. Инверсионные колебания молекулы NH_3 . При симметричных колебаниях единственный атом азота проходит через плоскость, проведенную через три атома водорода. Эта модель подобна одномерному гармоническому осциллятору.

миаке. Число молекул в единице объема N_V при давлении $p = 0,83$ мм рт. ст. и температуре $T = 298$ К определяется из закона идеального газа ¹⁾:

$$N_V = \frac{p}{\kappa T} = \frac{0,83 \cdot 1,013 \cdot 10^5}{760 \cdot 1,38 \cdot 10^{-23} \cdot 298} = 2,69 \cdot 10^{22} \text{ молекул/м}^3.$$

Здесь κ — постоянная Больцмана, $\kappa = 1,38 \cdot 10^{-23}$ дж/град. Согласно оценке для бoльцмановского распределения, приблизительно 6,4% молекул находятся в нижнем состоянии [3], т. е.

¹⁾

$$p \text{ (н/м}^2\text{)} = \frac{p \text{ (мм рт. ст.)}}{760 \text{ (мм рт. ст./атм)}} \cdot 1,013 \cdot 10^5 \left(\frac{\text{н/м}^2}{\text{атм}} \right).$$

$N_1 = 1,71 \cdot 10^{21}$ молекул/м³. Относительная разность населенностей вычисляется следующим образом:

$$\frac{N_2 - N_1}{N_1} = \left(1 - \frac{N_2}{N_1}\right) = (1 - e^{-h\Omega/kT}) \approx \frac{h\Omega}{kT} = 3,83 \cdot 10^{-3}.$$

Для разреженного газа $\eta \approx 1$, и, подставляя в (3.13) $\Omega/2\pi = 23,86$ Гц, $\Gamma = 10^{-3}$ см⁻¹, $\Delta\omega_L = 2/T_2 = 2\pi \cdot 48,8 \cdot 10^6$ рад/сек, получаем

$$|\mu_{12}| = 1,14 \text{ дебай}.$$

Дебай является удобной единицей измерения дипольных моментов:

$$1 \text{ дебай} = 3,33 \cdot 10^{-30} \text{ к} \cdot \text{м} = 10^{-18} \text{ ед. СГСЕ}.$$

При сравнении вычисленного значения для $|\mu_{12}|$ со значением, приводимым в справочниках, необходимо иметь в виду, что в последних приводится величина эффективного «постоянного» дипольного момента μ , относящегося к пирамидальной конфигурации молекул NH₃, который мог бы существовать, если конфигурацию, изображенную на фиг. 3.4, представить статической [2]. Для молекулы типа симметричного волчка, какой является молекула аммиака, эти две величины связаны соотношением

$$|\mu_{12}|^2 = \mu^2 \frac{K^2}{\mathcal{J}(\mathcal{J}+1)}.$$

Здесь \mathcal{J} и K — момент количества движения и магнитное квантовое число волчка, когда он подвергается инверсионным колебаниям.

В рассматриваемом случае $\mathcal{J} = K = 3$, и если из справочника взять значение $\mu = 1,46$ дебай, полученное методом точных измерений эффекта Штарка, то величина $|\mu_{12}|$ будет равна 1,26 дебай, что вполне согласуется с приведенной выше величиной, которая была получена на основе экспериментальных данных по поглощению.

Иногда используется другой способ для определения поглощающих свойств перехода. Он основан на введении эффективного сечения поглощения на один атом σ_c . Эффективное сечение σ_c определяется следующим образом: рассматривается случай, когда все атомы находятся в нижнем энергетическом состоянии, т. е. $N_1 = N_V$, $N_2 = 0$, так что отсутствует излучение и имеет место только поглощение. Эффективное сечение σ_c при этих условиях определяется как отношение мощности, поглощенной одним атомом, к мощности падающего излучения на единицу площади:

$$\sigma_c = \frac{\mathcal{P}/N_V}{I}. \quad (3.15)$$

Здесь \mathcal{P} — мощность, поглощенная в единице объема; N_V — число атомов в единице объема и I — мощность падающего излучения на единицу площади. Можно показать, что это определение соответствует концепции о том, что каждый атом имеет эффективную площадь σ_c , если речь идет о его способности поглощать энергию из падающей волны (см. задачу 3.1). Можно рассматривать σ_c как эффективную площадь поперечного сечения поглощающего атома.

Если использовать коэффициент поглощения Γ , то для ансамбля атомов или молекул величина \mathcal{P} определяется следующим образом:

$$\mathcal{P} = - \frac{dI}{dz} = \Gamma I.$$

При условии, что все N_V атомов единичного объема находятся на нижнем уровне, из двух приведенных выше соотношений получим выражение для σ_c :

$$\sigma_c = \frac{\Gamma}{N_V} = \frac{\Omega\pi}{\hbar\epsilon_0 c \eta} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} g_L(\omega, \Omega). \quad (3.16)$$

Для рассмотренного аммиачного перехода с частотой $23,9 \text{ ГГц}$ эффективное сечение при резонансе равно $\sigma_c(\Omega) = 1,68 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$. Введение эффективного сечения на один атом удобно, так как его величина служит мерой силы перехода, а значит не зависит от населенностей уровней N_1 и N_2 , которые изменяются с температурой и плотностью вещества.

3. Сила осциллятора и правила сумм

Сила перехода часто определяется другой мерой — *силой осциллятора*. Если применить методнку получения выражения (3.16) для эффективного сечения к соответствующему классическому случаю совокупности гармонических осцилляторов, каждый из которых обладает электрическим дипольным моментом $\mathbf{p} = -e\mathbf{r}$ и отношением заряда к массе — e/m , то получим значение эффективного сечения рассеяния (см. задачу 3.2)

$$\sigma_c = \frac{\pi e^2}{2m\epsilon_0 c \eta} L g_L(\omega, \Omega). \quad (3.17)$$

Сравнение выражений (3.16) и (3.17) позволяет определить *силу осциллятора* как отношение квантовомеханического эффективного сечения к классическому:

$$f_{ji} = \frac{2\Omega_{ji}}{\hbar} \frac{|\mu_{ji}|^2}{3} \left| \frac{e^2}{m} \right|. \quad (3.18)$$

Здесь индексы i и j обозначают состояния; f_{ij} — сила, соответствующая переходу $i \rightarrow j$. Поскольку частота $\Omega_{ji} \equiv (E_j - E_i)/\hbar$

может быть как положительной, так и отрицательной величиной, то сила осциллятора также может принимать положительные и отрицательные значения. Некоторые типичные значения сил осцилляторов приведены в табл. 3 [1].

Таблица 3

Сила осциллятора для некоторых переходов атома водорода

Длина волны, Å	Переход	$ f_{ij} $
1 216	$1s - 2p$	0,416
6 563	$2p - 3d$	0,694
18 751	$3d - 4f$	1,016
40 532	$4f - 5g$	1,345

Если экспериментальные данные отсутствуют, то величина матричного элемента может быть оценена с помощью удобного правила сумм, содержащего силы осциллятора. Например, предположим, что требуется получить информацию о дипольных матричных элементах, соответствующих электронным переходам между данным уровнем i и несколькими уровнями j . Непосредственные вычисления, использующие правила коммутации для переходов, в которых участвует один электрон, приводят к выражению ($\mu\mu = \mu \cdot \mu$):

$$[[\mu, \mathcal{H}_0], \mu] = \frac{3e^2 \hbar^2}{m}, \quad (3.19)$$

где $\mu = -e\mathbf{r}$ и $\mathcal{H}_0 = p^2/2m + \mathcal{V}$.

Расписывая коммутаторы, получаем

$$[[\mu, \mathcal{H}_0], \mu] = 2\mu \cdot \mathcal{H}_0\mu - \mathcal{H}_0\mu \cdot \mu - \mu \cdot \mu \mathcal{H}_0.$$

Повторным включением в это выражение тождественного оператора $I = \sum_i |u_i\rangle \langle u_i|$ находим

$$\langle u_i | [[\mu, \mathcal{H}_0], \mu] | u_i \rangle = 2\hbar \sum_j \Omega_{ji} |\mu_{ji}|^2, \quad (3.20)$$

где $|u_i\rangle$, $|u_j\rangle$ — собственные векторы \mathcal{H}_0 . Комбинируя (3.18) и (3.19), имеем

$$\sum_j f_{ji} = 1. \quad (3.21)$$

Если в некотором переходе участвует более одного электрона, то сумма сил осцилляторов, относящихся к данному уровню i , равна числу участвующих электронов. Это известно как правило сумм Кюна — Томаса [4].

Для переходов, в которых участвует только один электрон, сумма сил осцилляторов, соответствующих данному уровню, равна единице. В этом случае сила отдельного осциллятора может иметь величину, большую единицы, так как, вообще говоря, в сумму входят как положительные, так и отрицательные значения. Чтобы показать, как применять правило сумм (3.21) для оценки матричного элемента, рассмотрим в качестве примера систему с одним электроном, причем состояние i — основное состояние 0. В этом случае все члены суммы (3.21) положительны, максимально возможная сила отдельного осциллятора равна единице. Величина соответствующего матричного элемента должна удовлетворять неравенству

$$|\mu_{j0}|^2 \leq \frac{3e^2\hbar}{2m\Omega_j^0}.$$

Дополнительное правило сумм, которое иногда используется для оценки величины матричного элемента, можно получить непосредственно, устранив тождественный оператор $I = \sum_j |u_j\rangle\langle u_j|$; тогда имеем

$$\sum_j |\mu_{ji}|^2 = \sum_j \langle u_j | \mu | u_i \rangle \langle u_i | \mu | u_j \rangle = \sum_j \langle u_i | \mu | u_j \rangle \langle u_j | \mu | u_i \rangle = \langle u_i | \mu^2 | u_i \rangle.$$

Так как все члены суммы положительны, то величина соответствующего матричного элемента должна удовлетворять неравенству

$$|\mu_{ji}|^2 \leq (\mu^2)_{ii}.$$

Прежде чем закончить рассмотрение вопроса о силах осцилляторов, хотелось бы указать, что близкое формальное сходство между классическим и квантовомеханическим эффективными сечениями отражает более общий принцип соответствия для случая электрического диполя. Этот принцип устанавливает, что классическое и квантовомеханическое выражения для поглощения и дисперсии формально идентичны при условии, что для изотропного случая установлено соответствие

$$\frac{e^2}{m} \leftrightarrow \frac{2\Omega}{\hbar} \frac{|\mu_{12}|^2}{3}, \quad N_V \leftrightarrow N_1 - N_2,$$

которое эквивалентно условию, что сила осциллятора равна единице.

Подобные соответствия, которые относительно легко выводятся, часто используются для проверки расчетов в квантовой механике.

1. Лоренцева форма линии. Однородное уширение

Частотная зависимость линии поглощения, определяемая формулами (3.13) и (3.14), соответствует так называемой лоренцевой форме линии. Такой вид кривой часто встречается при изучении частотных характеристик физических систем, например при изучении явления резонанса в высокочастотных электрических контурах. Г. Лоренц первоначально получил эту форму линии в несколько ином виде, как статистическое распределение частот излучения соударяющихся молекул в газе, когда частота соударений между молекулами мала по сравнению с частотой излучения невозмущенной системы.

Выражение, описывающее форму линии, имеет вид (3.14)

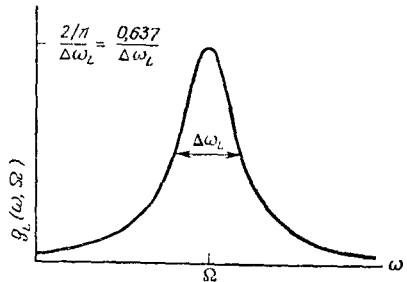
$$g_L(\omega, \Omega) = \frac{1}{\pi} \frac{1/T_2}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2}. \quad (3.14)$$

Форма линии представлена на фиг. 3.5, где площадь под кривой нормирована к единице, так что

$$\int_{-\infty}^{\infty} g_L(\omega, \Omega) d\omega = 1.$$

Как упоминалось выше, характеристическая ширина лоренцевой линии $\Delta\omega_L$ — разность частот между точками, расположенными по обе стороны от вершины, в которых $g_L(\omega, \Omega)$ равна половине максимального значения. Ширина линии определяется как $\Delta\omega_L = 2/T_2$. Уравнение (3.14) можно записать в виде

$$g_L(\omega, \Omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\Lambda\omega_L/2}{(\Omega - \omega)^2 + (\Delta\omega_L/2)^2}. \quad (3.22)$$



Фиг. 3.5. Лоренцева форма линии.

Термин «однородное» применяется к лоренцеву уширению по следующим причинам. Вывод поляризационного уравнения (3.1), из которого определяется лоренцева функция (3.14), основан на уравнении для дипольного момента отдельного атома (2.35). В уравнении (2.35) характерными параметрами являются частота перехода Ω и время релаксации T_2 . Поляризационное уравнение было получено путем умножения на N_V — число атомов в единице объема — и последующего пространственного усреднения. В результате частотные характеристики полной поляризации совпадают с частотными характеристиками поляризации отдельных атомов.

Следовательно, характеристики полной макроскопической поляризации будут определяться просто суммой однородного ряда вкладов от отдельных атомов, каждый из которых имеет одну и ту же частоту перехода Ω и ширину линии $\Delta\omega_L = 2/T_2$. Поэтому, резюмируя, можно сказать, что частотные характеристики линии поглощения, представленные ранее, соответствуют случаю однородно уширенной лоренцевой линии; однородно уширенная линия возникает всякий раз, когда уширение обусловлено релаксационными процессами, действующими одинаково на все атомы, имеющие одинаковую частоту перехода. Релаксационными процессами могут быть взаимодействие с колебаниями решетки, столкновения, взаимодействие между атомами (например, спин-спиновое взаимодействие).

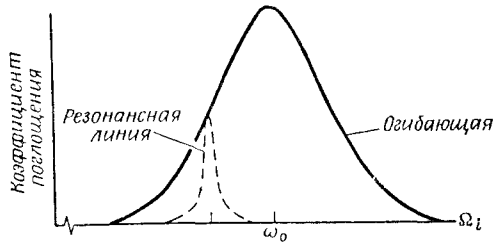
При определенных условиях наблюдается другой вид уширения линии, известный как *неоднородное* уширение. Чтобы закончить обсуждение вопроса об уширении линии, рассмотрим случай неоднородного уширения.

5. Гауссова форма линии. Неоднородное уширение

Если ширина линии совокупности атомов или молекул возрастает вследствие того, что каждый атом или молекула имеют разные частоты переходов Ω_i , то говорят, что имеется неоднородное уширение линий. В качестве важного примера можно привести доплеровское уширение линии в газе. В этом случае различные молекулы имеют разные частоты переходов из-за доплеровского сдвига частоты при движении молекул. Другие источники неоднородного уширения линий включают иные механизмы, приводящие к смещению основной частоты перехода вследствие причин, меняющихся от атома к атому, как, например, вследствие несовершенства кристаллов или неоднородностей магнитного поля, определяющего частоту перехода в спиновых системах. Если такие изменения частот переходов имеют часто встречающееся гауссово статистическое распределение, то линия при неоднородном уширении будет иметь гауссову форму.

В случае неоднородного уширения линии отдельные атомы обычно имеют однородно уширенные линии, значительно более узкие, чем полные линии всей совокупности атомов как целого. Такие узкие однородно уширенные линии, каждая из которых соответствует линии поглощения атомов, имеющих одинаковую резонансную частоту переходов Ω_i , будем называть спиновыми пакетами, как это принято в теории парамагнетизма (гл. 2, § 5, и гл. 3, § 5). Полная форма неоднородно уширенной линии определяется тогда ансамблем спиновых пакетов, причем область частот переходов Ω_i определяет полную ширину линии, как показано на фиг. 3.6.

Если к такой совокупности атомов приложено поле, то поляризация определяется суммой независимых вкладов отдельных спиновых пакетов. Выражение для восприимчивости в этом случае получается интегрированием ряда перекрывающихся распределений от каждого спинового пакета [5]. Ниже приводится пример такого расчета, применимый к случаю доплеровского уширения в газе. Однако результаты вычислений можно использовать при любом неоднородном уширении линии, имеющей гауссову форму.



Фиг. 3.6. Диаграмма, иллюстрирующая различие между резонансной линией отдельного атома или спинового пакета и огибающей, характерной для неоднородного уширения линии.

В случае доплеровского уширения в газе молекулы в каждом спиновом пакете имеют различные частоты переходов Ω_i вследствие движения молекул газа. Например, если данная молекула движется с компонентой скорости v_i , направленной которой противоположно направлению распространения электромагнитной волны, то частота взаимодействия (нерелятивистская) будет равна

$$\Omega_i = \omega_0 \left(1 + \frac{v_i}{c} \right).$$

Здесь ω_0 — частота перехода неподвижной молекулы. Эффект смещения частоты, эффект Доплера, дает начало линии, состоящей из совокупности однородно уширенных лоренцевых линий, максимумы которых соответствуют различным частотам переходов Ω_i .

Число молекул в единице объема $d\mathcal{M}$ в полосе частот переходов $d\Omega_i$ определяется из максвелловского распределения по скоростям при тепловом равновесии в газе [6]:

$$d\mathcal{M} = N_V g_G(\Omega_i, \omega_0) d\Omega_i. \quad (3.23)$$

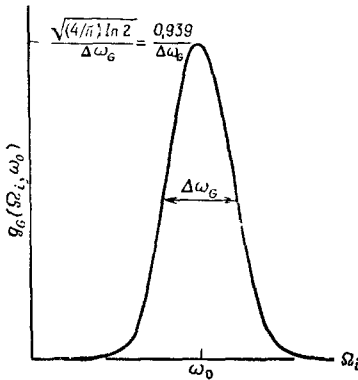
Здесь N_V — полное число молекул в единице объема, $g_G(\Omega_i, \omega_0)$ — гауссова функция формы линии, представленная на фиг. 3.7:

$$\begin{aligned} g_G(\Omega_i, \omega_0) &= \frac{\sqrt{[(4/\pi) \ln 2]}}{\Delta\omega_G} \exp \left[-4 \ln 2 \frac{(\Omega_i - \omega_0)^2}{(\Delta\omega_G)^2} \right] = \\ &= \frac{0,939}{\Delta\omega_G} \exp \left[-4 \ln 2 \frac{(\Omega_i - \omega_0)^2}{(\Delta\omega_G)^2} \right]. \end{aligned} \quad (3.24)$$

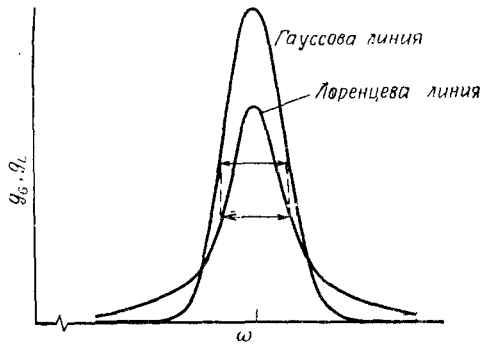
Величина $\Delta\omega_G$ определяет характеристическую ширину гауссовой линии в радианах в секунду и равна разности частот, соответствующих точкам по обе стороны центрального максимума, в которых величина $g_G(\Omega_i, \omega_0)$ равна половине максимального значения. Гауссова функция формы линии нормирована таким образом, чтобы площадь под кривой была равна единице:

$$\int_{-\infty}^{\infty} g_G(\Omega_i, \omega_0) d\Omega_i = 1.$$

Из сравнения гауссовой и лоренцевой линий одинаковой ширины (фиг. 3.8) видно, что гауссова линия имеет более высокий максимум и менее выраженные крылья.



Фиг. 3.7. Гауссова форма линии.



Фиг. 3.8. Сравнение гауссовой и лоренцевой линий одинаковой ширины.

Продолжим теперь определение восприимчивости при неоднородном доплеровском уширении линии. Когда поле \vec{E} приложено к газу (изотропный случай), то любой данный однородно уширенный спиновый пакет дает вклад в приращение поляризации $d\tilde{P}$ на частоте ω , который, согласно выражениям (3.5) — (3.7), полученным для случая однородного уширения линии, равен

$$d\tilde{P} = \epsilon_0 \tilde{E} d\chi(\omega, \Omega_i). \quad (3.25)$$

Соответствующее выражение для $d\chi(\omega, \Omega_i)$ можно получить из (3.6), замечая, что вместо N_V молекул в единице объема, дающих вклад при однородном уширении, имеется вклад от $d\mathcal{M} = N_V g_G(\Omega_i, \omega_0) d\Omega_i$ молекул в единице объема в пределах интервала частот $d\Omega_i$. Поэтому вместо (3.6) имеем

$$d\chi(\omega, \Omega_i) = \frac{\pi}{\hbar \epsilon_0} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \tilde{g}_L(\omega, \Omega_i) g_G(\Omega_i, \omega_0) d\Omega_i, \quad (3.26)$$

Здесь мы воспользовались соотношением $N_V \overline{(\rho_{11} - \rho_{22})} = N_1 - N_2$. Функция $\tilde{g}_L(\omega, \Omega_i)$ представляет собой комплексную лоренцеву функцию, определенную в (3.7):

$$\tilde{g}_L(\omega, \Omega_i) = \frac{1}{\pi} \frac{1}{(\Omega_i - \omega) + i(1/T_2)}. \quad (3.27)$$

Несмотря на то, что лоренцева поправка L на внутреннее поле для газа равна единице, не будем ее исключать, чтобы можно было применять результаты к плотным средам, в которых неоднородное уширение линий имеет гауссову форму.

Поляризация на частоте ω , обусловленная перекрывающимися вкладками всех спиновых пакетов, определяется как сумма компонент вида (3.25), которые с учетом (3.26) и (3.27) приводят к интегралу по диапазону частот переходов Ω_i . Полная восприимчивость тогда имеет вид

$$\chi(\omega) = \frac{\pi}{\hbar \epsilon_0} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{g}_L(\omega, \Omega_i) g_G(\Omega_i, \omega_0) d\Omega_i. \quad (3.28)$$

Учитывая, что $\tilde{g}_L(\omega, \Omega_i)$ и $g_G(\Omega_i, \omega_0)$ определяются выражениями (3.27) и (3.24) соответственно, можно свести выражение (3.28) к табличному интегралу [7]:

$$\omega(z) = \frac{i}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-t^2} dt}{z - t}, \quad \text{Im } z > 0,$$

где z — комплексная величина.

Обычно ширина линии при однородном уширении $2/T_2$, соответствующая лоренцеву спиновому пакету, значительно меньше полной ширины $\Delta\omega_G$ гауссовой линии. При этом условии вычисление (3.28) значительно упрощается, так как можно предположить, что ширина спинового пакета исчезающе мала. Поэтому при вычислении интеграла (3.28) возьмем [8]

$$\lim_{T_2 \rightarrow \infty} [\tilde{g}_L(\omega, \Omega_i)] = \lim_{T_2 \rightarrow \infty} \left[\frac{1}{\pi} \frac{\Omega_i - \omega}{(\Omega_i - \omega)^2 + (1/T_2)^2} - i \frac{1}{\pi} \frac{(1/T_2)}{(\Omega_i - \omega)^2 + (1/T_2)^2} \right] = \frac{1}{\pi} \frac{1}{\Omega_i - \omega} - i\delta(\Omega_i - \omega), \quad (3.29)$$

где $\delta(\Omega_i - \omega)$ — дельта-функция Дирака. Подстановка (3.29) в (3.28) приводит к результату

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega),$$

где

$$\chi''(\omega) = -\frac{\pi}{\hbar e_0} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) g_G(\omega, \omega_0), \quad (3.30)$$

$$\chi'(\omega) = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\Omega_i)}{\Omega_i - \omega} d\Omega_i. \quad (3.31)$$

Здесь PP — главное значение¹⁾.

Из выражения (3.30) видно, что в случае, когда спиновые пакеты значительно уже всей линии, линия поглощения при неоднородном уширении имеет такую же форму, как и при однородном (3.10); отличие состоит в том, что лоренцева функция $g_L(\omega, \Omega)$ заменена гауссовой функцией $g_G(\omega, \omega_0)$.

Как видно из (3.31), дисперсия может быть определена по линии поглощения с помощью интеграла свертки. Такой вид соотношения между χ' и χ'' имеет место также и для однородного уширения линии [(3.9) и (3.10)]. Оба эти случая являются частным примером известного соотношения Крамерса — Кронига;

$$\begin{aligned} \chi'(\omega) &= -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega', \\ \chi''(\omega) &= \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi'(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'. \end{aligned} \quad (3.32)$$

Доказательство этих соотношений основано на фундаментальной теореме теории функций комплексного переменного, согласно которой действительная и мнимая части комплексной функции $\chi(z)$ связаны определенными соотношениями, если $\chi(z)$ не имеет полюсов в какой-либо полуплоскости комплексного переменного z (верхней или нижней). Доказательство, использующее простое контурное интегрирование, дано в приложении 5. К случаю неоднородного уширения линии нам еще придется возвратиться при рассмотрении гелий-неонового лазера в гл. 4.

6. Насыщение

При поглощении средняя энергия излучения, которая должна передаваться двухуровневой дипольной системе, обычно довольно быстро рассеивается в окружающей среде вследствие

¹⁾ В интегральном виде P означает следующее:

$$P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f(\Omega_i)}{\Omega_i - \omega} d\Omega_i = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \left[\int_{-\infty}^{\omega - \varepsilon} \frac{f(\Omega_i)}{\Omega_i - \omega} d\Omega_i + \int_{\omega + \varepsilon}^{\infty} \frac{f(\Omega_i)}{\Omega_i - \omega} d\Omega_i \right].$$

релаксационных процессов. В результате на характеристики дипольной системы, подверженной действию электромагнитной волны, процессы поглощения практически не влияют. Однако если интенсивность излучения достаточно велика, поглощенная энергия не может быстро рассеиваться вследствие релаксационных процессов. В этом случае наблюдается существенное изменение населенностей уровней, так что поглощение и дисперсия среды начинают проявлять свойство насыщения. Чтобы изучить это явление, необходимо принять во внимание следствие из решений уравнения для разности населенностей (3.2). Для удобства перепишем его снова:

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_1 - N_2) + \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = - \frac{2}{\hbar \Omega} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}. \quad (3.33)$$

Первый член представляет собой мощность, которая должна передаваться дипольной системе, второй характеризует обмен мощностью с окружающей средой, а правая часть уравнения (3.33) характеризует мощность, вносимую приложенным полем.

В отсутствие приложенного поля \mathbf{E} стационарное решение уравнения для разности населенностей (3.33) имеет простой вид:

$$(N_1 - N_2) = (N_1 - N_2)^e.$$

В этом случае обмен с окружающей средой отсутствует, и разность населенностей имеет постоянное равновесное значение. Если система находится в тепловом равновесии с окружающей средой, то равновесная населенность задается бальцмановским распределением.

Однако если учесть действие внешнего поля, т. е. влияние члена, стоящего в правой части уравнения (3.33), то найдем, что мощность, которая будет передаваться дипольной системе, приведет к установлению нового равновесного значения. Предполагая, что бегущие волны для \mathbf{P} и \mathbf{E} имеют вид (3.4), и приравняв не зависящие от времени компоненты в обеих частях уравнения (3.33), получаем

$$\frac{\hbar \Omega}{2} \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = - \frac{i \omega}{4} (\tilde{\mathbf{P}} \cdot \tilde{\mathbf{E}}^* - \tilde{\mathbf{P}}^* \cdot \tilde{\mathbf{E}}), \quad (3.34)$$

где звездочкой обозначены комплексно сопряженные величины. Так как поляризация на основании (3.5) может быть выражена через поле, а именно

$$\tilde{\mathbf{P}} = \epsilon_j \chi(\omega) \tilde{\mathbf{E}} = \epsilon_j (\chi'(\omega) + i \chi''(\omega)) \tilde{\mathbf{E}},$$

то уравнение (3.34) можно переписать в виде

$$\frac{\hbar \Omega}{2} \frac{(N_1 - N_2) - (N_1 - N_2)^e}{T_1} = \frac{1}{2} \Omega \chi''(\omega) |\tilde{\mathbf{E}}|^2. \quad (3.35)$$

Физический смысл уравнения (3.35) заключается в том, что в стационарном состоянии среднее по времени значение разности населенностей устанавливается таким образом, что мощность, теряемая в окружающей среде, соответствует мощности, которая передается дипольной системе при поглощении.

Восприимчивость можно исключить из уравнения (3.35), если воспользоваться соотношением (3.10). Тогда для случая однородного уширения линии имеем

$$(N_1 - N_2) = \frac{(N_1 - N_2)^e}{1 + \frac{I}{I_{\text{нас}}} \frac{g_L(\omega, \Omega)}{T_2/\pi}}. \quad (3.36)$$

Здесь $I = \eta \epsilon_0 c |\tilde{E}|^2/2$ — мощность, переносимая волной через единицу площади, а η — показатель преломления среды. Параметр насыщения $I_{\text{нас}}$ определяется следующим образом:

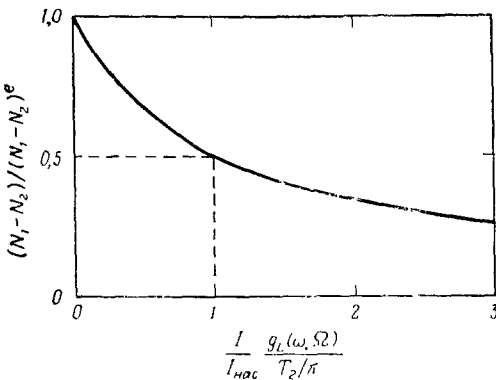
$$I_{\text{нас}} \equiv \frac{\eta \epsilon_0 c}{(2T_1 T_2 / \hbar^2) L (|\mu_{12}|^2/3)}. \quad (3.37)$$

Этот параметр характеризует мощность, которая должна переноситься волной резонансной частоты через единицу площади, чтобы в результате разности населенностей уменьшалась вдвое по сравнению со случаем отсутствия насыщения.

График выражения (3.36) представлен на фиг. 3.9. Видно, что при высоких интенсивностях поля разность населенностей стремится к нулю, т. е. населенности верхнего и нижнего уровней становятся практически равными. Ни при какой интенсивности приложенного поля невозможно с помощью процессов резонансного поглощения добиться инверсии разности населенностей, т. е. получить большее число атомов на верхнем уровне, чем на нижнем. Инверсия населенностей, необходимая для работы лазеров и мазеров, достигается в результате процессов, в которых участвуют и другие энергетические уровни. Эти методы получения инверсии населенностей обсуждаются в гл. 4.

Фиг. 3.9. Насыщение разности населенностей в единице объема при увеличении интенсивности поля.

Сомножитель отношения $I/I_{\text{нас}}$ в (3.36) и на фиг. 3.9 равен единице при $\omega = \Omega$ и меньше единицы в остальных случаях. Это



означает, что при резонансе имеется наивысшая эффективность поля в отношении насыщения перехода.

Из уравнений (3.13), (3.14) и (3.36) находим выражение для коэффициента поглощения в случае, когда насыщение начинает играть существенную роль:

$$\Gamma = \frac{\Omega\pi}{\hbar\epsilon_0 c} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2)^e \left[\frac{1/T_2}{\pi [(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2 (1 + I/I_{\text{нас}})]} \right]. \quad (3.38)$$

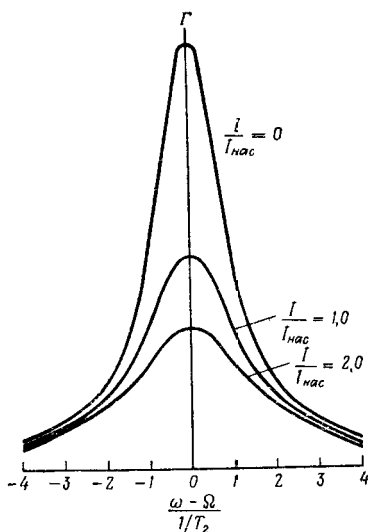
Значение Γ при ненасыщенном режиме можно получить из этого выражения, положив $I = 0$. Эффект насыщения проявляется в уширении и сглаживании формы линии, так что максимальное значение коэффициента поглощения уменьшается согласно выражению

$$\Gamma(\Omega) = \Gamma_{\text{ненас}}(\Omega) \frac{1}{1 + I/I_{\text{нас}}}, \quad (3.39)$$

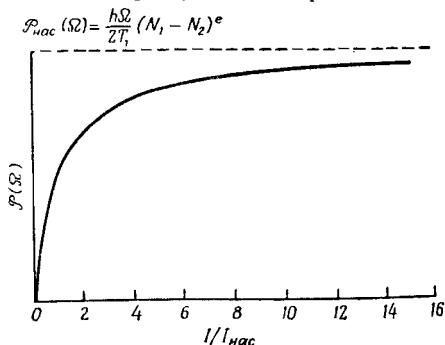
а ширина линии увеличивается до величины

$$\Delta\omega_L = \Delta\omega_{L\text{ненас}} \sqrt{1 + I/I_{\text{нас}}}. \quad (3.40)$$

Это иллюстрируется на фиг. 3.10.



Фиг. 3.10. Характер изменения коэффициента поглощения в условиях насыщения.



Фиг. 3.11. Мощность, поглощаемая в единице объема при резонансе в условиях насыщения.

При достижении уровня мощности, соответствующего насыщению, сочетание уменьшения коэффициента поглощения и увеличения интенсивности приводит в результате к тому, что поглощаемая в единице объема мощность $\mathcal{P} = \Gamma I$ насыщается и не превышает уровня $\mathcal{P}_{\text{нас}}$, показанного на фиг. 3.11. Комбинируя (3.37) — (3.39) для случая $I/I_{\text{нас}} \gg 1$, получаем при резонансе

$$\mathcal{P}_{\text{нас}}(\Omega) = \Gamma_{\text{ненас}}(\Omega) I_{\text{нас}} = \frac{\hbar\Omega}{2} \frac{(N_1 - N_2)^e}{T_1}. \quad (3.41)$$

Из первого равенства в (3.41) видно, что мощность, поглощаемая в единице объема, при полном насыщении стремится к величине, соответствующей мощности, которая поглощалась бы при интенсивности $I = I_{\text{нас}}$, если бы коэффициент поглощения был равен своей ненасыщенной величине. Поскольку при этих условиях дипольная система не может больше поглощать, то переход называют *просветленным*, и любая дополнительная мощность, добавленная к волне, передается через среду без ослабления.

Измерения эффектов насыщения иногда можно использовать для определения времени релаксации T_1 . В этом случае необходимо измерить ненасыщенный коэффициент поглощения и ширину линии в отсутствие насыщения (чтобы знать матричный элемент $|\mu_{12}|^2$ и ширину линии $\Delta\omega_{\text{ненас}} = 2/T_2$), а затем измерить либо коэффициент поглощения, либо ширину линии в условиях насыщения, после чего вычислить по формулам (3.39) или (3.40) величину $I_{\text{нас}}$. Тогда время релаксации T_1 можно получить, решая уравнение (3.37).

Экспериментально эффекты насыщения наблюдаются иногда при относительно слабых уровнях мощности порядка 1 мвт/см^2 . Для аммиака в рассмотренном выше случае при давлении $4 \cdot 10^{-2} \text{ мм рт. ст.}$ получено $T_1 \sim 1/3 \cdot 10^6 \text{ сек}$, $T_2 \sim 1/6,4 \cdot 10^6 \text{ сек}$, $|\mu_{12}| = 1,14 \text{ дебай}$, из уравнения (3.37) получим $I_{\text{нас}} \sim 6 \text{ мвт/см}^2$.

7. Вырождение

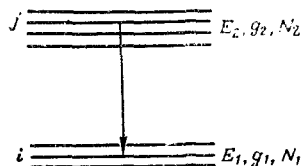
До сих пор предполагалось, что уровни являются невырожденными, и поэтому оставался вне рассмотрения вопрос сравнительно важный в практических приложениях, а именно, как видоизменяются уравнения в случае вырождения.

Рассмотрим двухуровневую систему, в которой кратность вырождения верхнего и нижнего уровней равна соответственно g_2 и g_1 . Это значит, что имеется g_2 собственных состояний с энергией E_2 и g_1 собственных состояний с энергией E_1 . Включим сюда же случай, когда уровни не точно вырождены, а удалены друг от друга на расстояние, малое по сравнению с шириной полосы возбуждающего излучения и по сравнению с $\hbar T$. На фиг. 3.12 изображена рассматриваемая двухуровневая система, где для ясности отдельные состояния в каждом уровне показаны разделенными.

Для переходов между i -м и j -м состояниями для поляризации \mathbf{P}_{ij} в изотропном случае на основании (3.1) запишем следующее уравнение:

$$\ddot{\mathbf{P}}_{ij} + \frac{\gamma}{T_2} \dot{\mathbf{P}}_{ij} + \Omega^2 \mathbf{P}_{ij} = \frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mu_{ij}|^2}{3} (N_i - N_j) \mathbf{E}. \quad (3.42)$$

В обычных условиях в отсутствие селективного механизма, сортирующего молекулы, находящиеся в различных состояниях на данном вырожденном энергетическом уровне, энергетическое рассмотрение позволяет считать, что все состояния на одном и том же уровне равно заселены перед началом взаимодействия. Поэтому по крайней мере вначале $N_j = N_2/g_2$ и $N_i = N_1/g_1$,



Фиг. 3.12. Двухуровневая система с вырожденными верхним и нижним уровнями.

Кратности вырождения равны g_2 и g_1 соответственно.

где N_2 и N_1 — полное число атомов или молекул в единице объема соответственно на верхнем и нижнем уровнях. При этих условиях (3.42) можно записать в виде

$$\ddot{\mathbf{P}}_{ij} + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}}_{ij} + \Omega^2 \mathbf{P}_{ij} = \frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mu_{ij}|^2}{3} \left(\frac{N_1}{g_1} - \frac{N_2}{g_2} \right) \mathbf{E}. \quad (3.43)$$

Суммируя по множеству состояний на верхнем и нижнем уровнях, для полной поляризации получаем

$$\ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} = \frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} \left(\frac{N_1}{g_1} - \frac{N_2}{g_2} \right) \mathbf{E}. \quad (3.44)$$

Здесь $|\mu_{12}|^2$ определяется теперь следующим образом:

$$|\mu_{12}|^2 = \sum_{i=1}^{g_1} \sum_{j=1}^{g_2} |\mu_{ij}|^2. \quad (3.45)$$

Если желательно учесть изменения населенностей уровней при переходах, то для вырожденного случая необходимо записать уравнение, соответствующее уравнению (3.2). Во время перехода типичным, по крайней мере для твердых и жидких сред, является наличие быстрых внутренних кросс-релаксационных процессов между вырожденными состояниями в данном уровне [9]. В результате независимо от того, какие состояния участвуют в переходах, внутренние релаксационные процессы поддерживают распределение $N_j = N_2/g_2$ и $N_i = N_1/g_1$. В этом случае уравнения (3.43) — (3.45) применимы для изменяющихся значений N_1 и N_2 . [В противном случае надо пользоваться уравнениями (3.42).] Уравнение для разности населенностей выводится следующим путем.

Прежде всего замечаем, что для невырожденного случая выражение (3.2) может быть представлено в виде двух уравнений, если воспользоваться соотношением $N_1 + N_2 = N_V$, где

N_V — постоянная величина. Эти уравнения имеют вид

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} + \frac{N_1 - N_1^e}{T_1} = -\frac{1}{\hbar\Omega} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}, \quad (3.46)$$

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} + \frac{N_2 - N_2^e}{T_1} = \frac{1}{\hbar\Omega} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}, \quad (3.47)$$

Применяя (3.46) к вырожденному случаю, запишем

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} + \frac{N_i - N_i^e}{T_1} = -\frac{1}{\hbar\Omega} \frac{1}{g_1} \sum_{i=1}^{g_1} \sum_{j=1}^{g_2} \dot{\mathbf{P}}_{ij} \cdot \mathbf{E} = -\frac{1}{\hbar\Omega} \frac{1}{g_1} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}. \quad (3.48)$$

Вид правой части уравнения (3.48) обусловлен тем, что при наличии кросс-релаксационных процессов между вырожденными состояниями населенность состояния i изменяется в результате *всех* переходов между уровнями 1 и 2; фактически это изменение равно $1/g_1$ части полного изменения населенности уровня 1. [Если кросс-релаксационные процессы отсутствуют, то правая

часть (3.48) имеет простой вид $-(1/\hbar\Omega) \sum_{j=1}^{g_2} \dot{\mathbf{P}}_{ij} \cdot \mathbf{E}$, т. е. учитываются переходы только между уровнем i и всеми уровнями j . Подобные рассуждения справедливы и по отношению к уровню j . Теперь после подстановки $N_j = N_2/g_2$ и $N_i = N_1/g_1$ имеем

$$\frac{\partial}{\partial t} \frac{N_1}{g_1} + \frac{N_1/g_1 - N_1^e/g_1}{T_1} = -\frac{1}{\hbar\Omega} \frac{1}{g_1} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}, \quad (3.49)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \frac{N_2}{g_2} + \frac{N_2/g_2 - N_2^e/g_2}{T_1} = \frac{1}{\hbar\Omega} \frac{1}{g_2} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}. \quad (3.50)$$

Эти уравнения могут быть скомбинированы двумя способами. Во-первых, видим, что если (3.49) умножить на g_1 , а (3.50) на g_2 и затем вычесть второе уравнение из первого, то снова получим выражение (3.2). Отсюда можно заключить, что уравнение для разности населенностей, характеризующее баланс энергии, не изменяет вид для вырожденного случая. Однако поскольку разность населенностей в поляризационном уравнении (3.44) учитывается разностью $(N_1/g_1 - N_2/g_2)$, то иногда удобно для получения решений записать (3.49) и (3.50) в виде, полученном после вычитания второго выражения из первого, т. е.

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{N_1}{g_1} - \frac{N_2}{g_2} \right) + \frac{(N_1/g_1 - N_2/g_2) - (N_1/g_1 - N_2/g_2)^e}{T_1} = \\ = -\frac{i}{\hbar\Omega} \left(\frac{1}{g_1} - \frac{1}{g_2} \right) \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (3.51)$$

Поэтому для вырожденного случая при учете кросс-релаксационных процессов между вырожденными состояниями вместо уравнения (3.1) надо пользоваться уравнением (3.44), а уравнение (3.2) либо может использоваться в том же виде, либо может быть заменено эквивалентным в форме (3.51).

В заключение выведем соотношение, связывающее населенности различных энергетических уровней при тепловом равновесии для вырожденного случая. В случае теплового равновесия при абсолютной температуре T распределение атомов по различным состояниям характеризуется законом Больцмана. Если имеется несколько состояний на данном энергетическом уровне, то соотношение населенностей в единице объема каких-либо двух состояний, находящихся на разных уровнях, определяется следующим образом:

$$N_j = N_i e^{-(E_j - E_i)/kT}.$$

Поэтому, используя населенности уровней в единице объема $N_2 = g_2 N_j$ и $N_1 = g_1 N_i$, получаем выражение

$$\frac{N_2}{g_2} = \frac{N_1}{g_1} e^{-(E_2 - E_1)/kT}. \quad (3.52)$$

§ 3. ТЕНЗОРНЫЕ СВОЙСТВА ВОСПРИИМЧИВОСТИ

В изотропной среде явления поглощения, дисперсии и насыщения рассматривались на основе введения скалярной восприимчивости $\chi(\omega)$, отражающей связь поляризации с электрическим полем через соотношение (3.5):

$$\tilde{\mathbf{P}} = \epsilon_0 \chi(\omega) \tilde{\mathbf{E}}. \quad (3.53)$$

Понятие восприимчивости можно успешно распространить на анизотропные среды. Поскольку анизотропные среды играют важную роль в практических приложениях, целесообразно рассмотреть применимость к ним концепции восприимчивости и обсудить некоторые важные вытекающие отсюда следствия. Если читатель интересуется только изотропными средами, то этот параграф может быть опущен без ущерба для дальнейшей последовательности изложения.

В анизотропном случае уравнение для поляризации имеет вид

$$\ddot{P}_\alpha + \frac{2}{T_2} \dot{P}_\alpha + \Omega^2 P_\alpha = \frac{2\Omega}{\hbar} \overline{(\mu_\alpha \mu_\beta^*)} (N_1 - N_2) E_\beta^{\text{ток}}. \quad (2.41)$$

Записывая переменные в комплексной форме,

$$P_\alpha = \frac{1}{2} \tilde{P}_\alpha e^{i(\omega t - kz)} + \text{компл. сопр.},$$

$$E_\beta = \frac{1}{2} \tilde{E}_\beta e^{i(\omega t - kz)} + \text{компл. сопр.},$$

из уравнения (2.41) получим

$$\tilde{P}_\alpha = \frac{\pi}{h} (\overline{\mu_\alpha \mu_\beta^*}) (N_1 - N_2) \tilde{g}_L(\omega, \Omega) \tilde{E}_\beta \equiv \varepsilon_{\alpha\beta} \chi_{\alpha\beta}(\omega) \tilde{E}_\beta. \quad (3.54)$$

Здесь $\tilde{g}_L(\omega, \Omega)$ — комплексная лоренцева функция, определяемая из (3.7), а $\tilde{E}_\beta^{\text{лок}} = \tilde{E}_\beta$. Для плотных сред, где $\tilde{E}_\beta^{\text{лок}} \neq \tilde{E}_\beta$, необходимо вводить поправочный коэффициент локального поля, как и в изотропном случае. Однако для анизотропных сред выражения становятся более сложными [10].

В приложении 3 показано, что для двухуровневой системы $\mu_\alpha \mu_\beta^* = \mu_\beta \mu_\alpha^*$. Поэтому для двухуровневой системы и для случая, когда поправочный лоренцев коэффициент равен единице, имеем

$$\chi_{\beta\alpha}(\omega) = \chi_{\alpha\beta}(\omega). \quad (3.55)$$

На основе термодинамического рассмотрения [11] можно доказать, что уравнение (3.55) применимо и для системы с большим числом уровней, когда поправочный коэффициент локального поля не равен единице, а является функцией координатных индексов.

Восприимчивость $\chi_{\alpha\beta}(\omega)$ связывает две физические величины, каждая из которых имеет смысл, не зависящий от случайного выбора системы координат. Поэтому восприимчивость, связывающая эти две величины, должна в некотором смысле также не зависеть от выбора системы координат. Это значит, что восприимчивость, имеющая некоторый частный вид в выбранной системе координат, при изменении системы координат должна преобразовываться определенным образом, так чтобы сохранялась требуемая взаимосвязь между физическими величинами. Такое свойство называется тензорным свойством. В частности, поскольку $\chi_{\alpha\beta}(\omega)$ связывает компоненты двух векторов, то требуется два координатных индекса. Это — тензор второго ранга. Число координатных индексов определяет ранг тензора; вектор есть тензор первого ранга, скаляр — тензор нулевого ранга.

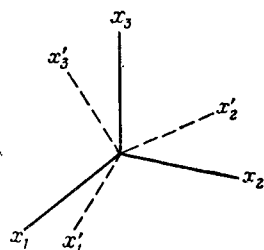
Тензор второго ранга определяется девятью числами. В прямоугольной декартовой системе координат компоненты восприимчивости $\chi_{\alpha\beta}(\omega)$ записываются в виде таблицы

$$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{pmatrix}.$$

Из девяти элементов в этой таблице только шесть являются независимыми ввиду ограничений, налагаемых условием (3.55). Тензор, для которого справедливо условие (3.55), называется симметричным тензором.

Особый интерес представляют трансформационные свойства тензора восприимчивости при различных преобразованиях системы координат. Эти свойства полно отражают свойства симметрии среды, которые в свою очередь важны для определения вида тензора второго ранга линейной восприимчивости $\chi_{\alpha\beta}$. Рассмотрим, например, среду, свойства симметрии которой таковы, что независимо от ориентации по отношению к заданному полю наведенная поляризация всегда направлена вдоль поля. В этом случае недиагональные элементы тензора восприимчивости $\chi_{\alpha\beta}$ должны, очевидно, обращаться в нуль, так как они характеризуют величину наведенной поляризации по направлению, не совпадающим с направлением поля [см. уравнение (3.54)]. Более того, если амплитуда поляризации, наведенной данным полем, не зависит от ориентации среды, то диагональные элементы тензора восприимчивости равны друг другу. Фактически только что были описаны свойства симметрии изотропной среды, тензор восприимчивости для которой $\chi_{\alpha\beta}$ имеет вид

$$\chi_{\alpha\beta} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{xx} \end{pmatrix}.$$



Фиг. 3.13. Преобразование координат.

Чтобы рассматривать более общие случаи, необходимо изучить трансформационные свойства тензора второго ранга при различных вращениях системы координат. Под вращениями системы координат будем понимать переход от одной совокупности взаимно перпендикулярных осей, обозначенных x_1, x_2, x_3 , к другой, обозначенной x'_1, x'_2, x'_3 , без изменения положения начала координат (фиг. 3.13). Преобразование от старой, нештрихованной, совокупности координатных осей к новой, штрихованной, совокупности подчиняется уравнению преобразования координат

$$x'_\alpha = a_{\alpha\beta} x_\beta.$$

Здесь $a_{\alpha\beta}$ — косинусы углов между новыми (x'_α) и старыми (x_β) осями. По повторяющимся индексам подразумевается суммирование.

То же самое можно записать в другом виде — в матричных обозначениях:

$$x' = Ax,$$

или более подробно

$$\begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_{xx} & a_{xy} & a_{xz} \\ a_{yx} & a_{yy} & a_{yz} \\ a_{zx} & a_{zy} & a_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}.$$

Здесь таблица из девяти коэффициентов представляет собой матрицу преобразования A . Преобразование координат — это преобразование компонент радиуса-вектора. Компоненты любого другого вектора, как, например, вектора поляризации или электрического поля, преобразуются таким же образом, как и радиус-вектор [11]. Так, компоненты вектора \mathbf{P} в новой координатной системе выражаются через компоненты его в старой системе следующим образом:

$$P'_\alpha = a_{\alpha\beta} P_\beta, \quad (3.56)$$

или в случае обратного преобразования

$$P_\alpha = a_{\beta\alpha} P'_\beta. \quad (3.57)$$

Заметим, что при переходе от старой системы координат к новой, как в (3.56), повторяющиеся индексы оказываются рядом, в то время как при обратном преобразовании это не имеет места.

Рассмотрим теперь преобразование тензора второго ранга, связывающего два вектора. В частности, выясним трансформационные свойства тензора восприимчивости второго ранга $\chi_{\alpha\beta}$. Из (3.54) имеем

$$\tilde{P}_\alpha = \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta} \tilde{E}_\beta.$$

Поляризация в новой координатной системе определяется с помощью (3.56), и, учитывая предыдущее выражение, запишем

$$\tilde{P}'_\alpha = \epsilon_0 a_{\alpha\beta} \chi_{\beta\gamma} \tilde{E}'_\gamma.$$

С другой стороны, \tilde{E}'_γ преобразуется по закону (3.57), поэтому

$$\tilde{P}'_\alpha = \epsilon_0 a_{\alpha\beta} \chi_{\beta\gamma} a_{\gamma\delta} \tilde{E}'_\delta;$$

окончательно получаем

$$\tilde{P}'_\alpha = \epsilon_0 \chi'_{\alpha\delta} \tilde{E}'_\delta,$$

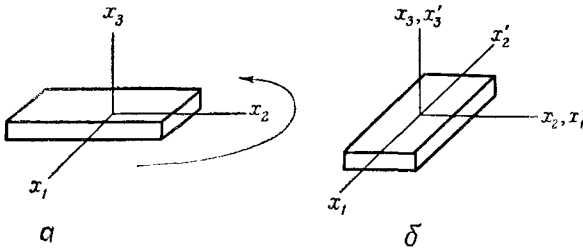
где $\chi'_{\alpha\delta}$ — восприимчивость в новой координатной системе — связана с восприимчивостью в старой координатной системе следующим образом:

$$\chi'_{\alpha\delta} = a_{\alpha\beta} \chi_{\beta\gamma} a_{\gamma\delta}. \quad (3.58)$$

Это выражение можно записать в матричной форме:

$$\chi' = A\chi A^t = A\chi A^{-1}. \quad (3.59)$$

Здесь χ и A — матрицы из девяти элементов, A^t — матрица, транспонированная к матрице A , т. е. ее строки заменены столбцами; A^{-1} — обратная матрица, удовлетворяющая условию $A^{-1}A = AA^{-1} = I$, где I — единичная матрица. При ортогональных преобразованиях, т. е. при преобразованиях из одной декартовой системы координат в другую, обратная и транспонированная матрицы идентичны друг другу. Преобразование вида (3.59) называется преобразованием подобия.



Фиг. 3.14. Диаграмма, иллюстрирующая действия над средой, необходимые для определения возможных элементов симметрии.

Измерение, позволяющее определить элементы тензора, проводится в нештрихованной координатной системе, показанной на фиг. 3.14, а. Затем образец вращается и измеряются элементы тензора вдоль тех же самых направлений в абсолютном пространстве. Иначе говоря, элементы тензора сопоставляются с нештрихованной координатной системой на фиг. 3.14, б. Если тензор восприимчивости одинаков для этих двух измерений, тензор, отнесенный к штрихованным и к нештрихованным координатам на фиг. 3.14, б, также один и тот же. При этом говорят, что среда обладает 90-градусной симметрией.

Теперь можно рассмотреть связь трансформационных свойств тензора восприимчивости при поворотах системы координат с физическими свойствами среды. Сначала измеряются компоненты вектора, характеризующего физическую величину, например поляризацию или электрическое поле в заданной системе координат, т. е. при определенном положении образца (фиг. 3.14, а). Для этого положения вычисляются элементы тензора восприимчивости, связывающего эти векторы.

Затем положение образца изменяется, например, поворотом на угол $\pi/2$, и повторяются измерения в тех же самых направлениях. Если тензор восприимчивости не изменяется, то это эквивалентно тому, что тензор в штрихованной и в нештрихованной системах координат (фиг. 3.14, б) один и тот же.

Это дает

$$\chi' = \chi. \quad (3.60)$$

В таком случае говорят, что восприимчивость обладает элементом симметрии, заданным оператором вращения.

Если матрица преобразования A соответствует вращению, которое не изменяет тензор, как в (3.60), то (3.59) дает

$$\chi = A\chi A^{-1},$$

или

$$\chi A = A\chi A^{-1} A = A\chi.$$

Отсюда получаем полезный результат: если A соответствует преобразованию симметрии, то

$$[A, \chi] = 0. \quad (3.61)$$

Полученное соотношение устанавливает, каким образом свойства симметрии среды ограничивают вид χ . Это лучше всего можно проиллюстрировать на конкретном примере. Однако прежде всего необходимо рассмотреть некоторые общие понятия.

При изучении физических свойств кристаллов возможные макроскопические элементы симметрии, которыми обладает кристалл, и соответствующие преобразования можно классифицировать следующим образом [11, 13].

1. Центр симметрии. Преобразование, называемое инверсией, заключается в том, что каждая точка с координатами (x, y, z) переводится в точку $(-x, -y, -z)$.

2. Зеркальная плоскость. Ей соответствует преобразование, при котором каждая точка зеркально отражается относительно данной плоскости.

3. Поворотная ось n -го порядка, $n = 1, 2, 3, 4, 6$. Вращение на угол $2\pi/n$ вокруг данных осей, называемых соответственно осью симметрии первого, второго, третьего, четвертого и шестого порядка.

4. Инверсионная ось n -го порядка, $n = 1, 2, 3, 4, 6$. Производится вращение на угол $2\pi/n$ вокруг оси с последующей инверсией.

Возможные комбинации этих макроскопических элементов симметрии составляют 32 точечные группы, определяющие 32 кристаллических класса в соответствии с точечно-групповой симметрией, которой обладает кристалл. Термин «точечная группа» возник потому, что во всех перечисленных выше преобразованиях не учитывается трансляционная симметрия. Физическая структура кристалла может, вообще говоря, обладать также двумя дополнительными элементами симметрии, называемыми плоскостью скольжения и винтовой осью n -го порядка. Оба эти элемента связаны с трансляционными свойствами кристалла. Если эти дополнительные элементы симметрии принимать во внимание, то можно составить 230 возможных комбинаций элементов симметрии, так называемых пространственных

групп. Однако при изучении макроскопических свойств кристаллов нет необходимости учитывать это дополнительное уточнение.

32 кристаллических класса составляют семь кристаллических систем, для каждой из которых характерны определенные комбинации элементов симметрии. Эта классификация с указанием нескольких интересных свойств представлена в табл. 4. Каждый из 32 классов обозначается символами типа $\bar{3}m$, приведенными в первом столбце. Символы имеют следующий смысл. Цифра обозначает порядок поворотной оси, цифра с чертой над

Таблица 4

Кристаллические классы

Обозначение класса ¹⁾	Кристаллическая система	Оптические свойства кристалла	Тензор линейной восприимчивости
1, $\bar{1}$	Триклинная	Двуосный	$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{xy} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{xz} & \chi_{yz} & \chi_{zz} \end{pmatrix}$
2, m , $2/m$	Моноклиная	Двуосный	$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & \chi_{xz} \\ 0 & \chi_{yy} & 0 \\ \chi_{xz} & 0 & \chi_{zz} \end{pmatrix}$
222, $mm2$, mmm	Орторомбическая	Двуосный	$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{pmatrix}$
4, $\bar{4}$, $4/m$, 422 , $4mm$, $\bar{4}2m$, $4/m\bar{3}m$	Тетрагональная	Одноосный	$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{pmatrix}$
3, $\bar{3}$, 32 , $3m$, $\bar{3}m$	Тригональная	Одноосный	$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{pmatrix}$
6, $\bar{6}$, $6/m$, 622 , $6mm$, $\bar{6}m2$, $6/m\bar{3}m$	Гексагональная	Одноосный	$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{pmatrix}$
23, $m\bar{3}$, 432 , $\bar{4}3m$, $m\bar{3}m$	Кубическая	Изотропный	$\begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{xx} \end{pmatrix}$

¹⁾ Рисунки, иллюстрирующие операции симметрии для кристаллических классов, представлены в табл. 21 работы [11].

ней обозначает инверсионную ось, а буква m обозначает зеркальную плоскость. Правила составления полного символа имеются в книгах по свойствам кристаллов. Кратко они могут быть суммированы следующим образом:

1. Поворотная ось: X .
2. Поворотная ось с последующей инверсией: \bar{X} .
3. Поворотная ось и зеркальная плоскость, перпендикулярная оси: X/m .
4. Поворотная ось; поворотная ось (оси) второго порядка, перпендикулярная основной оси: X^2 .
5. Поворотная ось; зеркальная плоскость (плоскости), параллельная оси: Xm .
6. Поворотная ось; зеркальная плоскость, перпендикулярная оси, и зеркальные плоскости, параллельные оси: X/m .
7. Поворотная ось; зеркальная плоскость, перпендикулярная к оси; зеркальная плоскость, параллельная оси; зеркальная плоскость, параллельная оси и составляющая с предыдущей плоскостью угол 45° : X/mmm .

Символ $\bar{3}m$ означает, например, что имеется инверсионная ось третьего порядка и зеркальная плоскость (или плоскости), параллельная оси.

Названия семи кристаллических систем, соответствующие геометрии структуры кристалла, перечислены во втором столбце. В третьем столбце представлена классификация кристаллов по их оптическим свойствам. Изотропный кристалл представляет собой кристалл, в котором восприимчивость одна и та же при распространении полей, поляризованных параллельно любой из трех осей: x , y или z . Такие кристаллы оптически изотропны и обладают одним значением показателя преломления. В одноосных кристаллах восприимчивость при распространении компоненты поля, поляризованной параллельно одной из осей, называемой оптической осью, отличается от восприимчивости для компонент поля, поляризованных параллельно другим осям. Это приводит к двум значениям показателя преломления: одному для компонент поля, поляризованных параллельно оптической оси (необыкновенный луч), и другому — для компонент поля, поляризованных перпендикулярно оптической оси (обыкновенный луч). В двуосных кристаллах восприимчивость различна для всех компонент поля, поляризованных параллельно любой из трех осей. Такие кристаллы имеют три значения показателя преломления.

Вид тензоров восприимчивости, представленный в правом крайнем столбце табл. 4, определяется с помощью уравнения

(3.61). В качестве простого примера рассмотрим кристалл, обладающий осью симметрии четвертого порядка, и этой осью является ось z . Старые (нештрихованные) и новые (штрихованные) оси выбираются так, как показано на фиг. 3.14, б. Оператор симметрии A определяется из уравнения преобразования координат $x'_\alpha = a_{\alpha\beta} x_\beta$. В матричном виде уравнение преобразования координат в соответствии с фиг. 3.14, б записывается следующим образом:

$$\begin{pmatrix} x'_1 \\ x'_2 \\ x'_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_1 \\ x_2 \\ x_3 \end{pmatrix}.$$

Здесь A есть 3×3 -матрица в этом уравнении.

Используя условие (3.61), т. е. $[A, \chi] = 0$, получаем

$$\begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{xy} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{xz} & \chi_{yz} & \chi_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{xy} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{xz} & \chi_{yz} & \chi_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Это система из девяти уравнений, из которых только шесть независимы. Решая эту систему, получаем выражения для $\chi_{\alpha\beta}$. Например, первое уравнение, начиная сверху слева, имеет вид

$$-\chi_{xy} = \chi_{xy}.$$

Отсюда имеем $\chi_{xy} = 0$. Из второго уравнения вида $-\chi_{yy} = -\chi_{xx}$ можно сделать вывод, что первые два диагональных элемента в χ равны друг другу. Проводя таким образом вычисления пока не будут получены все элементы, приходим к виду тензора χ , имеющемуся в табл. 4:

$$\chi = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz} \end{pmatrix}.$$

Рассмотренный пример иллюстрирует взаимосвязь между свойствами симметрии среды и видом тензора восприимчивости $\chi_{\alpha\beta}$.

Хотя в книге для простоты рассматривается главным образом изотропный случай, результаты, приведенные в данном параграфе, могут служить основой для обобщения на анизотропные среды. Концепция восприимчивости может быть распространена на нелинейные процессы. Например, при генерации третьей гармоники возникает поляризация на частоте, в 3 раза превышающей частоту приложенного поля. В этом случае поляризация и поле связаны через тензор восприимчивости чет-

вертого ранга, определяемый выражением

$$\tilde{P}_\alpha(\omega) = \epsilon_0 \chi_{\alpha\beta\gamma\delta} \tilde{E}_\beta(\omega) \tilde{E}_\gamma(\omega) \tilde{E}_\delta(\omega).$$

Здесь в скобках приведены частоты, относящиеся к полям и поляризации.

В наиболее общем случае пользуются разложением поляризации в степенной ряд по полю с тензорами восприимчивости различных рангов, играющих роль коэффициентов разложения. Часто при рассмотрении нелинейных процессов разложения такого вида принимаются в качестве отправной точки при анализе [13]. Тензоры восприимчивости при этом рассматриваются как феноменологические величины, определяемые из эксперимента.

§ 4. НЕСТАЦИОНАРНЫЕ ПРОЦЕССЫ ДЛЯ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ДИПОЛЬНОГО ПЕРЕХОДА. СИСТЕМА АМПЛИТУДНЫХ УРАВНЕНИИ И КИНЕТИЧЕСКИЕ УРАВНЕНИЯ

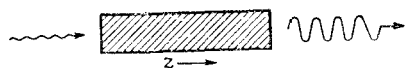
Поскольку свойства поглощения, дисперсии и насыщения электрического дипольного перехода, описанные в § 2, относились к стационарным явлениям, для их описания было достаточно пользоваться простым стационарным приближением. Однако при определенных условиях, как, например, в твердотельном лазере, имеет место бурный процесс обмена энергией между дипольной системой и излучением, что приводит к значительным флуктуациям характеристик поглощения и насыщения среды. В результате возникают переходные процессы во времени и пространстве. Чтобы изучить эти явления, необходимо решить систему уравнений (3.1) — (3.3) для нестационарного случая.

К счастью, не требуется искать полное нестационарное решение системы уравнений (3.1) — (3.3), так как часто можно найти приближение, существенно упрощающее проблему. При взаимодействии электрической дипольной системы с внешним полем обычно отчетливо выделяются две временные шкалы: одна — это период СВЧ или оптических колебаний и другая — времена релаксации, характеризующие различные механизмы потерь. Именно эти времена релаксации характеризуют обмен энергией между полем и дипольной системой. В лазере, например, период колебаний порядка 10^{-15} сек, в то время как времена релаксации обычно порядка 10^{-10} сек или более. В дальнейшем мы увидим, что методом усреднения можно отделить медленные изменения амплитуд от основных высокочастотных колебаний и сосредоточить внимание на первых. Это позволяет изучить процессы обмена энергией между средой и полем, происходящие за время, значительно превышающее период колебаний.

Также отчетливо можно выделить две пространственные шкалы: одну, связанную с длиной волны излучения, и другую, характеризующую нарастание или затухание полей на расстояниях, гораздо больших длины волны. Эти две шкалы также легко разделяются методом усреднения, который часто называется стробоскопическим методом, поскольку пространственные изменения, соответствующие мелкой шкале, не исследуются, а проводится лишь рассмотрение изменений, соответствующих крупной шкале. Используемое нами приближение является просто квазистационарным приближением или методом изменяющихся параметров, когда допускаются медленные изменения стационарных значений в пространстве и времени.

1. Усиление бегущей волны

В качестве первого примера рассмотрим задачу, касающуюся лазерного усилителя бегущей волны (фиг. 3.15). Предположим, что оптическое излучение резонансной частоты падает на



Фиг. 3.15. Усиление сигнала, обусловленное инверсией населенностей $N_2 > N_1$.

среду, в которой разность населенностей инвертирована каким-либо способом, т. е. среда находится в таком состоянии, что число атомов или молекул в единице объема в верхнем состоянии больше, чем в нижнем ($N_2^e > N_1^e$). Способы создания инверсной разности населенностей описаны в гл. 4. Интуитивно ясно, что по крайней мере на начальном этапе волна начинает усиливаться, так как она входит в среду с отрицательным коэффициентом поглощения, поскольку величина инверсной разности населенностей в единице объема $(N_2 - N_1)^e > 0$ [см. уравнение (3.13)]. Однако разумно ожидать, что как только поля будут усиливаться, возникнут эффекты насыщения того или иного типа.

Соответствующие уравнения для изотропной среды получаются из (3.1) — (3.3) и имеют вид

$$\begin{aligned} \ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} &= -\frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N \mathbf{E}, \\ \frac{\partial N}{\partial t} + \frac{N - N^e}{T_1} &= \frac{2}{\hbar \Omega} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}, \\ \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{\eta \mathcal{A}}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} &= -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}, \end{aligned} \quad (3.62)$$

где $N \equiv N_2 - N_1$.

Предположим, что поляризация, электрическое поле и разность населенностей в единице объема изменяются следующим образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{P}}(z) e^{i(\Omega t - kz)} + \text{компл. сопр.}, \\ \mathbf{E} &= \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{E}}(z) e^{i(\Omega t - kz)} + \text{компл. сопр.}, \\ N &= N(z). \end{aligned} \quad (3.63)$$

Мы рассматриваем решения в виде бегущих волн. Они представляют собой стационарные колебания во времени с частотой Ω , но допускают медленные изменения в пространстве через комплексные амплитуды $\tilde{\mathbf{P}}(z)$, $\tilde{\mathbf{E}}(z)$. Здесь k — постоянная распространения $k \equiv \Omega\eta/c$. Изменяющимися во времени компонентами в N пренебрегаем, поскольку они малы.

Подставляя (3.63) в (3.62), приходим к следующей системе амплитудных уравнений:

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{P}}(z) &= \frac{iT_2}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N \tilde{\mathbf{E}}, \\ \frac{N - N^e}{T_1} &= \frac{i}{2\hbar} (\tilde{\mathbf{P}} \cdot \tilde{\mathbf{E}}^* - \tilde{\mathbf{P}}^* \cdot \tilde{\mathbf{E}}), \\ 2ik \frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}}{\partial z} + i\mathcal{A}k\tilde{\mathbf{E}} &= \Omega^2 \mu_0 \tilde{\mathbf{P}}. \end{aligned} \quad (3.64)$$

При выводе этих уравнений принималось во внимание, что $\partial^2 \tilde{\mathbf{E}} / \partial z^2 \ll k(\partial \tilde{\mathbf{E}} / \partial z)$ в соответствии с предположением о медленных изменениях.

Решение системы амплитудных уравнений позволяет получить амплитуды и фазы медленно изменяющихся компонент поляризации и поля, а также величину разности населенностей как функции расстояния в среде.

Исключая поляризацию $\tilde{\mathbf{P}}(z)$, а затем умножая уравнение для поля на $\tilde{\mathbf{E}}^*$ и складывая с комплексно сопряженным, получаем

$$\frac{\partial}{\partial z} |\tilde{\mathbf{E}}(z)|^2 + \mathcal{A} |\tilde{\mathbf{E}}(z)|^2 = \frac{\Omega T_2}{\hbar \epsilon_0 c \eta} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N(z) |\tilde{\mathbf{E}}(z)|^2. \quad (3.65)$$

Здесь

$$N(z) = \frac{N^e}{1 + (T_1 T_2 / \hbar) L (|\mu_{12}|^2 / 3) |\tilde{\mathbf{E}}(z)|^2}. \quad (3.66)$$

Величина $|\tilde{\mathbf{E}}|^2$ пропорциональна усредненной во времени плотности энергии поля в бегущей волне. Уравнение (3.65) является кинетическим уравнением, поскольку оно характеризует скорость передачи энергии из среды в поле по мере распростра-

нения поля в среде. В противоположность амплитудным уравнениям (3.64) кинетическое уравнение уже не содержит информации о фазе поля, так как в него входят только значения квадратов величин. Однако при определении возрастания плотности энергии нет необходимости рассматривать фазовые соотношения.

Объединяя выражения (3.65) и (3.66), получаем нелинейное дифференциальное уравнение

$$\frac{dI}{dz} = \left[\gamma_0 \frac{I(0) + I_{\text{нас}}}{I + I_{\text{нас}}} - \mathcal{A} \right] I = g(I) I. \quad (3.67)$$

Здесь I — средняя мощность, переносимая волной через единицу площади, $I = \eta \epsilon_0 c |\tilde{E}|^2/2$; $I_{\text{нас}}$ — параметр насыщения, определяемый из выражения (3.37); $I(0)$ — величина входной мощности в плоскости $z = 0$; $g(I)$ — полный коэффициент усиления, а γ_0 — коэффициент усиления в плоскости $z = 0$, пропорциональный обратной разности населенностей:

$$\gamma_0 = \frac{\hbar \Omega^e}{2T_1} \frac{1}{I(0) + I_{\text{нас}}}. \quad (3.68)$$

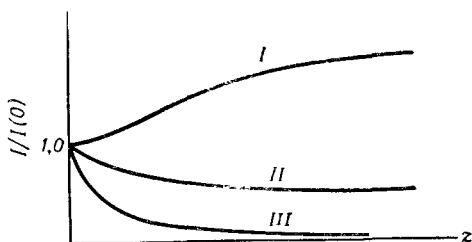
Здесь целесообразно обсудить допущение о пространственном усреднении, на котором основан вывод уравнения (3.62), а следовательно, и уравнений (3.65) — (3.67). Как упоминалось в гл. 2, § 4, п. 3, предполагается, что усредненное по пространству произведение матричных элементов и разности населенностей в единице объема равно произведению средних величин согласно равенству (2.39), т. е.

$$\overline{(\mu_{\alpha\beta}^*) N_V (\rho_{11} - \rho_{22})} = \overline{(\mu_{\alpha\beta}^*)} (N_1 - N_2).$$

Когда рассматриваются эффекты насыщения, описываемые выражениями вида (3.66), разность населенностей является функцией матричных элементов. Поэтому для одновременного решения уравнений (3.65) и (3.66) могла бы, вообще говоря, потребоваться подстановка неусредненного уравнения вида (3.66) в неусредненное уравнение (3.65) с последующим усреднением результата. Конечно, если все молекулы идентичны, как это имеет место в однородном кристалле, то если даже имеется насыщение, можно применять выражение (2.39). Подобные рассуждения относятся не только к уравнениям (3.65) и (3.66), но также и к кинетическим уравнениям, которые будут рассматриваться в этой главе и использоваться на протяжении всего материала книги.

Оценим ошибку, которую мы допускаем в коэффициенте усиления $g(I)$, предполагая, что выражение (2.39) справедливо

для случая, когда все ориентации молекул равновероятны. В приложении 6 показано, что применение выражения (2.39) приводит к ошибке вследствие недооценки эффекта насыщения. Однако как для очень больших, так и для очень малых значений отношения $I/I_{нас}$, где $I_{нас}$ определяется из (3.37), величина ошибки стремится к нулю. Максимальная ошибка составляет около 30%; в большинстве случаев такая величина не играет существенной роли, поэтому в дальнейшем



Фиг. 3.16. Рост или уменьшение интенсивности с расстоянием в лазере бегущей волны.

Кривые I—III соответствуют областям высокого, среднего и низкого значений коэффициента усиления соответственно. В области I усиление на единицу длины, обусловленное обратной населенностью, превосходит потери на единицу длины, что обеспечивает усиление входного пучка. В области II коэффициент усиления не настолько высок, чтобы вызвать постоянное усиление, но достаточен, чтобы компенсировать потери при определенном уровне интенсивности, что ведет к незатухающему распространению. В области III коэффициент усиления недостаточен для компенсации потерь на любом уровне, и поэтому интенсивность входного сигнала уменьшается до нуля.

мы будем пользоваться выражением (2.39). В случае необходимости можно ввести в коэффициент усиления поправочный фактор, определяемый отношением уравнений (П6.2) и (П6.1), приведенных в приложении 6.

Точное решение уравнения (3.67) можно получить методом разделения переменных (см. задачу 3.14), однако попытаемся изучить это уравнение с качественной стороны. Представляют интерес три области, определяемые значением коэффициента усиления γ_0 .

1. Область I, большое усиление; $\gamma_0 > \mathcal{A}$. В этой области полный коэффициент усиления $g(I)$, введенный в выражении (3.67), является положительной величиной в плоскости $z = 0$, поэтому величина I начинает возрастать экспоненциально с расстоянием. Однако по мере увеличения I первый член выражения в скобках в (3.67) уменьшается (так как у него I входит в знаменатель) до тех пор, пока оба члена не станут равны друг другу. В результате прекращается возрастание интенсивности волны с расстоянием, поскольку усиление на единице длины компенсирует потери на том же отрезке, как показано на фиг. 3.16.

Предельное значение I , обозначаемое $I(\infty)$, получим из (3.67), используя условие $g(I) = 0$:

$$I(\infty) = \frac{\gamma_0}{\mathcal{A}} [I(0) + I_{\text{нас}}] - I_{\text{нас}}. \quad (3.69)$$

2. Область II, среднее усиление; $\mathcal{A} < \gamma_0 < \mathcal{A}I_{\text{нас}}/[I(0) + I_{\text{нас}}]$. В этой области полный коэффициент усиления $g(I)$ вначале отрицателен в плоскости $z = 0$, поэтому величина I экспоненциально уменьшается. Уменьшение величины I в знаменателе первого члена выражения в скобках (3.67) ведет к увеличению коэффициента усиления до величины, определяющей компенсацию потерь, и волна без затухания распространяется через среду с интенсивностью, определяемой из (3.69). Такая ситуация также показана на фиг. 3.16.

3. Область III, малое усиление; $\gamma_0 < \mathcal{A}I_{\text{нас}}/[I(0) + I_{\text{нас}}]$. В этой области волна начинает затухать, так же как и в области II, однако коэффициент усиления $g(I)$ остается все время отрицательным, и величина I спадает до нуля, так как первый член в $g(I)$ никогда не может стать достаточно большим, чтобы скомпенсировать второй член.

2. Усиление в резонаторе

Лазерный усилитель бегущей волны может служить примером стационарного во времени, но изменяющегося в пространстве решения уравнений электрического дипольного перехода. С другой стороны, усиление в мазере или лазере с резонатором описывается решениями, нестационарными во времени и имеющими вид пространственных стоячих волн. Для изотропной среды соответствующие уравнения можно получить из (3.1) — (3.3):

$$\begin{aligned} \ddot{\mathbf{P}} + \frac{2}{T_2} \dot{\mathbf{P}} + \Omega^2 \mathbf{P} &= - \frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{\hbar} N \mathbf{E}, \\ \dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} &= \frac{2}{\hbar\Omega} \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}, \\ \ddot{\mathbf{E}} + \frac{1}{\tau_c} \dot{\mathbf{E}} + \omega_c^2 \mathbf{E} &= - \frac{1}{\epsilon} \ddot{\mathbf{P}}. \end{aligned} \quad (3.70)$$

Здесь мы предполагаем, что поляризация, зависящая от поля резонатора, имеет такое же пространственное распределение, как и нормальная мода поля резонатора, так что интеграл в правой части уравнения (3.3б) можно опустить, а N обозначает разность $N_2 - N_1$.

Прежде чем начать исследование нестационарного решения, заметим, что уравнения (3.70) описывают совместно два осциллятора: один — поляризационный осциллятор, имеющий

частоту Ω , и другой — осциллятор поля в резонаторе, имеющий частоту ω_c . Поэтому когда резонансная частота перехода Ω и частота резонатора ω_c не равны точно друг другу, связанная система из двух осцилляторов колеблется с некоторой промежуточной частотой ω , т.е. происходит затягивание частоты. Частоту колебаний системы можно найти из стационарных решений.

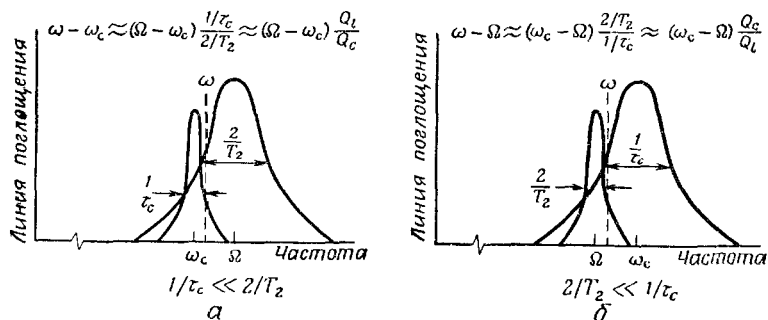
Предположим, что решения имеют вид

$$\dot{\mathbf{P}} = \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{P}} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.},$$

подобное же выражение справедливо для \mathbf{E} . Из уравнения для поляризации и уравнения поля в резонаторе получаем

$$\begin{aligned} [(\omega^2 - \Omega^2)(\omega^2 - \omega_c^2) - \frac{2\omega^2}{T_2\tau_c}] + i \left[\frac{\omega}{\tau_c} (\omega^2 - \Omega^2) + \frac{2\omega}{T_2} (\omega^2 - \omega_c^2) \right] = \\ = \frac{2\Omega}{h} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} \frac{\omega^2}{\epsilon} N. \end{aligned}$$

Здесь N — стационарное значение инверсной разности населенностей в единице объема. Поскольку N — вещественная величина



Фиг. 3.17. Эффекты затягивания частоты для случаев, когда ширины полосы молекулы и резонатора существенно различны.

Случай, представленный на фиг. 3.17, а, обычно применим к лазеру, в то время как случай б применим к резонансному лазеру на аммиаке, обсуждаемому в гл. 4. Затянутая частота генерации ω лежит ближе к более узкой из двух линий. Величины Q_l и Q_c — добротности соответственно для молекулы и для резонатора, определяемые выражениями $Q_l = \Omega T_2/2$ и $Q_c = \omega_c \tau_c$.

личина, мнимая часть должна быть равна нулю. Это приводит к результатам, показанным на фиг. 3.17. Из графиков видно, что частота колебаний системы ω затягивается, приближаясь к частоте, соответствующей наиболее узкой линии.

В связи с этим случай, изображенный на фиг. 3.17, б и характерный для резонаторного мазера на аммиаке, представляет собой хороший пример стандарта частоты, поскольку частота

определяется скорее молекулярным резонансом, чем свойствами резонатора. Этого нельзя сказать про случай, изображенный на фиг. 3.17, а.

Чтобы исследовать переходные процессы, предположим, что поляризация и электрическое поле изменяются следующим образом:

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{P}}(t) e^{i\Omega t} + \text{компл. сопр.}, \\ \mathbf{E} &= \frac{1}{2} \tilde{\mathbf{E}}(t) e^{i\Omega t} + \text{компл. сопр.} \end{aligned} \quad (3.71)$$

Здесь $\tilde{\mathbf{P}}(t)$ и $\tilde{\mathbf{E}}(t)$ — медленно меняющиеся комплексные амплитуды, Ω — частота диапазона СВЧ или оптического диапазона, а фаза поляризации или электрического поля учтена в комплексной амплитуде. Предположим, что резонатор настроен на частоту перехода, так что $\omega_c = \Omega = \omega$. Дифференцируя (3.71) по времени, подставляя затем результат в уравнения (3.70) и приравнивая коэффициенты у членов, содержащих $e^{i\Omega t}$, находим

$$\dot{\tilde{\mathbf{P}}} + \frac{1}{T_2} \tilde{\mathbf{P}} = \frac{i}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N \tilde{\mathbf{E}} \quad (3.72)$$

и

$$\dot{\tilde{\mathbf{E}}} + \frac{1}{2\tau_c} \tilde{\mathbf{E}} = -\frac{i\Omega}{2\epsilon} \tilde{\mathbf{P}}. \quad (3.73)$$

Уравнение для медленно меняющихся компонент разности населенностей в единице объема N можно получить, приравняв члены нулевой частоты. Это дает

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = \frac{i}{2\hbar} (\tilde{\mathbf{P}} \cdot \tilde{\mathbf{E}}^* - \tilde{\mathbf{P}}^* \cdot \tilde{\mathbf{E}}). \quad (3.74)$$

При выводе упомянутых выше уравнений мы предполагали, что ширина линии молекулярного резонанса и ширина линии резонатора удовлетворяют условиям $2/T_2 \ll \Omega$ и $1/\tau_c \ll \Omega$. Использовались также условия $\dot{\tilde{\mathbf{P}}} \ll \Omega \tilde{\mathbf{P}}$ и $\dot{\tilde{\mathbf{E}}} \ll \Omega \tilde{\mathbf{E}}$, поскольку предполагалось, что комплексные амплитуды медленно меняются по сравнению с частотой колебаний. Кроме того, мы пренебрегали наличием высокочастотных членов у разности населенностей.

Уравнения (3.72) — (3.74) составляют систему взаимосвязанных амплитудных уравнений, учитывающих медленные изменения амплитуд поляризации и электрического поля и разности населенностей. Как и для случая лазера бегущей волны, возможно дальнейшее упрощение, если отказаться от желания получить фазовую информацию о поле.

3. Лазер с резонатором

Прежде всего займемся рассмотрением значений параметров, характерных для лазеров с резонатором. В таких лазерах ширина молекулярной или атомной линии $2/T_2$ обычно значительно больше ширины резонансной кривой резонатора $1/\tau_c$. Это позволяет считать $\partial/\partial t \ll 2/T_2$, в чем можно убедиться из (3.72) и (3.73), вычисляя постоянную времени объединенных уравнений в предположении, что N — существенно постоянная величина. При этом условии в выражении (3.72) можно пренебречь $\dot{\tilde{P}}$ по сравнению с \tilde{P}/T_2 и получить следующие уравнения:

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = - \frac{T_2}{\hbar^2} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N |\tilde{E}|^2, \quad (3.75)$$

$$|\dot{\tilde{E}}|^2 + \frac{1}{\tau_c} |\tilde{E}|^2 = \frac{\Omega T_2}{\hbar \epsilon} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N |\tilde{E}|^2. \quad (3.76)$$

Величина $|\tilde{E}|^2$ пропорциональна усредненной по времени плотности энергии в поле резонатора.

Если воспользоваться подстановкой

$$\Phi \equiv \frac{\epsilon |\tilde{E}|^2}{2\hbar\Omega}, \quad (3.77)$$

то уравнения (3.75) и (3.76) можно представить в виде

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = - \frac{2\Omega T_2}{\hbar \epsilon} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N \Phi, \quad (3.78)$$

$$\dot{\Phi} + \frac{\Phi}{\tau_c} = \frac{\Omega T_2}{\hbar \epsilon} L \frac{|\mu_{42}|^2}{3} N \Phi. \quad (3.79)$$

Величина Φ пропорциональна плотности электромагнитной энергии (энергии в единице объема) и связана с пространственным изменением характеристик распределения, соответствующих моде резонатора. Переменную Φ иногда неточно называют плотностью фотонов, поскольку для отдельной моды интеграл от $\Phi = \epsilon |\tilde{E}|^2 / 2\hbar\Omega$ по объему резонатора определяет число фотонов в моде при рассмотрении квантования поля. Однако это приводит к заблуждениям, так как Φ по существу является классической величиной с определенными пространственными изменениями, в частности она имеет узлы и пучности через четверть длины волны. Не совсем корректно полагать, что фотоны собираются в пучностях, так как законы квантовой механики на основании принципа неопределенности не допускают локализации отдельных фотонов внутри области пространства, меньшей чем длина волны [14].

Уравнения (3.78) и (3.79) называются кинетическими, или скоростными, уравнениями, поскольку они определяют ско-

рости обмена энергией между полем в резонаторе и средой. Так же, как в случае усиления бегущей волны, кинетические уравнения (3.78) и (3.79) отличаются от амплитудных уравнений (3.72) — (3.74) тем, что в них отсутствует фазовая информация о полях.

Чтобы облегчить применение упомянутых выше кинетических уравнений, удобно нормировать переменные к стационарным значениям, введя $\bar{N} = N/N_0$, $\bar{\varphi} = \varphi/\varphi_0$, где индекс 0 обозначает стационарные значения, получаемые приравнением нулю временных производных в уравнениях (3.78) и (3.79). Стационарные значения при отличной от нуля плотности энергии равны

$$N_0 = \frac{\hbar \epsilon}{\Omega \tau_c T_2 L (|\mu_{12}|^2/3)}, \quad (3.80)$$

$$\varphi_0 = \frac{\tau_c}{T_1} \frac{N_0}{2} (\bar{N}^e - 1). \quad (3.81)$$

В нормированных переменных уравнения (3.78) и (3.79) примут вид

$$\begin{aligned} \dot{\bar{N}} + \frac{\bar{N} - \bar{N}^e}{T_1} &= - \frac{\bar{N}^e - 1}{T_1} \bar{N} \bar{\varphi}, \\ \dot{\bar{\varphi}} + \frac{\bar{\varphi}}{\tau_c} &= \frac{1}{\tau_c} \bar{N} \bar{\varphi}. \end{aligned} \quad (3.82)$$

Можно легко убедиться, что значения $\bar{N} = \bar{\varphi} = 1$ соответствуют стационарным решениям, как это требуется условиями нормировки. Приведенные выше кинетические уравнения записаны в виде, в котором они наиболее широко используются в литературе, относящейся к анализу процессов в лазерах [15]. Эти уравнения будут взяты за основу при анализе процессов в лазере, приведенном в гл. 4, где они обсуждаются более подробно.

4. Мазер с резонатором

Приступим теперь к изучению амплитудных уравнений (3.72) — (3.74), выраженных через параметры, характерные, например, для резонаторного мазера на аммиаке. В противоположность лазеру здесь ширина молекулярной линии и ширина полосы резонатора поменялись ролями, поскольку ширина полосы резонатора превышает ширину молекулярной линии, т. е. $2/T_2 \ll 1/\tau_c$. Это позволяет считать, что $d/dt \ll 1/\tau_c$, и поэтому членом \dot{E} в выражении (3.73) можно пренебречь. Для резонансного случая амплитудные уравнения примут вид

$$\begin{aligned} \dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} &= - \frac{2}{\tau_c} \Phi, \\ \dot{\Phi} + \frac{2}{T_2} \Phi &= \frac{2\Omega \tau_c}{\hbar \epsilon} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} N \Phi. \end{aligned}$$

Нормируя эти уравнения таким же образом, как и в предыдущем разделе, получаем

$$\begin{aligned} \dot{\bar{N}} + \frac{\bar{N} - \bar{N}^e}{T_1} &= -\frac{\bar{N}^e - 1}{T_1} \bar{\Phi}, \\ \dot{\bar{\Phi}} + \frac{2}{T_2} \bar{\Phi} &= \frac{2}{T_2} \bar{N} \bar{\Phi}. \end{aligned} \quad (3.83)$$

Здесь нормировочные константы (т. е. стационарные значения) идентичны нормировочным величинам, соответствующим случаю лазера с резонатором [уравнения (3.80) и (3.81)]. Опять получаем, что значения $\bar{N} = \bar{\Phi} = 1$ соответствуют стационарному решению.

Кинетические уравнения для лазера отличаются от кинетических уравнений для лазера в двух отношениях. Во-первых, уравнение для плотности энергии в поле резонатора зависит теперь уже от молекулярной постоянной времени T_2 , а не от времени затухания энергии в резонаторе τ . Во-вторых, член, соответствующий вынуждающей силе в правой части уравнения для разности населенностей (3.83), пропорционален просто $\bar{\Phi}$, а не произведению $\bar{N}\bar{\Phi}$, как в лазере. Кинетические уравнения, записанные в таком виде, соответствуют принципу поля реакции, использованному Андерсоном при рассмотрении магнитного резонансного усилителя [16]. Подобным же методом они были получены Тангом [17]. Эти уравнения могут служить отправным пунктом при рассмотрении переходных процессов в резонаторном лазере на аммиаке [18].

5. Вероятность перехода

Уравнение (3.75), являющееся кинетическим уравнением для инверсной разности населенностей в единице объема лазера, можно записать в следующем виде:

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} + \frac{N_2 - N_2^e}{T_1} = -W N_2 + W N_1, \quad (3.84a)$$

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} + \frac{N_1 - N_1^e}{T_1} = W N_2 - W N_1. \quad (3.84b)$$

Здесь

$$W = \left(\frac{T_2}{2}\right) \left(\frac{L (|\mu_{12}|^2/3) |\tilde{\mathbf{E}}|^2}{\hbar^2}\right). \quad (3.85)$$

Чтобы перейти от (3.75) к (3.84), достаточно применить лишь условие сохранения числа частиц $N_1 + N_2 = N_V$. Здесь N_V — число атомов в единице объема. При выводе уравнений (3.84a) и (3.84b) предполагалось, что внешнее поле имеет точно резонансную частоту, т. е. $\omega = \Omega$. В общем случае при нерезонансных полях величина T_2 в выражении (3.85) должна заменяться на $\text{pg}(\omega, \Omega)$, где $g(\omega, \Omega)$ — функция формы линии.

Первый член в левой части уравнения (3.84а) или (3.84б) несет информацию о чистых изменениях населенности уровня; второй член отвечает за безызлучательные взаимодействия с окружающей средой; члены, стоящие в правой части, характеризуют изменения населенности на уровне, обусловленные взаимодействием с полем.

Вид уравнений допускает считать величину W скоростью или вероятностью в единицу времени, с которой атом или молекула может переходить с одного уровня на другой под действием излучения. Вероятности перехода одного атома с нижнего уровня на верхний и с верхнего на нижний оказываются одинаковыми. Переход на верхний уровень соответствует процессу поглощения, а переход на нижний уровень — процессу вынужденного излучения.

Кинетические уравнения (3.78) и (3.79) для лазера с резонатором могут быть выражены через вероятность перехода следующим образом:

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = -2WN, \quad (3.86a)$$

$$\dot{\Phi} + \frac{\Phi}{\tau_c} = WN. \quad (3.86b)$$

Здесь вероятность перехода W введена для двухуровневого дипольного резонансного перехода. Концепция вероятности перехода в единицу времени имеет очень общий характер и будет обсуждаться в гл. 5 при рассмотрении нелинейных эффектов.

§ 5. ПАРАМАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС

Все явления, рассмотренные в предыдущих параграфах для электрического дипольного перехода, имеют свое отражение с небольшими изменениями для случая магнитного диполя со спином $1/2$. Не повторяя полностью всех выводов, начнем исследование с рассмотрения стационарных характеристик поглощения и дисперсии для перехода со спином $1/2$, как это делалось в случае электрического дипольного перехода.

Соответствующими уравнениями являются уравнения Блоха для среды (2.83) и уравнения для поля (2.87), выведенные в гл. 2:

$$\dot{M}_x + \frac{M_x}{T_2} = \gamma (\mathbf{B} \times \mathbf{M})_x, \quad (3.87)$$

$$\dot{M}_y + \frac{M_y}{T_2} = \gamma (\mathbf{B} \times \mathbf{M})_y, \quad (3.88)$$

$$\dot{M}_z + \frac{M_z - M_z^e}{T_1} = \gamma (\mathbf{B} \times \mathbf{M})_z, \quad (3.89)$$

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{B}) + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} = \mu_0 \nabla \times (\nabla \times \mathbf{M}). \quad (3.90)$$

Здесь для простоты в уравнении для поля мы пренебрегли членом, характеризующим потери. Если в направлении z прилагается статическое магнитное поле, а в плоскости, перпендикулярной направлению постоянного поля, прилагается переменное поле, то x - и y -компоненты намагниченности будут играть такую же роль, что и поляризация \mathbf{P} в случае электрического дипольного перехода, а z -компонента будет соответствовать разности населенностей. Для поперечной плоской волны, распространяющейся в направлении z , решения будем искать в виде

$$M_\alpha = \frac{1}{2} \tilde{M}_\alpha e^{i(\omega t - kz)} + \text{компл. сопр.} \quad (\alpha = x, y),$$

$$M_z = M_z^e.$$

Уравнения (3.87) и (3.88) для поперечных компонент намагниченности сводятся к

$$\left(i\omega + \frac{1}{T_2}\right) \tilde{M}_x + \Omega \tilde{M}_y = \gamma \mu_0 M_z^e \tilde{H}_y, \quad (3.91)$$

$$-\left(i\omega + \frac{1}{T_2}\right) \tilde{M}_y + \Omega \tilde{M}_x = \gamma \mu_0 M_z^e \tilde{H}_x. \quad (3.92)$$

Здесь учтено то, что статическая z -компонента магнитного поля определяет угловую частоту перехода $\Omega = \gamma B_{0z}$. При выводе уравнений (3.91) и (3.92) было использовано также соотношение (2.86)

$$\mathbf{B} = \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M}). \quad (3.93)$$

Намагниченность удобно выражать через компоненты с круговой поляризацией в виде

$$\mathbf{M} = \frac{1}{2} \tilde{M}_+ (\mathbf{1}_x - i\mathbf{1}_y) e^{i(\omega t - k_+ z)} + \frac{1}{2} \tilde{M}_- (\mathbf{1}_x + i\mathbf{1}_y) e^{i(\omega t - k_- z)} + \text{компл. сопр.},$$

где

$$\tilde{M}_+ = \frac{1}{2} (\tilde{M}_x + i\tilde{M}_y),$$

$$\tilde{M}_- = \frac{1}{2} (\tilde{M}_x - i\tilde{M}_y).$$

Аналогично можно записать и H . Комбинируя уравнения (3.91) и (3.92), получаем выражение для магнитной восприимчивости в случае волны с круговой поляризацией

$$\chi_+(\omega) = \frac{\tilde{M}_+}{\tilde{H}_+} = \pi \gamma \mu_0 M_z^e \tilde{g}_L(\omega, \Omega). \quad (3.94)$$

Здесь $\tilde{g}_L(\omega, \Omega)$ — комплексная лоренцева функция, определяемая выражением (3.7). Как и в случае электрического диполь-

ного перехода, восприимчивость содержит вещественную и мнимую части:

$$\chi_+(\omega) = \chi'_+(\omega) + i\chi''_+(\omega). \quad (3.95)$$

Вещественная и мнимая части описывают соответственно дисперсионные и поглощательные свойства перехода.

Из волнового уравнения (3.90) можно получить выражение, связывающее k_+ и $\chi_+(\omega)$, аналогичное выражению (3.11а) для электрического дипольного перехода:

$$k_+^2 = \frac{\eta^2 \omega^2}{c^2} [1 + \chi_+(\omega)]. \quad (3.96)$$

В случае, когда $\chi_+ \ll 1$, используя разложение в ряд квадратного корня $\sqrt{1 + \chi_+} \approx 1 + \chi_+/2$, имеем

$$k_+ = k'_+ + ik''_+ \approx \frac{\eta\omega}{c} \left[1 + \frac{\chi'_+(\omega)}{2} \right] + i \frac{\omega\chi''_+(\omega)}{2c}.$$

Как и для электрического дипольного перехода, коэффициент поглощения определяется выражением $\Gamma_+ = -2k''_+$. При $\omega \approx \Omega$ из (3.94) получаем

$$\Gamma_+ = \frac{\eta\pi\gamma^2\mu_0\hbar\Omega}{2c} (N_2 - N_1)^e g_L(\omega, \Omega). \quad (3.97)$$

Здесь $g_L(\omega, \Omega)$ — лоренцева функция формы линии, определяемая из выражения (3.14), $(N_2 - N_1)$ — разность населенностей в единице объема (для перехода со спином $1/2$ уровень 2 соответствует нижнему энергетическому состоянию), а чтобы исключить M_z^e , использовалось выражение, аналогичное (2.82). Поглощение волны с круговой поляризацией $H_+ = H_x + iH_y$ происходит наиболее интенсивно вблизи частоты перехода Ω .

Если приведенное выше рассмотрение применить для восприимчивости, связанной с другими компонентами поля с круговой поляризацией $\chi_-(\omega) = \bar{M}_-/\bar{H}_-$, то можно показать, что разность $(\Omega - \omega)$, входящая в знаменатель выражения (3.94), должна быть заменена суммой $(\Omega + \omega)$, что указывает на невозможность резонансного взаимодействия с компонентой поля H_- при рассмотренных условиях распространения. Поэтому если линейно поляризованная волна с частотой $\omega \approx \Omega$ падает на среду, то одна из двух поляризованных по кругу компонент, имеющих противоположные направления вращения, будет близка к резонансу, а другая далека от резонанса, что приводит к селективному поглощению одной из компонент с круговой поляризацией.

Приведенное выше рассмотрение стационарных свойств перехода со спином $1/2$ дает представление о том, как методику, развитую для случая электрического дипольного перехода, можно

распространить на системы со спином $1/2$. Исследование явлений насыщения и вывод кинетических уравнений могут быть проведены так же, как и для случая электрического дипольного перехода.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Hippel A.*, Dielectrics and Waves, MIT, Cambridge, Mass., 1954. (См. перевод: *А. Хуннель*, Диэлектрики и волны, ИЛ, 1966.)
2. *Townes C. H., Schawlow A. L.*, Microwave Spectroscopy, New York, 1955.
3. *Townes C. H.*, The Ammonia Spectrum and Line Shapes near 1,15-cm Wavelength, Phys. Rev., **70**, 665 (1946).
4. *Slater J. C.*, Quantum Theory of Atomic Structure, New York, 1960.
5. *Portis A. M.*, Electronic Structure of F Centers: Saturation of the Electron Spin Resonance, Phys. Rev., **91**, 1071 (1953).
6. *Lengyel B. A.*, Introduction to Laser Physics, New York, 1966.
7. Handbook of Mathematical Functions (ed. M. Abramowitz and I. Stegun), National Bureau of Standards Applied Mathematics Series 55, 2nd Printing, November 1964.
8. *Messiah A.*, Quantum Mechanics, vol. 1, Amsterdam, 1961.
9. *Siegman A. E., Allen J. W.*, Pump Power Dependence of Ruby Laser Starting and Stopping Time, IEEE Journ. Quant. Elect., **QE-1**, 386 (1965).
10. *Bloembergen N.*, Nonlinear Optics (ed. W. A. Benjamin), New York, 1965. (См. перевод: *Н. Бломберген*, Нелинейная оптика, изд-во «Мир», 1966.)
11. *Nye J. F.*, Physical Properties of Crystals, Oxford, 1957.
12. *Kittel C.*, Introduction to Solid-State Physics, New York, 1966. (См. перевод: *Ч. Киттель*, Введение в физику твердого тела, Физматгиз, 1963.)
13. *Franken P. A., Ward J. E.*, Optical Harmonics and Nonlinear Phenomena, Rev. Mod. Phys., **35**, 23 (1963).
14. *Bohm D.*, Quantum Theory, Englewood Cliffs, N. J., 1963. (См. перевод: *Д. Бом*, Квантовая теория, изд-во «Наука», 1965.)
15. *Statz H., deMars G. A.*, Quantum Electronics, (ed. C. H. Townes), New York, 1960.
16. *Anderson P. W.*, The Reaction Field and Its Use in Some Solid-State Amplifiers, Journ. Appl. Phys., **28**, 1049 (1957).
17. *Tang C. L.*, On Maser Rate Equations and Transient Oscillations, Journ. Appl. Phys., **34**, 2935 (1963).
18. *Jaynes E. T., Cummings F. W.*, Comparison of Quantum and Semiclassical Radiation Theories with Application to the Beam Maser, Proc. IEEE, **51**, 89 (1963).

Задачи

3.1. Пусть поток из R частиц через единицу площади в единицу времени падает на пластину толщиной Δx и площадью A .

а) Предполагая, что имеется N_V мишеней в единице объема, каждая из которых обладает эффективной тормозящей площадью или эффективным сечением σ_e , вывести выражение для числа частиц ΔR , поглощенных на единице площади пластины в единицу времени.

б) Если частицами являются фотоны с энергией $\hbar\omega$, то найти мощность \mathcal{P} , поглощаемую в единице объема, выразив ее через поперечное сечение σ_e и мощность I , приходящуюся на единицу площади.

в) Вывести экспоненциальный закон затухания и определить коэффициент поглощения Γ , выразив его через эффективное сечение σ_e .

3.2. Вывести выражение (3.17) для эффективного сечения рассеяния для классического гармонического осциллятора.

3.3. Вывести выражение (3.20).

3.4. Получить правило сумм для электрического квадрупольного оператора xy . Доказать, что

$$[xy, [\mathcal{H}_0, xy]] = \frac{\hbar^2}{m} (x^2 + y^2),$$

где $\mathcal{H}_0 = (p^2/2m) + \mathcal{V}$. Из этого равенства получить правило сумм.

3.5. Описать эксперимент для определения T_1 , используя эффект насыщения. Дать соответствующие формулы для вычисления T_1 .

3.6. На основании фиг. 3.7 и уравнения (3.31) построить график χ' для гауссовой линии.

3.7. Показать, что $A^t = A^{-1}$ для оператора вращения.

3.8. Пьезоэлектрический тензор связывает поляризацию P_α с тензором напряжений $\sigma_{\beta\gamma}$:

$$P_\alpha = d_{\alpha\beta\gamma} \sigma_{\beta\gamma}.$$

Коэффициент $d_{\alpha\beta\gamma}$ является тензором третьего ранга, у которого $d_{\alpha\beta\gamma} = d_{\alpha\gamma\beta}$. Определить соотношения между компонентами пьезоэлектрического тензора, если среда имеет симметрию $\bar{4}$ относительно оси z .

3.9. Излучение падает на среду, имеющую лоренцеву линию с частотой Ω и шириной $2/T_2$. Для излучения, имеющего гауссово распределение энергии с полосой $\Delta\omega_G$, определить характеристики поглощения, когда

$$\text{а) } \Delta\omega_G \ll \frac{2}{T_2},$$

$$\text{б) } \Delta\omega_G \gg \frac{2}{T_2}.$$

3.10. Написать выражение для дифференциала свободной энергии Гельмгольца для поляризуемой среды в электромагнитном поле. (Функция Гельмгольца определена в любом вводном курсе по термодинамике.) Поскольку эта величина является

полным дифференциалом, показать, что тензор восприимчивости симметричен.

3.11. Показать, что всегда возможно привести к диагональному виду вещественный симметричный тензор второго ранга.

3.12. Найти главные оси для тензора восприимчивости моноклинного кристалла, указанного в табл. 3.2.

3.13. Переписать выражение (3.38) для случая, когда уровни являются вырожденными. Если уровни вырождены, то большая или меньшая мощность требуется для насыщения перехода?

3.14. Статическое магнитное поле величиной 3000 вб/м^2 приложено к парамагнитному материалу в положительном направлении оси z . Высокочастотное магнитное поле, распространяющееся в положительном направлении оси z , имеет частоту резонанса в системе со спином $1/2$. Это поле линейно поляризовано.

Значения параметров следующие:

ширина резонансной линии = 1 Мгц

$$\eta = 1, \quad \gamma = \frac{e}{m}, \quad T = 300^\circ \text{К},$$

$$N_V = 10^{22} \text{ электрон/см}^3,$$

$$l = \text{длина образца} = 10 \text{ см}.$$

Линейно поляризованную волну можно рассматривать как сумму двух волн, поляризованных по кругу.

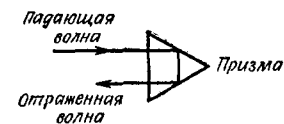
а) Какое из направлений круговой поляризации поглощается?

б) Каков коэффициент поглощения Γ для этой поляризации?

в) Каково отношение мощности выходящего излучения к мощности падающего излучения?

г) Какую поляризацию имеет выходящее излучение?

д) Если на дальнем конце поместить металлическое зеркало, то каков будет коэффициент поглощения для отраженной волны?



Фиг. 3.18.

е) Если волна отражается призмой, как показано на фиг. 3.18, то чему будет равен коэффициент поглощения для отраженной волны?

3.15. Возрастание интенсивности I с расстоянием в лазере бегущей волны определяется из нелинейного дифференциального уравнения (3.67).

а) Найти решение уравнения методом разделения переменных и показать, что оно имеет вид

$$\frac{z}{1/\mathcal{A}} = \frac{I_{\text{нас}}}{I(\infty)} \ln \left[\frac{I/[I - I(\infty)]}{I(0)/[I(0) - I(\infty)]} \right] - \ln \left(\frac{I - I(\infty)}{I(0) - I(\infty)} \right).$$

Здесь $I(0)$ — интенсивность в плоскости падения и $I(\infty)$ — ее асимптотическое значение, определяющее интенсивность на больших расстояниях.

б) Изобразить графически решение, подобно тому, как это сделано на фиг. 3.16, определяя асимптотические значения $I(\infty)/I_{\text{нас}}$ для следующих двух случаев:

$$1) \gamma_0 = 1,5\mathcal{A}, \quad \frac{I(0)}{I_{\text{нас}}} = \frac{1}{3},$$

$$2) \gamma_0 = \left(\frac{7}{8}\right)\mathcal{A}, \quad \frac{I(0)}{I_{\text{нас}}} = \frac{1}{3}.$$

Здесь γ_0 определяется из (3.68).

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из наиболее интересных и важных применений квантовой теории на практике является создание и дальнейшее совершенствование оптического квантового генератора, или лазера. Лазеры обладают свойством давать излучение в спектральном диапазоне от далекой инфракрасной области до ультрафиолетовой с пиковой мощностью в импульсе, достигающей гига watt, и непрерывной мощностью, превышающей сотни watt. С возникновением лазеров стало возможным получать сигналы очень высокой спектральной чистоты, со стабильностью частоты порядка 10^{-14} .

Основным условием для работы лазера является наличие среды с отрицательным поглощением, способной усиливать электромагнитное излучение. Этого можно достичь, имея дипольный переход, у которого населенность верхнего уровня больше населенности нижнего уровня, т. е. выполняется так называемое условие инверсии¹⁾.

Инверсия может быть получена различными методами, часть которых рассмотрена в § 2. Минимальная величина инверсной разности населенностей, при которой усиление электромагнитных волн превосходит потери в системе, определяет пороговые требования, рассматриваемые в § 3. Выходная мощность стационарного режима лазера и процесс установления колебаний рассматриваются в § 4 и 5. Чрезвычайно высокие пиковые мощности импульсов могут быть получены быстрым изменением потерь в резонаторе при так называемом режиме «модуляции добротности», о чем говорится в § 6.

В примерах, приведенных в § 3—6, используются характеристики рубина, так как у рубинового лазера процессы установления колебаний обладают интересными особенностями и он может работать в режиме модулированной добротности. Для сравнения различных типов оптических генераторов в двух последующих параграфах рассматриваются характеристики неодимового лазера и гелий-неонового газового лазера.

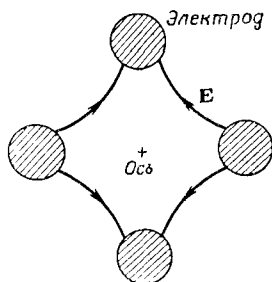
¹⁾ В дальнейшем отношении N_i/g_i будем называть населенностью состояния i в единице объема, где N_i — истинная населенность в единице объема, а g_i — кратность вырождения состояния.

Настоящая глава, посвященная лазерам, дает лишь основные понятия о них и не претендует на исчерпывающее изложение. Поэтому некоторые аспекты, касающиеся оптических генераторов, не будут обсуждаться, но для простоты рассмотрения будет сделан ряд приближений. В конце главы приведен список статей и книг, по которым можно более детально изучать лазеры.

§ 2. ИНВЕРСИЯ НАСЕЛЕННОСТЕЙ

В предыдущей главе было отмечено, что дипольный переход поглощает электромагнитное излучение, когда населенность нижнего уровня превышает населенность верхнего. Такое положение существует при тепловом равновесии. Если населенность верхнего уровня превышает населенность нижнего, то коэффициент поглощения Γ становится отрицательным и возникает усиление электромагнитной волны. Говорят, что переход, в котором населенность верхнего энергетического уровня больше, чем нижнего, имеет инверсию населенностей. В лазере, или оптическом мазере, инверсия населенностей существует между двумя уровнями с резонансной частотой перехода в инфракрасной или видимой части спектра, в то время как в мазере частота перехода соответствует СВЧ диапазону.

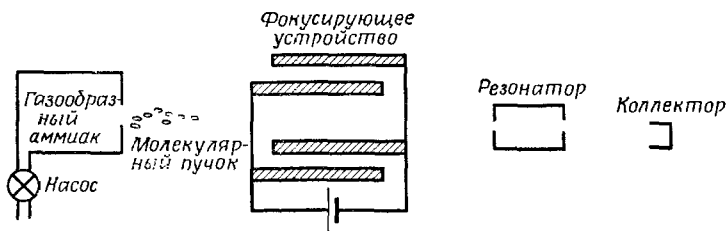
Для получения инверсии населенностей используется много различных методов. В 1954 г. был создан первый мазер [6], в котором инверсия населенностей достигалась путем пространственного разделения энергетических состояний молекул аммиака. На фиг. 4.1 представлено схематическое изображение четырехэлектродного устройства — квадрупольного конденсатора, используемого для сортировки молекул, при которой молекулы, находящиеся в верхнем состоянии, группируются вдоль оси, а молекулы, находящиеся в нижнем состоянии, отталкиваются от оси. Электрическое поле E вдоль оси равно нулю и возрастает с увеличением расстояния от оси. Статическое электрическое поле, приложенное к индуцированному дипольному переходу, изменяет энергию состояний молекул таким образом, что в области сильного поля энергия верхнего состояния увеличивается, а энергия нижнего — уменьшается. Силы, действующие на молекулу, стремятся уменьшить ее энергию так, что молекулы,



Фиг. 4.1. Квадрупольный конденсатор, используемый для разделения молекул аммиака, находящихся в верхнем и нижнем энергетических состояниях.

находящиеся в нижнем энергетическом состоянии, устремляются в область сильных полей, а молекулы, находящиеся в верхнем состоянии, стремятся в область слабых полей. В результате молекулы, находящиеся в верхнем состоянии, фокусируются вдоль оси, где поле равно нулю, а молекулы, находящиеся в нижнем состоянии, расходятся от оси системы.

На фиг. 4.2 показано, как осуществляется пространственное разделение состояний в конструкции генератора, работающего на основе использования инверсии населенностей. Газообразный аммиак выпускается через отверстие, и пучок молекул аммиака



Фиг. 4.2. Схематическая диаграмма мазера на аммиаке.
Резонатор настроен на частоту перехода $\sim 23,8$ Гц.

направляется вдоль оси квадрупольного конденсатора. Под действием упомянутых выше сил все молекулы, находящиеся в непосредственной близости от оси, покидают квадрупольный конденсатор, оставаясь в верхнем энергетическом состоянии. Время пребывания молекул в возбужденном состоянии значительно больше времени пролета их от квадрупольного конденсатора до резонатора. В результате почти каждая молекула, попадающая в резонатор, находится в верхнем энергетическом состоянии. Если резонатор настроен на частоту дипольного перехода, равную примерно $23,8$ Гц, электромагнитное излучение в резонаторе будет усиливаться благодаря инверсии населенностей молекулярного пучка. Когда усиление становится равным величине потерь в полости резонатора или превышает ее, возникают незатухающие колебания. Следовательно, имеются пороговые условия для существования колебаний, а именно необходимо, чтобы усиление колебаний, осуществляемое молекулярной системой, компенсировало потери в резонаторе. Более детальное рассмотрение пороговых требований для существования колебаний будет проведено в § 3.

Метод пространственного разделения энергетических состояний, используемый в газовом мазере на молекулах аммиака, неприменим к жидкостям или твердым телам. Однако характерные особенности мазеров на молекулах аммиака яв-

ляются общими для всех мазеров и лазеров. К этим особенностям относятся:

1) Механизм возбуждения. Он осуществляет инверсию населенностей. В мазере на молекулах аммиака эту роль выполняет квадрупольный конденсатор.

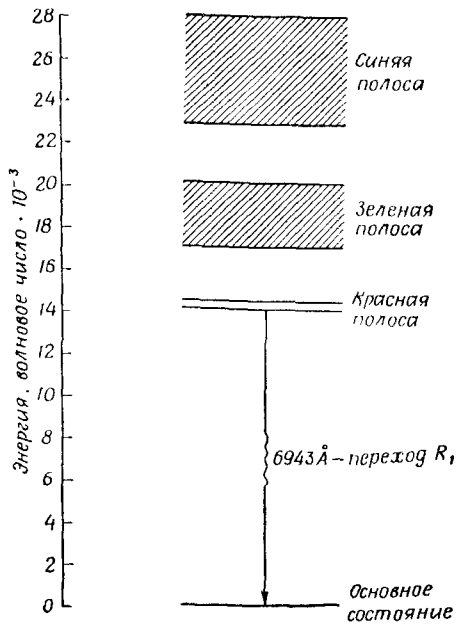
2) Активная среда. Это газ, жидкость или твердое тело, способные поддерживать инверсию населенностей. В мазере на молекулах аммиака — это пучок молекул аммиака.

3) Цепь вывода энергии. Электромагнитное излучение от активной среды выводится наружу с помощью этой цепи.

В инфракрасном и оптическом диапазонах обычно в качестве такой цепи применяется резонатор-интерферометр, а в мазере на аммиаке используется объемный резонатор.

Фиг. 4.3. Энергетические уровни Cr^{3+} в окиси алюминия (Al_2O_3).

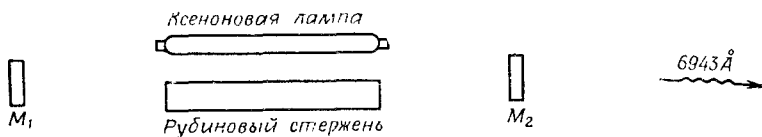
Обычно лазер работает на длине волны 6943Å , которая известна как R_1 -переход. Существует также переход R_2 с несколько большей энергией и длиной волны 6936Å . Справа на энергетической диаграмме показаны цвета, соответствующие различным энергиям. Релаксация от зеленой и синей полос к уровням R происходит за счет возбуждения колебаний решетки, а не за счет излучения фотонов.



В 1958 г. была предложена конструкция оптического мазера [7], а в 1960 г. был создан первый лазер [8]. Это был импульсный рубиновый лазер, в котором активными ионами являлись ионы хрома в кристаллической решетке окиси алюминия. Инверсия населенностей ионов хрома Cr^{3+} достигалась с помощью оптической накачки. В рубине происходит поглощение зеленого и голубого света в довольно широкой полосе частот и последующий переход возбужденных ионов в более низкое энергетическое состояние. Это более низкое энергетическое состояние, соответствующее красноволновому переходу в основное состояние, имеет большое время релаксации (метастабильное состояние), и возможно получить инверсию населенностей между этим возбужденным уровнем и основным состоянием. На фиг. 4.3 приведена энергетическая диаграмма для рубина. На диаграмме энергия обозначена в волновых числах

(см^{-1}). Волновое число — это величина, обратная длине волны перехода, выраженной в сантиметрах. Так как энергия равна $h\nu = hc \times$ (волновое число), то энергия, соответствующая единице волнового числа, составляет примерно $2 \cdot 10^{-16}$ эрг, $2 \cdot 10^{-23}$ дж, или $1,2 \cdot 10^{-4}$ эв.

В типовых конструкциях лазеров ксеноновая лампа накачки поджигается вблизи цилиндрического рубинового стержня. Энергия зеленой и голубой областей излучения лампы накачки (отмеченных на фиг. 4.3) поглощается, вызывая возбуждение ионов Cr^{3+} на соответствующие энергетические уровни. Время релаксации с верхних энергетических уровней на два уровня,



Фиг. 4.4. Схема рубинового лазера.

Оптическая накачка осуществляется с помощью ксеноновой лампы-вспышки; резонатор-интерферометр образован зеркалами M_1 и M_2 .

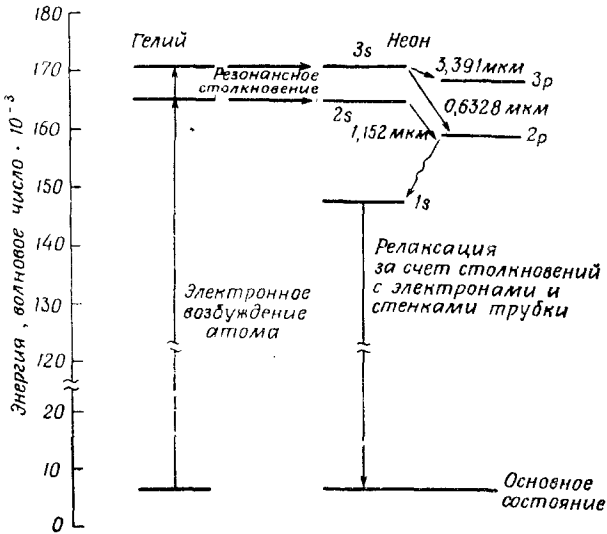
расположенные выше основного примерно на $15 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$, намного меньше времени релаксации с этих двух уровней в основное состояние. В результате этого на уровнях $15 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ происходит аккумуляция возбужденных ионов и создается инверсия населенностей между этими уровнями и основным состоянием. Излучение лазера с длиной волны около 6943 Å происходит обычно при R_1 -переходе в основное состояние.

На фиг. 4.4 показано устройство для получения инверсии населенностей в рубиновом стержне. В первой модели лазера резонатор образовывался между оптически плоскими и параллельными концами рубинового стержня, а в устройстве, показанном на фиг. 4.4, резонатор образуется между внешними зеркалами M_1 и M_2 . При этом по крайней мере одно из зеркал должно быть частично прозрачным для выхода лазерного излучения.

Как и в лазере на молекулах аммиака, колебания существуют, когда усиление за счет инверсии населенностей больше, чем затухание, обусловленное потерями в резонаторе. Механизм возбуждения состоит в оптической накачке от ксеноновой лампы; рубин — активная среда, а цепью вывода энергии является резонатор-интерферометр.

Первые лазеры непрерывного действия были получены в 1961 г. [9] на смеси двух газов — гелия и неона, в которой поддерживался газовый разряд, вызывающий появление свободных электронов и ионов. Соударения между электронами и атомами гелия приводят к возбуждению части атомов гелия и

переходу их в метастабильное энергетическое состояние, расположенное на $165 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ выше основного. Атомы неона имеют возбужденное состояние, лежащее чуть меньше, чем на $165 \cdot 10^3 \text{ см}^{-1}$ выше основного состояния. Поэтому при соударениях возбужденные атомы гелия передают свою энергию атомам неона, а небольшая разница в энергии между уровнями



Фиг. 4.5. Энергетическая диаграмма для процессов резонансного столкновения в смеси гелий — неон.

Хотя возбужденные уровни неона показаны как единичные состояния, в действительности каждое состояние представляет собой набор близко расположенных энергетических уровней [4]. Для обозначения состояний неона используются обозначения Пашена. На диаграмме иллюстрируется действие трех наиболее известных лазеров с длиной волны излучения 0,6328, 1,152 и 3,391 мкм.

атомов гелия и неона переходит в кинетическую энергию атомов. Этот процесс известен как процесс резонансного соударения. Между возбужденными уровнями атомов неона и уровнями, соответствующими более низким энергетическим состояниям, возникает инверсия населенностей, и в связи с этим излучение лазера может возникать как в инфракрасной, так и в красной областях спектра.

На фиг. 4.5 приведена энергетическая диаграмма, иллюстрирующая процесс резонансного соударения в смеси газов неона и гелия. Уровни атомов неона, обозначенные 3s и 2s на фиг. 4.5, населены благодаря процессу резонансного соударения, а уровни 2p и 3p при комнатной температуре почти не населены. Поэтому может возникнуть инверсия населенностей между состояниями 2s и 2p, 3s и 2p и 3s и 3p. Обычно на этих

переходах получают излучение с длинами волн соответственно 3,391, 1,152 и 0,6328 *мкм*. Релаксация из 1s-состояния в основное определяется главным образом соударениями возбужденных атомов с электронами и со стенками трубки, в которой осуществляется разряд. Излучения на длинах волн 3,391 и 0,6328 *мкм* конкурируют друг с другом, поскольку в процессе излучения волн той и другой длины истощается населенность одного и того же уровня 3s.

Характерными особенностями гелий-неоновых лазеров являются механизм возбуждения, состоящий в процессе резонансного соударения; наличие активной среды, роль которой играет газ неон; наличие цепи вывода энергии, роль которой играет резонатор-интерферометр.

Выше были рассмотрены три метода получения инверсии населенностей. Однако существуют и другие, которые используются в некоторых типах лазеров. Оптические колебания в инертных газах, таких, как аргон, возникают в разряде в результате переходов ионов аргона на метастабильный уровень при соударении со свободными электронами. Лазерное излучение на полупроводниках, таких, как арсенид галлия, может быть получено путем инжекции электронов в зону проводимости. Это создает инверсию населенностей между нижним краем зоны проводимости и верхним краем валентной зоны или между зоной проводимости и уровнями примесей, находящимися в непосредственной близости к верхнему краю валентной зоны. На основе процесса резонансного соударения можно создать инверсию населенностей между колебательными и вращательными уровнями молекул и получать излучение в инфракрасной области спектра. На этом принципе основана работа лазера на углекислом газе (CO_2). Такие лазеры наиболее эффективны и обладают высокой средней мощностью излучения. Более детальное рассмотрение механизмов возбуждения и дополнительных путей получения инверсии населенностей дано в гл. 10 книги Бирнбаума [1].

Условия, обеспечивающие инверсную населенность, еще недостаточны для возникновения оптических колебаний в резонаторе. Инверсия населенностей должна быть достаточно большой, чтобы перекрывать потери в резонаторе. Это приводит к пороговым условиям для значений минимальной населенности и мощности накачки для возникновения колебаний, которые будут рассмотрены в следующем параграфе.

§ 3. ПОРОГ ГЕНЕРАЦИИ

Чтобы количественно изучить пороговые условия, рассмотрим дипольный переход, подвергающийся воздействию возбуждения, так что населенность верхнего состояния превышает

населенность нижнего в отсутствие излучения на частоте перехода. Для анализа воспользуемся нормированными кинетическими уравнениями в том виде, в каком они были приведены в предыдущей главе, с условием, что нормированная разность равновесных населенностей в единице объема \bar{N}^e берется положительной. Положительное значение \bar{N}^e может быть связано с одним из методов получения инверсии населенностей, описанных в § 2. Нормированные кинетические уравнения для случая $2/T_2 \gg 1/\tau_c$, согласно (3.82), запишутся в виде

$$\dot{\bar{N}} + \frac{\bar{N} - \bar{N}^e}{T_1} = \frac{1 - \bar{N}^e}{T_1} \bar{N} \bar{\Phi}, \quad (4.1)$$

$$\dot{\bar{\Phi}} + \frac{\bar{\Phi}}{\tau_c} = \frac{1}{\tau_c} \bar{N} \bar{\Phi}. \quad (4.2)$$

Здесь \bar{N} — нормированная разность населенностей в единице объема, $\hbar\Omega\bar{\Phi}$ — нормированная плотность энергии и τ_c — время релаксации электромагнитной энергии. Величина T_1 — время жизни возбужденных состояний при наличии источника возбуждения, и нет необходимости считать это время равным времени жизни в отсутствие источника возбуждения. Зависимость T_1 от энергий накачки рассматривается в задаче 4.3, приведенной в конце этой главы.

Уравнения (4.1) и (4.2) являются кинетическими уравнениями, соответствующими случаю, когда ширина линии молекулярного резонанса намного больше ширины полосы резонатора, а это является хорошим приближением почти для всех лазерных конструкций. Ширина полосы интерферометров, обычно используемых в качестве резонаторов, по крайней мере на 1—2 порядка меньше ширины линии молекулярного резонанса. Например, ширина линии рубина при комнатной температуре равна примерно $3,3 \cdot 10^{11}$ гц. Ширина полосы интерферометра определяется относительной долей потерь мощности за каждое прохождение света в интерферометре. Если P_l/P — относительная величина потерь за одно прохождение, то

$$\Delta\omega_c \approx \frac{2}{T_r} \frac{P_l}{P}.$$

Здесь $\Delta\omega_c$ — ширина полосы резонатора, T_r — время одного прохождения света в резонаторе. Для $P_l/P = 0,25$ и $T_r = 10^{-9}$ сек (что соответствует интерферометру длиной 30 см) получаем ширину полосы $8 \cdot 10^7$ гц. Из этого примера видно, что ширина линии молекулярного резонанса более чем на 3 порядка превышает ширину полосы резонатора.

Приведенные выше уравнения применимы к однородно уширенным линиям, что имеет место в рубиновых лазерах,

работающих при комнатной температуре. В качестве примера неоднородного уширения спектральных линий в § 8 будет рассмотрен спектр гелий-неонового лазера.

В этих уравнениях отсутствуют члены, характеризующие спонтанное излучение, т. е. не учитывается случай, когда в отсутствие внешнего поля молекула переходит из возбужденного состояния в низшее состояние, излучая фотон. В гл. 6, где рассматривается квантованное поле, члены, характеризующие спонтанное излучение, будут учтены в кинетических уравнениях. Плотность энергии спонтанного излучения может быть сравнима с плотностью энергии вынужденного излучения только в начальной стадии процесса установления колебаний в лазере. В стационарном состоянии плотность энергии лазерного излучения на много порядков превышает плотность энергии спонтанного излучения.

При дальнейшем анализе будем предполагать, что колебания возбуждаются на одной моде резонатора-интерферометра, а пространственными изменениями разности населенностей и плотности энергии будем пренебрегать. Между зеркалами интерферометра могут существовать как моды с различной конфигурацией в плоскости, перпендикулярной оси резонатора, так и моды с большими или меньшими фазовыми изменениями вдоль оси резонатора. Помещая между зеркалами интерферометра добавочные поверхности, можно получить одномодовый режим, и в дальнейшем мы будем предполагать, что эти поверхности присутствуют. Разность населенностей и плотность энергии являются функциями координат вследствие пространственной зависимости поля в резонаторе. Однако при решении кинетических уравнений будем пользоваться только пространственными средними значениями этих переменных. Сделанные предположения упрощают анализ. Более детальное рассмотрение с учетом пространственных изменений приводит к незначительным отличиям в результатах от полученных на основании пространственного усреднения [11].

Пороговые условия можно получить, пользуясь уравнением (4.2). Член $\bar{\varphi}/\tau_c$ характеризует скорость потерь энергии в резонаторе, а для существования колебаний необходимо, чтобы скорость генерации энергии за счет вынужденного излучения превышала потери. Следовательно, правая часть уравнения (4.2) должна быть больше, чем $\bar{\varphi}/\tau_c$, чтобы величина $\bar{\varphi}$ возрастала. Для этого требуется выполнение условия $\bar{N} > 1$. При пороговых условиях для генерации плотность электромагнитной энергии исчезающе мала, а стационарным значением величины \bar{N} [согласно уравнению (4.1)] будет \bar{N}^e . Поэтому условием возникновения колебаний является $\bar{N}^e > 1$. Этот метод получения порогового условия отражает тот факт, что скорость генерации

энергии должна превышать потери. Однако необходимо быть уверенным, что имеется устойчивое стационарное решение.

Пороговые условия можно получить другим путем, рассматривая устойчивость стационарных решений кинетических уравнений. Если временные производные в уравнениях (4.1) и (4.2) положить равными нулю, то получим два независимых решения:

$$\bar{N} = \bar{\varphi} = 1, \quad (4.3a)$$

или

$$\bar{N} = \bar{N}^e, \quad \bar{\varphi} = 0. \quad (4.3б)$$

Первое уравнение соответствует стационарному состоянию с ненулевой плотностью энергии, второе — состоянию с нулевой плотностью. Любой переходный процесс приводит к одному из этих стационарных решений в зависимости от того, какое из них является устойчивым в данном случае. Устойчивость стационарных решений можно проверить, задавая малые отклонения переменных от стационарных значений и определяя затем, будет ли система возвращаться к исходному стационарному состоянию. Рассматривая сначала уравнения (4.3a), получим

$$\dot{\bar{\varphi}}(t) \equiv 1 + \delta p(t),$$

$$\dot{\bar{N}}(t) \equiv 1 + \delta v(t),$$

где $\delta \ll 1$. Ограничиваясь членами первого порядка по δ , из уравнений (4.1) и (4.2) получаем

$$\begin{aligned} \dot{v} + \frac{\bar{N}^e}{T_1} v &= \frac{1 - \bar{N}^e}{T_1} p, \\ \dot{p} &= \frac{1}{\tau_c} v. \end{aligned} \quad (4.4)$$

Если предположить для p и v экспоненциальную зависимость от времени вида $e^{\alpha t}$, то можно получить для α алгебраическое уравнение. Если все корни этого уравнения имеют отрицательные вещественные части, то возмущение от стационарного состояния затухнет до нуля и решение будет устойчивым. С другой стороны, наличие положительных вещественных частей в решении уравнения для α указывает на неустойчивость. Подстановка экспоненциальной временной зависимости для v и p в уравнение (4.4) приводит к следующему выражению для α :

$$\alpha^2 + \frac{\bar{N}^e}{T_1} \alpha - \frac{1 - \bar{N}^e}{T_1 \tau_c} = 0.$$

Параметр α имеет только отрицательные вещественные части в решениях, когда

$$\bar{N}^e > 1. \quad (4.5)$$

Поэтому (4.3а) будет устойчивым решением только при выполнении условия (4.5).

Аналогичным образом можно показать, что при $\bar{N}^e < 1$ решение (4.3б) будет устойчивым. Чтобы получить стационарный режим работы лазера, необходимо, чтобы удовлетворялось условие (4.5), поскольку это приводит к устойчивому решению с ненулевым значением плотности энергии. Выражение $\bar{N}^e = 1$ является пороговым условием, так как при большем значении имеет место нарастание колебаний, а при меньшем колебания существовать не могут.

Ненормированное значение для равновесной разности населенностей в единице объема N^e определяется выражением $N^e = N_0 \bar{N}^e$, где N_0 — нормировочный коэффициент. Из уравнения (3.80) предыдущей главы имеем

$$N_0 = \frac{3\hbar\epsilon}{L |\mu_{12}|^2 \Omega \tau_c T_2 F}. \quad (4.6)$$

Здесь F — коэффициент заполнения, характеризующий случай, когда активная среда не целиком заполняет резонатор [см. выражение (2.55), а также задачу 4.12]. Поскольку $\bar{N}^e = 1$ — пороговое условие, то для существования колебаний ненормированная величина равновесной разности населенностей в единице объема подчиняется условию $N^e > N_0$. Для случая вырождения следует заменить равновесные населенности уровней в единице объема N_1^e и N_2^e на N_1^e/g_1 и N_2^e/g_2 .

Тогда

$$N^e = \frac{N_2^e}{g_2} - \frac{N_1^e}{g_1}.$$

Условие существования колебаний запишется в виде

$$\frac{N_2^e}{g_2} - \frac{N_1^e}{g_1} > \frac{3\hbar\epsilon}{L |\mu_{12}|^2 \Omega \tau_c T_2 F}. \quad (4.7)$$

Здесь g_1 и g_2 — кратности вырождения, а F — коэффициент заполнения. Если уровни имеют одинаковую кратность вырождения, т. е. $g_2 = g_1$, то для возникновения колебаний N_2^e должно превышать N_1^e . Когда кратность вырождения нижнего состояния больше кратности вырождения верхнего состояния, неравенство (4.7) может иметь место и в случае, если условие $N_2^e > N_1^e$ не выполняется. Заметим, что при уменьшении потерь в резонаторе,

чему соответствует увеличение τ_c , для достижения порога возбуждения требуется меньшая величина разности населенностей в единице объема $(N_2^e/g_2) - (N_1^e/g_1)$; этого следовало ожидать, поскольку в резонаторе с меньшими потерями требуется меньшее усиление в активной среде.

Можно рассчитать мощность, которую должен иметь источник возбуждения для поддержания необходимой разности населенностей. В отсутствие накачки разность населенностей в единице объема релаксирует к тепловому равновесному распределению N_T^e с постоянной времени T_1 . Роль источника возбуждения сводится к поддержанию стационарного значения разности населенностей в единице объема N^e , причем $N^e \neq N_T^e$. В активной среде существуют постоянные потери энергии за счет T_1 -релаксации. Эти потери компенсируются энергией накачки. Поскольку N — разность населенностей в единице объема, изменение N на две единицы соответствует изменению энергии на $\hbar\Omega$ в единице объема, и, таким образом,

$$\frac{\hbar\Omega}{2} \frac{N^e - N_T^e}{T_1}$$

есть мощность в единице объема, требуемая от накачки. Следовательно,

$$\mathcal{P}_p = \frac{\hbar\Omega}{2} \left(\frac{N^e - N_T^e}{T_1} \right), \quad (4.8)$$

где \mathcal{P}_p — мощность накачки на единицу объема, требуемая для поддержания равновесной разности населенностей в единице объема N^e . На основании выражения (4.7) получаем пороговое значение мощности накачки на единицу объема:

$$\mathcal{P}_{\text{пор}} = \frac{\hbar\Omega}{2T_1} \left[\frac{3\hbar e}{L |\mu_{12}|^2 \Omega \tau_c T_2 F} - N_T^e \right]. \quad (4.9)$$

Если нижнее энергетическое состояние является основным для попов, как в случае рубинового лазера, то $N_T^e \approx -N_V$, где N_V — число активных ионов в единице объема. Иными словами, при тепловом равновесии почти все ионы находятся в нижнем энергетическом состоянии.

Выражение (4.8) определяет минимальную требуемую мощность накачки. Часть мощности теряется в переходах из полос поглощения, которые населяются источником возбуждения, на верхний лазерный уровень. Мощность, связанная с этими переходами, идет на нагрев активной среды.

Рубиновый лазер имеет следующие типичные характеристики:

$$N_0 = \frac{3\hbar\epsilon}{L |\mu_{12}|^2 \Omega \tau_c T_2 F} \approx 10^{18} \text{ см}^{-3},$$

$$N_V \approx 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3},$$

$$T_1 \approx 4 \cdot 10^{-3} \text{ сек},$$

$$\hbar\Omega \approx 2,7 \cdot 10^{-19} \text{ Дж}.$$

Здесь τ_c — постоянная затухания резонатора — выбрана равной $2 \cdot 10^{-9}$ сек. Величина плотности пороговой мощности накачки на основании этих характеристик получается равной примерно 600 вт/см^3 . Мощность, необходимая для компенсации потерь в резонаторе, составляет 5% от полной подводимой мощности. Остальные 95% мощности расходуются на преодоление теплового равновесия. Если бы нижний уровень располагался над основным на расстоянии, равном нескольким kT , то мы получили бы $N_T^e \approx 0$, мощность накачки расходовалась бы только на преодоление потерь в резонаторе и могла бы быть значительно снижена. На этом основана работа четырехуровневого лазера, описанного в § 7.

§ 4. ВЫХОДНАЯ МОЩНОСТЬ В СТАЦИОНАРНОМ РЕЖИМЕ

Мощность излучения лазера определяется скоростью потерь запасенной энергии, обусловленных прохождением излучения через зеркала резонатора. Рассматривая только потери, связанные с зеркалами, имеем

$$U = U_0 e^{-t/\tau_m}. \quad (4.10)$$

Здесь τ_m — время релаксации электромагнитной энергии в результате прохождения через зеркала; U — энергия, запасенная в единице объема; U_0 — энергия в момент времени $t = 0$. Можно вычислить постоянную времени τ_m , полагая, что за интервал времени, в течение которого электромагнитная волна проходит расстояние, равное удвоенной длине резонатора, запасенная энергия уменьшается в $\rho_1 \rho_2$ раз, где ρ_1 и ρ_2 — коэффициенты отражения зеркал. Поэтому из (4.10) имеем

$$\rho_1 \rho_2 = e^{-2\eta l / \tau_m c}.$$

Здесь c/η — скорость света в среде, η — показатель преломления, l — расстояние между зеркалами резонатора. Тогда для τ_m найдем

$$\tau_m = - \frac{2\eta l}{c \ln(\rho_1 \rho_2)}. \quad (4.11)$$

Выходная мощность, отнесенная к единичному объему активной среды \mathcal{P}_0 , равна $-U$, и, согласно (4.10), запишем

$$\mathcal{P}_0 = \frac{U}{\tau_m}. \quad (4.12)$$

Здесь

$$U = \varphi \hbar \Omega.$$

Было показано, что при превышении пороговых значений $\bar{\varphi} = 1$, и поэтому плотность электромагнитной энергии в стационарном режиме равна $\varphi_0 \hbar \Omega$. Используя (3.81), получаем

$$\varphi = \varphi_0 = \frac{\tau_c}{T_1} \frac{N_0}{2} (\bar{N}^e - 1), \quad (4.13)$$

где N_0 определяется из (4.6). На основании выражений (4.12) и (4.13) для выходной мощности, отнесенной к единице объема, находим

$$\mathcal{P}_0 = \frac{\hbar \Omega}{\tau_m} \frac{\tau_c}{T_1} \frac{N_0}{2} (\bar{N}^e - 1); \quad (4.14)$$

здесь τ_m определяется из (4.11).

В качестве примера рассмотрим рубиновый лазер, объем активной среды которого равен 1 см^3 , а мощность накачки достигает такой величины, что $\bar{N}^e = 1,2$. Если предположить, что дифракционные потери и потери на рассеяние в резонаторе равны потерям, обусловленным прохождением через зеркала, то $\tau_c/\tau_m = 1/2$. Используя характеристики для рубинового лазера, приведенные в § 3, получаем, что выходная мощность составляет приблизительно 3 вт.

§ 5. НЕСТАЦИОНАРНЫЕ ПРОЦЕССЫ

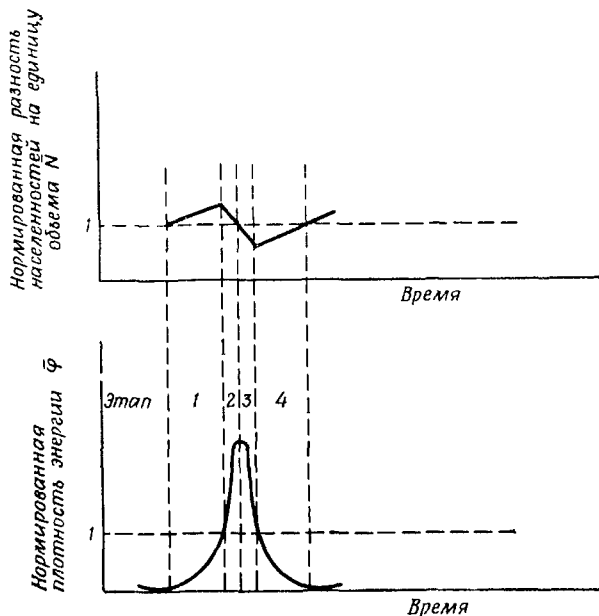
Переходный процесс играет важную роль, когда лазер работает в импульсном режиме, так как длительность генерируемых импульсов может быть сравнима с временными константами генератора. Для большинства импульсных рубиновых лазеров стационарный режим никогда не достигается за время импульса.

Мы ограничимся анализом одномодового режима, при котором существуют регулярные осцилляции. Многомодовый режим имеет довольно сложный переходный процесс, как это показано в [12].

Из кинетических уравнений (4.1) и (4.2) можно видеть, что переходный процесс может быть разделен во времени на четыре этапа. Граничные условия при $t = 0$ будут иметь вид $\bar{\varphi} \ll 1$ и $\bar{N} = 1$, а превышение над пороговым значением определяется условием $\bar{N}^e > 1$. Переходный процесс можно представить следующим образом.

1) Из уравнения (4.1), пренебрегая членом в правой части (поскольку $\bar{\varphi} \ll 1$), видим, что \dot{N} — величина положительная, а \bar{N} экспоненциально возрастает со временем. Из уравнения (4.2) видно, что $\bar{\varphi}$ увеличивается, так как $\bar{N} > 1$, $\dot{\bar{\varphi}} > 0$.

2) Поскольку \bar{N} приблизительно равно единице, то, когда $\bar{\varphi}$ становится больше единицы, \dot{N} становится меньше нуля [из (4.1)], и \bar{N} начинает уменьшаться.



Фиг. 4.6. Нормированная разность населенностей на единицу объема и плотность энергии как функции времени для четырех этапов цикла генерации светового импульса.

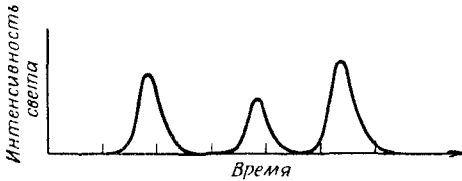
3) Когда \bar{N} становится меньше единицы, из уравнения (4.2) видим, что $\dot{\bar{\varphi}}$ отрицательно и $\bar{\varphi}$ уменьшается.

4) Когда $\bar{\varphi}$ становится меньше единицы, из уравнения (4.1) видим, что \dot{N} положительно и \bar{N} увеличивается. Когда \bar{N} становится больше единицы, имеют место условия, указанные в п. 1, и цикл повторяется.

На фиг. 4.6 показаны временные зависимости \bar{N} и $\bar{\varphi}$ в соответствии с рассмотренными четырьмя этапами.

На фиг. 4.7 изображена осциллограмма светового импульса рубинового лазера. Цена деления равна 1 мксек. Импульсам на осциллограмме соответствует переходный процесс, описанный выше (п. 1—4).

Можно провести количественный анализ переходного процесса, пользуясь приближением, что во время цикла величина \bar{N} близка к единице.



Фиг. 4.7. Оциллограмма пиков рубинового лазера с ценой деления временной шкалы 1 мксек.

Справедливость этого приближения может быть оценена на основании полученного решения. Деля (4.2) на (4.1) и сохраняя только члены первого порядка относительно разности между \bar{N} и единицей, получаем

$$\frac{d\bar{\varphi}}{d\bar{N}} = \frac{T_1 (\bar{N} - 1) \bar{\varphi}}{\tau_c (1 - \bar{N}^e) (\bar{\varphi} - 1)}. \quad (4.15)$$

Разделяя переменные и интегрируя, получаем

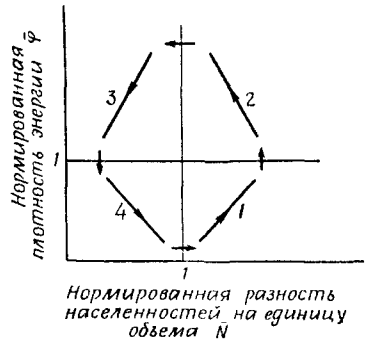
$$\frac{T_1}{2\tau_c (\bar{N}^e - 1)} (\bar{N} - 1)^2 = \ln \frac{\bar{\varphi}}{\bar{\varphi}_i} - (\bar{\varphi} - \bar{\varphi}_i). \quad (4.16)$$

Здесь $\bar{\varphi}_i$ — нормированная плотность энергии при $\bar{N} = 1$.

Плоскость $\bar{\varphi}\bar{N}$ можно разделить на четыре области, в каждой из которых $d\bar{\varphi}/d\bar{N}$ будет иметь определенный знак.

Это представлено на фиг. 4.8, где наклон прямых указывает на положительный знак производной в областях 1 и 3 и отрицательный — в областях 2 и 4. Стрелки на прямых показывают направление возрастания времени согласно кинетическим уравнениям. На границах между областями производные равны или нулю или бесконечности. Области плоскости $\bar{\varphi}\bar{N}$ имеют нумерацию от 1 до 4 в соответствии с временными интервалами, отмеченными на фиг. 4.6.

Стационарный режим определяется точкой $\bar{\varphi} = \bar{N} = 1$. На начальном этапе формирования лазерного пика $\bar{\varphi} \approx 0$ и $\bar{N} \approx 1$, и чтобы достичь стационарного состояния, как видно из фиг. 4.8, необходимо совершить обход против часовой стрелки вокруг точки $\bar{\varphi} = \bar{N} = 1$ по скручивающейся спирали. Стационарного

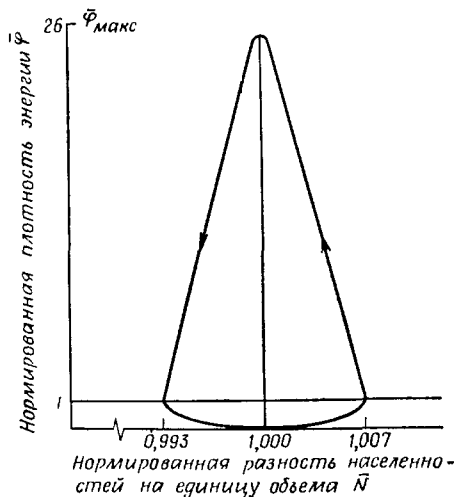


Фиг. 4.8. Прямые линии определяют наклон кривой $\bar{\varphi} - \bar{N}$ в различных сегментах плоскости $\bar{\varphi} - \bar{N}$.

Стрелки показывают направление возрастания времени.

состояния нельзя достичь без изменения знака производной, оставаясь в области I плоскости $\bar{\varphi}\bar{N}$. Поэтому скручивающаяся спираль должна пересекать все четыре области. Следовательно, интенсивность излучаемого света как функция времени будет превосходить стационарную величину в пиках уменьшающейся высоты при приближении к стационарному состоянию.

На фиг. 4.9 представлена кривая в плоскости $\bar{\varphi}\bar{N}$ для рубинового лазера, построенная на основании характеристик, приведенных в § 3, причем $\bar{N}^e = 2$. Эта величина \bar{N}^e соответствует 10% инверсии населенностей, т. е. $N^e/N_V = 0,1$ где N_V — число активных атомов в единице объема (при рассмотрении стационарного режима в § 4 мы брали $\bar{N}^e = 1,2$, а для импульсного режима примем $\bar{N}^e = 2$; это связано с тем, что экспериментально легче получить большую инверсную населенность для импульсного, а не для непрерывного режима). За начальное значение нормированной плотности энергии $\bar{\varphi}_i$ принимается плотность энергии спонтанного излучения при одномодовом режиме, а именно $\bar{\varphi}_i \approx 10^{-10}$. Форма кривой на фиг. 4.9 практически не зависит от величины $\bar{\varphi}_i$; изменение $\bar{\varphi}_i$



Фиг. 4.9. График зависимости $\bar{\varphi}$ от \bar{N} для значений параметров

$$\bar{\varphi}_i = 10^{-10},$$

$$\frac{2\tau_c(\bar{N}^e - 1)}{T_1} = 2 \cdot 10^{-6}.$$

в 10^5 раз изменяет пиковую плотность энергии только вдвое. Более глубокое рассмотрение спонтанного излучения будет приведено в гл. 6.

Максимальное значение плотности фотонов $\bar{\varphi}_{\text{макс}}$ имеем при $\bar{N} = 1$. Заметим, что $\bar{\varphi}_{\text{макс}} \gg \bar{\varphi}_i$, согласно (4.16), получим

$$\bar{\varphi}_{\text{макс}} = 10 \frac{\bar{\varphi}_{\text{макс}}}{\bar{\varphi}_i}.$$

При $\bar{\varphi}_i = 10^{-10}$ это дает $\bar{\varphi}_{\text{макс}} = 26$, откуда следует, что пиковая мощность лазерного импульса в 26 раз превышает ее значение при стационарном режиме. Для рубинового лазера на основании характеристик § 3 при $\bar{N}^e = 2$, $\tau_c/\tau_m = 1/2$ и объеме активной сре-

ды 3 см^3 , пользуясь формулой (4.14), получаем величину пиковой мощности, примерно равную $1,3 \text{ кВт}$.

Максимальное и минимальное значения для \bar{N} определим из (4.16), подставляя $\bar{\phi} = 1$ и используя условие $\bar{\phi}_i \ll 1$:

$$\bar{N}_{\pm} = 1 \pm \left[\frac{2\tau_c (\bar{N}^e - 1)}{T_1} \right]^{1/2} [-1 - \ln \bar{\phi}_i]^{1/2}.$$

Здесь \bar{N}_+ и \bar{N}_- — максимальное и минимальное значения \bar{N} . При указанных характеристиках $\bar{N}_{\pm} = 1 \pm 6,6 \cdot 10^{-3}$. Разность населенностей изменяется меньше чем на 1% от стационарного значения. Это подтверждает справедливость начальных предположений о том, что $\bar{N} \approx 1$ за время длительности лазерного импульса.

Если решить кинетические уравнения, определяя временную зависимость \bar{N} и $\bar{\phi}$, то получим кривые такой же формы, как на фиг. 4.6. Длительность импульса — порядка 1 мксек , т. е. намного меньше времени релаксации возбужденных ионов T_1 , и, следовательно, почти все изменение энергии в активной среде за время длительности импульса попадает в резонатор. Таким образом, на основании фиг. 4.9 можно вычислить энергию \mathcal{W} , излученную во внешнюю цепь:

$$\mathcal{W} = \frac{\hbar\Omega}{2} (\bar{N}_+ - \bar{N}_-) N_0 V \text{ дж}. \quad (4.17)$$

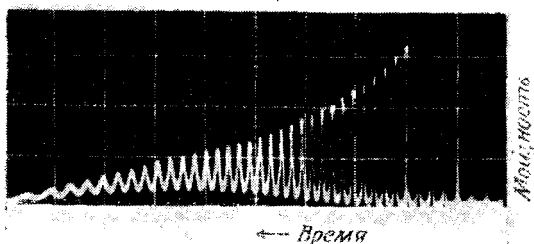
Здесь V — объем активной среды. Для рубинового лазера $(\bar{N}_+ - \bar{N}_-) = 13,2 \cdot 10^{-3}$, поэтому энергия излучения в импульсе, полученная с объема $V = 3 \text{ см}^3$, будет

$$\mathcal{W} \approx 2,7 \cdot 10^{-3} \text{ дж}.$$

При этом мы предполагаем, что одна половина энергии расходуется на потери в резонаторе, а другая идет на излучение.

При $\bar{N} \approx 1$ траектория $\bar{\phi}$ как функция \bar{N} представляет собой замкнутую кривую (фиг. 4.9). Это значит, что плотность энергии к концу каждого импульса спадает до уровня шумов и последующий импульс не коррелирован по времени с предыдущим. Это положение иллюстрируется изображением осциллограмм, приведенным на фиг. 4.7. Однако точное решение кинетических уравнений показывает, что $\bar{\phi}$ не спадает до $\bar{\phi}_i$ к концу каждого импульса, а превышает величину $\bar{\phi}_i$. На плоскости $\bar{\phi}\bar{N}$ в этом случае траектория будет иметь вид незамкнутого контура, а скорее спирали, скручивающейся к точке $\bar{\phi} = \bar{N} = 1$, и плотность энергии будет представляться во времени последовательностью импульсов с уменьшающейся амплитудой. Фиг. 4.10 иллюстрирует зависимость мощности от времени в рубиновом лазере.

Изменение мощности во времени, показанное на фиг. 4.10, имеет место тогда, когда $\bar{\phi}$ в конечной стадии лазерного импульса значительно превышает уровень шума, а, следовательно, каждый последующий импульс коррелирован с предыдущим. Из



Фиг. 4.10. Временная зависимость мощности, излучаемой рубиновым лазером, по данным Роесса [13].

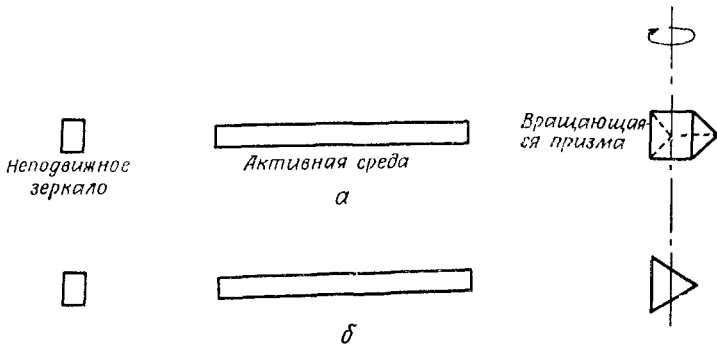
кинетических уравнений можно определить, что импульсы с уменьшающейся амплитудой (фиг. 4.10) генерируются тогда, когда постоянная затухания резонатора велика, а мощность накачки существенно превышает пороговое значение.

§ 6. МОДУЛЯЦИЯ ДОБРОТНОСТИ

Величина пиковой мощности может быть увеличена на несколько порядков по сравнению с величиной мощности в стационарном режиме при длительностях генерируемых импульсов от 10 до 100 нсек [14, 15]. В рубиновых лазерах, например, можно достигать гигаваттных значений пиковой мощности. Метод генерации таких высокоинтенсивных импульсов, известный как метод модуляции добротности, состоит в том, что добротность резонатора изменяется за время, значительно меньшее, чем время релаксации возбужденных состояний. Метод модуляции добротности используется в таких активных средах, как рубин, неодим и углекислый газ.

В § 5 было отмечено, что максимальная разность населенностей получается в том случае, когда лазерный пик едва превышает пороговое значение. Причина заключается в том, что колебания возникают чуть позже достижения порога, а истощение возбужденных состояний происходит быстрее, чем восстановление их от источника возбуждения. Равновесная разность населенностей в единице объема N^e , которая имела бы в отсутствие колебаний, может, однако, быть значительно больше, чем максимальная разность населенностей, обычно существующая перед возникновением колебаний. Если бы колебания не могли

возникать, пока не достигнуто значение N^c , то в активной среде запасалось бы больше энергии и могло бы быть достигнуто значительное увеличение мощности излучения. Если потери в системе настолько велики, что невозможно достичь пороговых значений, то колебания не возникают. Мгновенное уменьшение потерь влечет за собой возникновение колебаний со значительно большей энергией, запасенной вначале в активной среде. Если активная среда имеет время релаксации порядка миллисекунд, то можно, уменьшая потери резонатора за более короткое время, чем время релаксации, направлять большую часть запасенной энергии в резонатор.



Фиг. 4.11. Схема лазера с модуляцией добротности при помощи вращающейся призмы.

а — высокие потери; *б* — низкие потери.

Модуляция добротности, а именно резкое увеличение величины добротности резонатора Q , может осуществляться несколькими способами. Например, устройство, известное под названием ячейки Керра, можно поместить внутри резонатора, и тогда появится функциональная зависимость между величиной потерь и величиной постоянного электрического поля, приложенного к ячейке Керра. Вначале получается инверсная населенность при таком электрическом поле, что потери в резонаторе достаточно велики и генерация возникнуть не может. При достижении величины инверсной населенности, равной N^c , резко изменяется электрическое поле, что приводит к увеличению добротности резонатора, и в результате излучается импульс высокой интенсивности.

Другой способ модуляции добротности состоит в замене одного из зеркал резонатора вращающейся призмой (фиг. 4.11). Когда призма занимает положение, показанное на фиг. 4.11, *а*, она не образует резонатора с фиксированным зеркалом и возникают большие потери. При положении призмы, изображенном

на фиг. 4.11, б, свет, отраженный от неподвижного зеркала, возвращается обратно и образуется высокодобротный резонатор. Инверсная населенность образуется при малом значении Q (фиг. 4.11, а), а генерация возникает при положении призмы, изображенном на фиг. 4.11, б.

Имеется еще один способ модуляции добротности, основанный на применении насыщающихся фильтров из органических красителей, которые помещаются внутри резонатора. Органические красители — это вещества, у которых коэффициент поглощения вследствие эффекта насыщения уменьшается с увеличением интенсивности света. Прозрачность красителей подбирается такой, чтобы в случае, когда на красители не попадает свет, потери были чуть меньше величины, требуемой для возникновения генерации (при $N = N^e$). Поэтому пороговое условие выполняется при $N \approx N^e$, а поскольку с увеличением мощности излучения потери в красителях уменьшаются, то возникает требуемый эффект модуляции добротности. В этом случае разность населенностей в единице объема равна приблизительно N^e перед каждым импульсом излучения.

Для анализа режима модуляции добротности удобно пользоваться $\bar{\varphi}\bar{N}$ -плоскостью. Уже в начальной стадии возникновения импульса плотность энергии светового поля значительно превышает плотность энергии стационарного режима, т. е. $\bar{\varphi} \gg 1$. Используя это условие в нормированных кинетических уравнениях (4.1) и (4.2), получаем соотношение

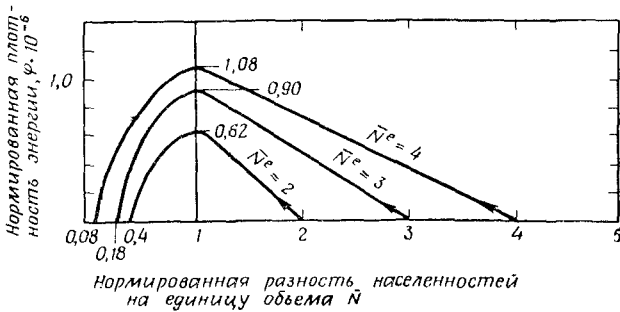
$$\frac{d\bar{\varphi}}{d\bar{N}} = - \frac{T_1}{\tau_c (\bar{N}^e - 1)} \frac{\bar{N} - 1}{\bar{N}}. \quad (4.18)$$

Это выражение представляет собой отношение кинетических уравнений, поэтому время исключено. Разделяя переменные в уравнении (4.18) и затем интегрируя, имеем

$$\bar{\varphi} = \frac{T_1}{\tau_c (\bar{N}^e - 1)} \left[\ln \frac{\bar{N}}{\bar{N}^e} + \bar{N}^e - \bar{N} \right]. \quad (4.19)$$

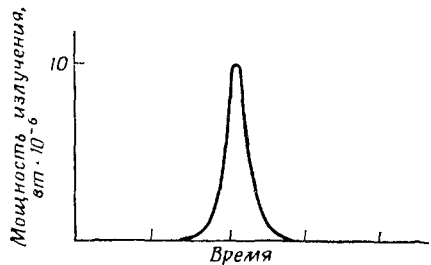
Здесь граничным условием будет $\bar{\varphi} = 0$ при $\bar{N} = \bar{N}^e$. На фиг. 4.12 представлены графики функции $\bar{\varphi}(\bar{N})$ при различных значениях \bar{N}^e , а стрелки указывают направление возрастания времени. Максимальная плотность энергии достигается тогда, когда нормированная разность населенностей равна единице, поэтому можно получить значение $\bar{\varphi}_{\text{макс}}$ из (4.19), подставляя в последнее $\bar{N} = 1$. При $\bar{N}^e = 2$ максимальная плотность энергии будет в $0,62 \cdot 10^6$ раз превышать стационарное значение. Для параметров, приведенных в примере, который рассматривался в § 2—5, пиковая мощность излучения получается равной примерно 10 Мвт для объема 1 см³ при $\bar{N}^e = 2$.

Энергия посылаемого в резонатор излучения равна потере энергии в активной среде в течение импульса света, как это видно из уравнения (4.17). При $\bar{N}e = 2$ плотность энергии излучения составляет приблизительно $0,1 \text{ Дж/см}^3$, если считать, что потери энергии в резонаторе равны энергии излучения. Можно



Фиг. 4.12. Зависимость нормированной плотности фотонов от нормированной разности населенностей в случае модуляции добротности для значения параметра $T_1/\tau_c = 2 \cdot 10^6$.

произвести приблизительный расчет длительности импульса, предполагая, что импульс имеет треугольную форму. Отношение полной энергии излучения к пиковой мощности излучения дает значение времени между точками, соответствующими половинной мощности; для предыдущего примера оно равно $1 \cdot 10^{-8} \text{ сек}$.

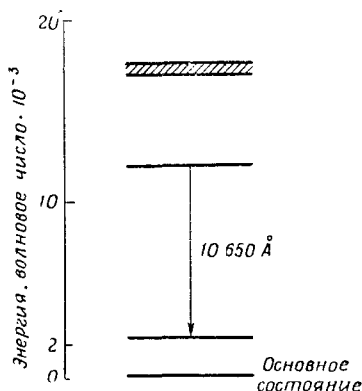


Фиг. 4.13. Осциллограмма импульса лазера с модуляцией добротности. Цена деления временной шкалы 100 нсек.

Зависимость плотности энергии от времени для режима модуляции добротности можно получить из кинетических уравнений, используя граничные условия: $N = N^e$ при $t = 0$, а ϕ определяется плотностью спонтанно испущенных фотонов. На фиг. 4.13 изображен вид типичной осциллограммы импульса, получаемого при модуляции добротности. Цена деления временной шкалы равна 100 нсек.

§ 7. ЧЕТЫРЕУРОВНЕВЫЙ ЛАЗЕР

В § 3 было отмечено, что, когда нижним уровнем лазерного перехода является основное состояние ионов, большая часть мощности накачки при пороговых условиях затрачивается на изменение разности населенностей, существующей при тепловом равновесии. В лазере, работающем по принципу четырехуровневой схемы, требуется меньшая мощность накачки, чтобы поддерживать пороговую разность населенностей, так как нижний ла-



Фиг. 4.14. Энергетическая диаграмма Nd^{3+} в CaWO_4 .

Свет поглощается заштрихованной полосой, и лазерное излучение соответствует переходу на более низкий уровень, который лежит примерно на 10 кТ выше основного состояния при комнатной температуре.

зерный уровень расположен выше основного состояния на величину, равную нескольким kT , поэтому величина разности населенностей в единице объема при тепловом равновесии N_T^e близка к нулю. На фиг. 4.14 изображены четыре энергетических уровня для ионов неодима Nd^{3+} в вольфрамате кальция CaWO_4 .

При комнатной температуре населенность обоих лазерных уровней ничтожно мала. Полагая $N_T^e = 0$, из уравнения (4.9) получаем величину мощности накачки в единице объема, необходимую для поддержания пороговой разности населенностей:

$$\mathcal{P}_{\text{пор}} = \frac{3\hbar^2 e}{2L |\mu_{12}|^2 T_1 \tau_c T_2 F}. \quad (4.20)$$

Используя характеристики неодима:

$$N_0 = \frac{3\hbar e}{L |\mu_{12}|^2 \Omega \tau_c T_2 F} \approx 2,2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3},$$

$$T_1 = 10^{-4} \text{ сек},$$

$$\hbar\Omega = 1,7 \cdot 10^{-19} \text{ дж},$$

для мощности накачки на единицу объема при пороговых условиях получим значение, равное 19 вт/см^3 , что составляет пример-

но 3% от величины порогового значения мощности накачки для рубинового лазера. Постоянная времени резонатора выбрана $2 \cdot 10^{-9}$ сек.

§ 8. ГЕЛИЙ-НЕОНОВЫЙ ГАЗОВЫЙ ЛАЗЕР

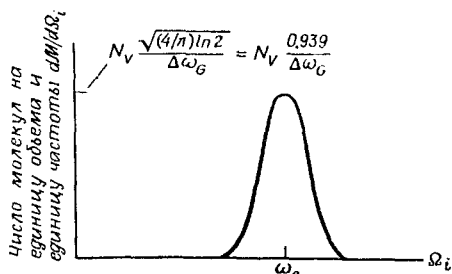
Способ получения инверсии населенностей для гелий-неонового лазера был рассмотрен в § 2; теперь займемся рассмотрением пороговых требований и выходной мощности в стационарном режиме. Существенное различие между газовым лазером и твердотельными рубиновым или неодимовым лазерами состоит в том, что активные молекулы в газовом лазере имеют различные частоты переходов вследствие движения молекул газа. Если некоторая молекула движется со скоростью v_i в направлении распространения электромагнитной волны, то частота взаимодействия определяется следующим образом:

$$\Omega_i = \omega_0 \left(1 + \frac{v_i}{c} \right).$$

Здесь ω_0 — частота перехода неподвижной частицы. Как было указано в гл. 3, § 2, п. 5, эффект такого смещения частоты, называемого доплеровским смещением, приводит к тому, что линия поглощения для перехода превращается в совокупность лоренцевых линий, имеющих различные центральные частоты Ω_i . Число молекул в единице объема $d\mathcal{M}$ в области $d\Omega_i$ частоты перехода определяется тепловым равновесным распределением по скоростям в газе и дается выражениями (3.23) и (3.24), откуда получаем

$$d\mathcal{M} = N_V \frac{V(4/\pi) \ln 2}{\Delta\omega_G} \exp \left[-4 \ln 2 \frac{(\Omega_i - \omega_0)^2}{(\Delta\omega_G)^2} \right] d\Omega_i. \quad (4.21)$$

Здесь N_V — полное число молекул в единице объема, а $\Delta\omega_G$ — ширина линии в рад/сек, соответствующая разности частот между точками, которые расположены по разные стороны от пикового значения и в которых величина $d\mathcal{M}/d\Omega_i$ равна половине максимального значения в центре линии. Коэффициент перед экспонентой в (4.21) выбран таким образом, что интеграл по Ω_i от $-\infty$ до ∞ равен числу молекул в единице объема. На фиг. 4.15 приведена зависимость $d\mathcal{M}/d\Omega_i$ от частоты.



Фиг. 4.15. Гауссова форма линии, обусловленная доплеровским уширением.

В гл. 3 было постулировано, что в случае, когда разные молекулы имеют различные частоты переходов, линия поглощения называется неоднородно уширенной линией, в противоположность однородно уширенной для случая, когда все молекулы имеют одинаковые частоты переходов. В газе линия поглощения, как правило, представляет собой неоднородно уширенную линию гауссовой формы с шириной $\Delta\omega_G$ при центральной частоте ω_0 . Она образуется из совокупности однородно уширенных лоренцевых линий, каждая из которых имеет ширину $\Delta\omega_L = 2/T_2$.

В гл. 2, § 4, были получены уравнения для электрического дипольного перехода, устанавливающие связь дипольного момента молекулы $\langle \mu \rangle$ с разностью вероятностей заселенности двух уровней:

$$\langle \dot{\mu} \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \mu \rangle + \Omega_i^2 \langle \mu \rangle = - \frac{2 |\mu_{12}|^2 \Omega_i}{3\hbar} E(\Delta\rho), \quad (4.22)$$

$$(\Delta\rho) + \frac{\Delta\rho - (\Delta\rho)^e}{T_1} = \frac{2}{\hbar\Omega_i} E \langle \dot{\mu} \rangle. \quad (4.23)$$

Здесь $\Delta\rho = \rho_{22} - \rho_{11}$ и для простоты рассматривается одномерная задача. Для однородно уширенной линии поляризация P получается умножением $\langle \mu \rangle$ на число молекул в единице объема, так как все молекулы имеют одинаковую частоту перехода. Однако для неоднородно уширенной линии при вычислении поляризации необходимо интегрировать произведение $\langle \mu \rangle d\mathcal{M}$:

$$P = \int \langle \mu \rangle d\mathcal{M} = \int_0^\infty d\Omega_i \langle \mu \rangle N_V \frac{0,939}{\Delta\omega_G} \exp \left[- \frac{4 \ln 2}{(\Delta\omega_G)^2} (\Omega_i - \omega_0)^2 \right]. \quad (4.24)$$

Видно, что P представляет собой интеграл свертки лоренцевой линии $\langle \mu \rangle$ с гауссовой функцией. Уравнение для резонатора имеет такой же вид, как и в случае однородного уширения линии, а именно

$$\ddot{E} + \frac{1}{\tau_c} \dot{E} + \omega_c^2 E = - \frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}. \quad (4.25)$$

Здесь τ_c — постоянная затухания резонатора, а ω_c — резонансная частота резонатора. Предполагается, что активная среда полностью заполняет объем резонатора. Дифференциальные уравнения (4.22) — (4.25) описывают лазер с гауссовой уширенной линией.

В дальнейшем будем предполагать, что лазер работает в одномодовом режиме, и будем использовать экспоненциальные обозначения, так что, например, $E = \frac{1}{2} \tilde{E} e^{i\omega t} + \text{комплексно сопряженная}$, где ω — частота излучения, а знаком тильды над переменными обозначается комплексная амплитуда, которая в ста-

ционарном режиме постоянна. Из уравнения (4.23) для средних значений по времени $\langle \Delta\rho \rangle$ имеем

$$\frac{\langle \Delta\rho \rangle - \langle \Delta\rho \rangle^e}{T_1} = \frac{i\omega}{2\hbar\Omega_i} (\langle \tilde{\mu} \rangle \tilde{E}^* - \langle \tilde{\mu} \rangle^* \tilde{E}). \quad (4.26)$$

Можно исключить $\langle \tilde{\mu} \rangle$ из уравнений (4.22) и (4.26), выразив тем самым $\langle \Delta\rho \rangle$ через электрическое поле:

$$\langle \Delta\rho \rangle = \frac{\langle \Delta\rho \rangle^e}{1 + \frac{|\tilde{E}|^2}{|\tilde{E}|_{\text{нас}}^2} \frac{g_L(\omega, \Omega_i)}{T_2/\pi}}. \quad (4.27)$$

Здесь

$$|\tilde{E}|_{\text{нас}}^2 = \frac{3\hbar^2}{|\mu_{12}|^2 T_1 T_2}.$$

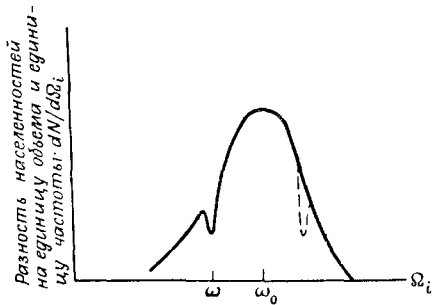
При выводе уравнения (4.27) предполагалось, что $\Omega_i + \omega \approx 2\omega$.

Если подставить типичные характеристики лазера в выражение (4.27), то можно видеть, что знаменатель в правой части равен приблизительно единице всюду, где Ω_i не слишком близко к ω . Это значит, что $\langle \Delta\rho \rangle^e$ становится меньше своего равновесного значения вблизи частоты генерации в интервале частот, равном ширине лоренцевой линии $2/T_2$. Разность населенностей в единице объема, приходящаяся на единичный частотный интервал $dN/d\Omega_i$, обнаруживает аналогичные свойства, поскольку

$$\frac{dN}{d\Omega_i} = \langle \Delta\rho \rangle \frac{d\mathcal{M}}{d\Omega_i}.$$

Следовательно, $dN/d\Omega_i$ представляет собой произведение величины $\langle \Delta\rho \rangle$, определяемой уравнением (4.27), на гауссову экспоненциальную функцию. Сплошная линия на фиг. 4.16 иллюстрирует уменьшение величины $dN/d\Omega_i$ в непосредственной близости от частоты генерации ω .

При однородном уширении резонансной линии разность населенностей уменьшается однородно, поскольку каждая молекула имеет одну и ту же частоту перехода, в то время как при неоднородном уширении разность населенностей уменьшается лишь в диапазоне, определяемом шириной лоренцевой линии. Этот эффект проиллюстрирован на фиг. 4.16 и называется эффектом прожигания дырки [16].



Фиг. 4.16. Уменьшение разности населенностей вблизи частоты генерации при неоднородно уширенном резонансе.

Кривая, изображенная на фиг. 4.16, характерна для одиночной распространяющейся волны. Однако в резонаторе распространяются две волны в противоположных направлениях. Волна, распространяющаяся направо, взаимодействует с молекулами, имеющими данную скорость, а волна, распространяющаяся налево, взаимодействует с другими молекулами, которые имеют скорость, равную первой по величине и противоположную по направлению. Поэтому волна, распространяющаяся в резонаторе в одном направлении, обнаружит другую дырку, прожженную с другой стороны от ω_0 на таком же частотном интервале. Дырка, прожженная волной, распространяющейся в противоположном направлении, показана на фиг. 4.16 пунктирной линией. Если частота колебаний близка к ω_0 , то дырки сильно влияют друг на друга, но если $\omega_0 - \omega$ — несколько раз больше ширины лоренцевой линии, то взаимодействие дырок не учитывается при определении порога генерации и выходной мощности. При $\omega \approx \omega_0$ волны, распространяющиеся в противоположных направлениях, взаимодействуют с одними и теми же молекулами и происходит уменьшение выходной мощности вблизи центра линии. Если $\omega = \omega_0$, то только одна дырка прожигается в максимуме гауссовой линии и анализ в этом случае можно выполнить, используя скорее понятие полного поля в резонаторе, чем метод двух распространяющихся волн.

Чтобы получить пороговые условия и определить мощность излучения, необходимо вычислить поляризацию. Это можно сделать, исключая $(\Delta\rho)$ из уравнения (4.22) с помощью соотношения (4.27) и выражая дипольный момент через электрическое поле, а именно

$$\langle \vec{\mu} \rangle = \frac{T_2^2 (iK/\omega) [(1/T_2) + i(\Omega_i - \omega)] (\Delta\rho)^e \vec{E}}{T_2^2 (\Omega_i - \omega)^2 + 1 + |\vec{E}|^2 / \vec{E}_{\text{нас}}^2}, \quad (4.28)$$

$$K = \frac{|\mu_{12}|^2 \Omega_i}{3\hbar}. \quad (4.29)$$

Поляризация определяется интегрированием произведения гауссовой функции на дипольный момент $\langle \vec{\mu} \rangle$, вычисленный по формуле (4.28), т. е. необходимо вычислить $\int \langle \vec{\mu} \rangle d\mathcal{M}$. Интегрирование значительно упрощается, если принять во внимание, что значение $\langle \vec{\mu} \rangle$ велико только там, где $\Omega_i \approx \omega$, а гауссова функция является медленно меняющейся, так что ее можно вынести из-под знака интеграла, положив $\Omega_i = \omega$. Если начало отсчета выбрано таким образом, что величина \vec{E} вещественна, то можно видеть, что для определения пороговых условий и выходной мощности необходима только величина $\text{Im}\{P\}$ (Im обо-

значает мнимую часть). Выполнив интегрирование, найдем

$$\operatorname{Im}\{P\} = -\frac{0,939N_V}{\omega \Delta\omega_G} K(\Delta\rho)^e \frac{\pi\tilde{E}}{\sqrt{1+|\tilde{E}|^2/|\tilde{E}|_{\text{нас}}^2}} \times \\ \times \exp\left(-\frac{2,8}{(\Delta\omega_G)^2}(\omega - \omega_0)^2\right). \quad (4.30)$$

Здесь значение K вычислено при $\Omega_i = \omega$. Для типичных характеристик лазеров $\omega^2 T_2^2 \gg 1 + |\tilde{E}|^2/|\tilde{E}|_{\text{нас}}^2$, и это неравенство используется для упрощения выражения (4.30).

Перейдем теперь к рассмотрению уравнения для резонатора (4.25). Член \dot{E}/τ_c в левой части этого уравнения характеризует уменьшение энергии, связанное с потерями в резонаторе. Если имеет место стационарный режим колебаний, то убыль энергии в резонаторе за счет потерь должна восполняться вводом энергии через активную среду. Если \tilde{E} — величина вещественная, то баланс потока энергии определяется из уравнения (4.25) путем приравнивания мнимых коэффициентов при $e^{i\omega t}$. Если генерация происходит на частоте, соответствующей максимуму гауссовой кривой, т. е. $\omega = \omega_0$, то из уравнения для поля резонатора и выражения (4.30) получим

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{0,939\pi N_V}{\epsilon_0 \Delta\omega_G} \frac{K(\Delta\rho)^e}{\sqrt{1+|\tilde{E}|^2/|\tilde{E}|_{\text{нас}}^2}}. \quad (4.31)$$

При пороговом значении величина лазерного поля исчезающе мала и в выражении (4.31) можно положить $\tilde{E} = 0$. Тогда пороговое значение $(\Delta\rho)_{\text{пор}}^e$ будет выражаться через величины лазерных характеристик и время жизни фотона.

Мощность накачки на единицу объема, необходимая для поддержания инверсии населенностей при пороговых условиях, определяется из (4.8) при $N_T^e = 0$, поскольку лазерные уровни не заселены при комнатной температуре (основной уровень не участвует в переходе) и при $N^e = \int (\Delta\rho)_{\text{пор}}^e d\mathcal{M} = N_V (\Delta\rho)_{\text{пор}}^e$. Используя значение $(\Delta\rho)_{\text{пор}}^e$, полученное из (4.31), и подставляя значение (4.29), находим величину пороговой мощности накачки на единицу объема

$$\mathcal{P}_{\text{пор}} = \frac{\hbar^2 \epsilon_0 \Delta\omega_G}{0,626\pi\tau_c T_1 |\mu_{12}|^2}. \quad (4.32)$$

Гелий-неоновый лазер имеет следующие типичные характеристики:

$$\begin{aligned}\omega &\approx 3 \cdot 10^{15} \text{ рад/сек}, \\ \Delta\omega_G &\approx 5 \cdot 10^9 \text{ рад/сек}, \\ T_1 &\approx 10^{-7} \text{ сек}, \quad \tau_c \approx 10^{-7} \text{ сек}, \\ |\mu_{12}| &\approx 1,4 \text{ дебай} = 1,4 \cdot \frac{10^{-29}}{3} \text{ к} \cdot \text{м}.\end{aligned}$$

Используя эти значения, получаем, что для поддержания инверсии населенностей при пороговых условиях для частоты генерации, соответствующей максимуму гауссовой кривой, величина мощности накачки на единицу объема будет равна $1,0 \text{ мвт/см}^3$. Сравнение выражений (4.32) и (4.20) показывает, что имеется одна и та же зависимость мощности накачки от лазерных характеристик как для газовых, так и для твердотельных лазеров, однако величина мощности накачки для газовых лазеров приблизительно на четыре порядка меньше, чем для твердотельных. Как будет показано в гл. 6, величина $T_1 |\mu_{12}|^2$ приблизительно постоянна для всех лазеров.

Разница в величине порогового значения мощности накачки объясняется тем, что отношение ширины линии поглощения к постоянной затухания резонатора $\Delta\omega_G/\tau_c$ в газовых и твердотельных лазерах различна. В твердотельных лазерах время релаксации энергии обычно на два порядка меньше, чем в газовых, в связи с большими потерями на рассеяние. Потери на рассеяние в типичных для лазеров стержнях длиной 10 см за одно прохождение составляют 10% , в то время как в газовом лазере длиной 1 м они имеют ничтожную величину и можно считать, что при наличии зеркал с коэффициентом отражения 99% теряется только 1% мощности за одно прохождение. Таким образом, время релаксации в газовых лазерах в 100 раз больше. Кроме того, ширина гауссовой линии поглощения гелий-неонового лазера на два порядка меньше, чем в твердотельных лазерах.

Поэтому величина отношения $\Delta\omega_G/\tau_c$, а следовательно, и величина пороговой мощности накачки для гелий-неонового лазера на четыре порядка меньше.

Мощность излучения лазера можно рассчитать на основании уравнения (4.31). Если разрешить это уравнение относительно $|E|^2$, то получим

$$|\tilde{E}|^2 = |\tilde{E}|_{\text{нас}}^2 \left[\left(\frac{N^e}{N_{\text{пор}}^e} \right)^2 - 1 \right]. \quad (4.33)$$

Здесь $N^e = N_V(\Delta\rho)^e$ — равновесная разность населенностей в единице объема при действии накачки, а $N_{\text{пор}}^e = N_V(\Delta\rho)_{\text{пор}}^e$ — поро-

говое значение разности населенностей в единице объема. Пользуясь выражением (4.12), получаем формулу для мощности излучения с единицы объема

$$\mathcal{P}_0 = \frac{\Phi \hbar \omega}{\tau_m} = \frac{\epsilon_0 |\tilde{E}|^2}{2\tau_m}. \quad (4.34)$$

Здесь τ_m — время жизни фотона, определяемое коэффициентом пропускания зеркала. Используя уравнения (4.33) и (4.34), запишем выражение, связывающее выходную мощность с единицы объема с параметрами лазера:

$$\mathcal{P}_0 = \frac{3\epsilon_0 \hbar^2}{\tau_m |\mu_{12}|^2 T_1 T_2} \left[\left(\frac{N^e}{N_{\text{пор}}^e} \right)^2 - 1 \right]. \quad (4.35)$$

Пользуясь значениями лазерных характеристик, приведенными выше для формулы (4.32), а также положив $\tau_m = \tau_c = 10^{-7}$ сек, $T_2 = 4 \cdot 10^{-8}$ сек и приняв объем 100 см^3 , получим мощность излучения 19 мвт , если накачка такова, что $N^e = 1,4 N_{\text{пор}}^e$.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Birnbaum G.*, Optical Masers, New York, 1964.
2. *Lamb W. E. Jr.*, Theory of an Optical Maser, Phys. Rev., **134**, No 6A, A1429-A1450, (June 15, 1964).
3. *Lengyel B. A.*, Introduction to Laser Physics, New York, 1966.
4. *Yariv A.*, Quantum Electronics, New York, 1967, Ch. 15—17.
5. *Smith W. V., Sorokin P. P.*, The Laser, New York, 1966.
6. *Gordon J. P., Zeiger H. J., Townes C. H.*, The Maser-A Type of Microwave Amplifier, Frequency Standard, and Spectrometer, Phys. Rev., **99**, 1264 (August 1955).
7. *Schawlow A. L., Townes C. H.*, Infrared and Optical Masers, Phys. Rev., **112**, 1940 (December 1958).
8. *Maiman T. H.*, Stimulated Optical Radiation in Ruby Masers, Nature, **187**, 493 (August 1960).
9. *Javan A., Bennett W. B., Jr., Herriott D. R.*, Population Inversion and Continuous Optical Maser Oscillation in a Gas Discharge Containing a He-Ne Mixture, Phys. Rev. Letters, **6**, 106 (February 1961).
10. American Institute of Physics Handbook, New York, 1957, Sect. 7—58.
11. *Mikaeliane A. L., Ter-Mikaeliane M. L., Turkov Y. G., Djatchenko V. V.*, The Utilization of Semiclassical and Rate Equations for the Design of Steady-State Optical Masers, paper presented at the 1966 International Quantum Electronics Conference, Arizona, April 12—15, 1966.
12. *Tang C. L., Statz H., deMars G., Jr.* Spectral Output and Spiking Behavior of Solid-State Lasers, Journ. Appl. Phys., **34**, No 8, 2289 (August 1963).
13. *Roess D.*, Single-mode Operation of a Room-Temperature CW Ruby Laser, Appl. Phys. Letters, **8**, № 5, 109 (March 1966).
14. *Hellwarth R. W.*, Control of Fluorescent Pulsations, в книге Advances in Quantum Electronics (ed. J. Singer), New York, 1961, p. 334.
15. *Wagner W. G., Lengyel B. A.*, Evolution of the Giant Pulse in a Laser, Journ. Appl. Phys., **34**, 7, 2040 (July 1963).
16. *Bennett W. R., Jr.*, Hole Burning Effects on a He-Ne Optical Maser, Phys. Rev., **126**, No 2, 580 (April 15, 1962).

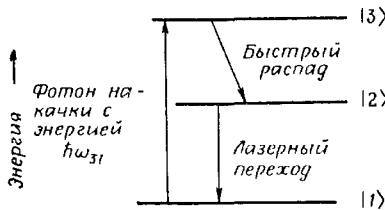
Задачи

4.1. Пусть имеется квадрупольный конденсатор для молекулярного генератора на аммиаке, в котором радиальная компонента электростатического поля задана в виде $3 \cdot 10^4 r^4$ в/см, а сила, действующая на частицу, определяется по формуле $\mathbf{F} = -\nabla \langle \mathcal{H} \rangle$.

а) Используя характеристики для перехода в аммиаке с частотой 23,87 Гц, найти зависимость от радиуса радиальной компоненты силы для верхнего и нижнего энергетических состояний молекул.

б) Используя фазовую плоскость $\dot{r}(r)$, построить график зависимости r от положения молекулы в конденсаторе для ее верхнего и нижнего состояний, предполагая, что направление начальной скорости совпадает с осью конденсатора.

4.2. В трехуровневом лазере для поддержания равновесной разности населенностей в единице объема N^e , величина которой отлична от N_T^e — значения при тепловом равновесии, поглощается



мощность от источника накачки. Поглощаемая мощность пропорциональна N_1 — числу молекул в единице объема, находящихся в состоянии $|1\rangle$, и величине $|E_p|^2$, где E_p — поле накачки. Кинетическое уравнение в этом случае имеет вид

Фиг. 4.17. Трехуровневый лазер.

$$\frac{\hbar\Omega}{2} \left[\dot{N} + \frac{N - N_T^e}{T_1} \right] = KN_1 |E_p|^2.$$

Здесь $N = N_2 - N_1$, K — некоторая постоянная. Дано, что $N_1 + N_2 \approx N_V$ равно числу активных ионов в единице объема, а $N_T^e \approx -N_V$.

а) Получить выражение для N^e .

б) Вычислить величину K при следующих условиях: излучение накачки поглощается переходом $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ с матричным элементом μ_{13} и шириной лоренцевой линии $\Delta\omega_{13}$. Время релаксации перехода $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ намного меньше времени релаксации перехода $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$. Среда изотропна, а уровни невырождены. На фиг. 4.17 изображен процесс накачки.

4.3. При наличии накачки время релаксации T_1' для перехода $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ отличается от времени релаксации T_1 в отсутствие накачки. Для $N^e = 0,2N_V$, $N_T^e = -N_V$ и $T_1 = 4 \cdot 10^{-3}$ сек. определить T_1' (здесь N_V — число активных ионов в единице объема).

4.4. Рассмотрим эффекты насыщения при неоднородном уширении линии на примере прожигания дырки в гелий-неоновом лазере. Из уравнения (3.28) гл. 3 можно показать, что коэффициент поглощения Γ для гауссовой кривой выражается следующим образом:

$$\Gamma(\omega, \omega_0) = \int_{-\infty}^{\infty} g_G(\Omega_l, \omega_0) \Gamma_L(\omega, \Omega_l) d\Omega_l.$$

Здесь g_G — гауссова функция, определяемая выражением (3.24); Γ_L — коэффициент поглощения для лоренцевой линии, определяемый с помощью выражений (3.13) и (3.14).

а) Для частоты $\omega = \omega_0$, соответствующей максимуму гауссовой кривой, показать, что

$$\Gamma(\omega_0, \omega_0) = \frac{\pi L}{\hbar \epsilon_0 c \eta} \frac{|\mu_{12}|^2}{3} (N_1 - N_2) e^{\frac{\omega_0 \sqrt{(4/\pi) \ln 2}}{b \Delta \omega_G}} \exp\{z^2(1 - \operatorname{erf} z)\},$$

где

$$z \equiv \frac{2(\ln 2)^{1/2}}{T_2 \Delta \omega_G} \sqrt{1 + \frac{I}{I_{\text{нас}}}}, \quad b \equiv \sqrt{1 + \frac{I}{I_{\text{нас}}}} \cdot \Delta \omega_G - \text{ширина линии.}$$

б) В предельном случае неоднородного уширения, когда $\Delta \omega_G \rightarrow \infty$, показать, что

$$\Gamma = \Gamma_{\text{ненас}} \frac{1}{\sqrt{1 + I/I_{\text{нас}}}},$$

и в предельном случае однородного уширения, когда $\Delta \omega_G \rightarrow 0$, показать, что

$$\Gamma = \Gamma_{\text{ненас}} \frac{1}{1 + I/I_{\text{нас}}}.$$

Здесь $\Gamma_{\text{ненас}}$ — коэффициент поглощения при $I \rightarrow 0$.

4.5. В каждом из приведенных ниже примеров указать, является уширение однородным или неоднородным и почему. Уширение обусловлено:

а) релаксацией при спонтанном излучении (естественное уширение),

б) распределением скоростей (доплеровское уширение),

в) соударениями с подобными молекулами в газе (хольцмарковское уширение),

г) соударениями с молекулами инородного газа (лоренцево уширение),

д) электрическим полем, создаваемым ионами и электронами (уширение, вызванное эффектом Штарка).

В чем состоит существенная разница между однородным и неоднородным уширением?

4.6. Основываясь на рассуждениях, приведенных в гл. 3, § 4, п. 2, можно изучить эффекты затягивания частоты в лазере. Используя условия:

$$\frac{\Omega}{2\pi} = \text{резонансная частота активной среды} = 2,6 \cdot 10^{15} \text{ гц},$$

$$\frac{\omega_c}{2\pi} = \text{резонансная частота резонатора} = \frac{\Omega}{2\pi} + 100 \text{ Мгц},$$

$$\tau_c = 2 \cdot 10^{-9} \text{ сек},$$

$$2/T_2 = 2\pi \cdot 3,3 \cdot 10^{11} \text{ гц},$$

а) определить частоту излучения лазера,

б) показать, что в стационарном режиме значение разности населенностей в единице объема в случае $\omega_c \neq \Omega$ определяется следующим образом:

$$\frac{N}{N_0} \approx 1 + \left(\frac{\omega_c - \Omega}{2/T_2} \right)^2.$$

Здесь N_0 — резонансная разность населенностей в единице объема, определяемая выражением (3.80).

4.7. Пусть два лазерных уровня имеют кратности вырождения g_1 и g_2 . Модифицировать следующие выражения:

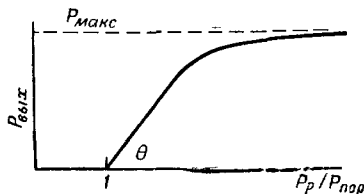
а) уравнение (4.9) для плотности пороговой мощности накачки,

б) уравнение (4.14) для выходной мощности в стационарном режиме,

в) уравнение (4.17) для энергии импульса,

г) уравнение (4.19) для режима модулированной добротности лазера.

4.8. Для трехуровневого лазера выразить выходную мощность в стационарном режиме $P_{\text{вых}}$ через отношение $P_p/P_{\text{пор}}$, где P_p — мощность накачки, $P_{\text{пор}}$ — пороговая мощность накачки.



Фиг. 4.18.

Показать, что зависимость $P_{\text{вых}}$ от P_p будет такой, какая изображена на фиг. 4.18. Получить выражения для θ и $P_{\text{макс}}$. (Пренебречь зависимостью величины T_1 от мощности накачки, как это обсуждалось в задаче 4.3.)

4.9. Для примера с рубиновым лазером вычислить ошибку в определении частоты излучения в случае использования соотношения $E_{\text{макр}} = E_{\text{лок}}$. Пренебречь анизотропией.

4.10. Используя характеристики, приведенные для неодимового лазера, рассчитать пиковую мощность в единице объема,

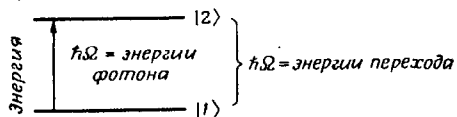
выходную энергию в единице объема и длительность импульса для лазера, работающего в режиме модуляции добротности.

4.11. Гелий-неоновый лазер выполнен таким образом, что одно зеркало является полностью отражающим, а выходное зеркало имеет переменный коэффициент отражения. Пусть потери составляют 1% на одно прохождение в резонаторе, если выходное зеркало является полностью отражающим. Равновесная разность населенностей в единице объема N^e поддерживается постоянной и в 1,2 раза превышает пороговую разность населенностей, если выходное зеркало является полностью отражающим. Используя характеристики гелий-неонового лазера, определить зависимость выходной мощности от отражающей способности выходного зеркала. Эта зависимость может быть получена при одновременном решении уравнений (4.31), (4.33) и (4.34). Начертить график изменения выходной мощности, если коэффициент отражения меняется от 0,1 до 0,9.

4.12. Преобразовать правую часть выражения (3.3б) для случая, когда поляризация \mathbf{P} не целиком заполняет объем резонатора. Это в свою очередь приводит к изменению вида выражения (3.79), из которого определяется величина N_0 . Рассчитать коэффициент, на который надо умножить (4.6), чтобы учесть частичное заполнение объема резонатора активной средой. Этот коэффициент называется фактором заполнения.

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

Явления, рассмотренные в гл. 2—4, включали процессы взаимодействия излучения с веществом для случая, когда частота излучения близка к частоте переходов в среде. Если поле квантовано, т. е. электромагнитная энергия выражается через энергию фотона, то рассмотренные явления можно отнести к категории однофотонных эффектов. Сущность этих эффектов состоит в том, что при поглощении одного фотона в среде происходит переход в более высокое энергетическое состояние, и наоборот, при излучении одного фотона наблюдается соответствующее умень-



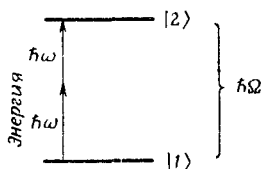
Фиг. 5.1. Процесс однофотонного взаимодействия в случае, когда энергия фотона приблизительно равна энергии перехода.

шение энергии в среде. На фиг. 5.1 показаны энергетические уровни для однофотонного процесса взаимодействия.

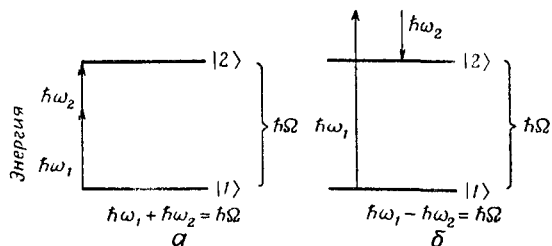
Если внимательно рассмотреть уравнения для оператора плотности или полуклассические уравнения, приведенные в гл. 2, то видно, что они являются нелинейными. Наличие произведений переменных в этих уравнениях говорит о том, что кроме однофотонных эффектов, рассмотренных в гл. 2—4, могут иметь место нелинейные процессы. Например, наблюдалось [1, 2], что в некоторых веществах резонансное поглощение электромагнитного излучения происходит на частоте, которая вдвое меньше частоты перехода. Такой вид взаимодействия называется двухфотонным поглощением, поскольку для того, чтобы в среде возникал переход, необходимо поглощение двух фотонов. Это иллюстрируется на фиг. 5.2. Следует заметить, что энергия сохраняется при двухфотонном поглощении так же, как и при однофотонном, поскольку поглощенная энергия равна изменению энергии вещества.

Разновидностями двухфотонных процессов являются поглощение излучения двух различных частот при условии, что сумма частот излучения равна частоте перехода, и рамановское рас-

сеяние¹⁾, при котором происходит поглощение излучения на частоте, большей, чем частота перехода, и излучение на разностной частоте. Эти эффекты иллюстрируются на фиг. 5.3. Из рассмотрения этих процессов на языке фотонов видно, что закон сохранения энергии выполняется.



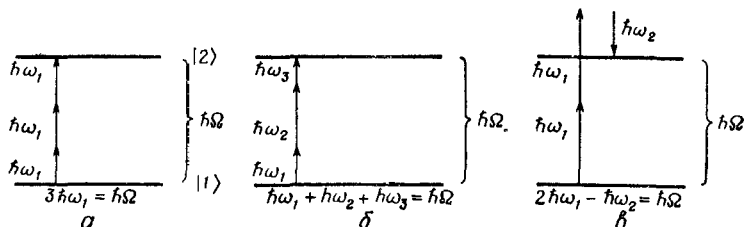
Фиг. 5.2. Двухфотонное поглощение, в котором переход осуществляется за счет взаимодействия с излучением с частотой, равной половине частоты перехода.



Фиг. 5.3. Возможные двухфотонные процессы.

a — соотношение энергий для поглощения при двух различных частотах; *б* — энергетическая диаграмма для рамановского рассеяния.

Взаимодействия, аналогичные двухфотонным процессам, существуют и для большего числа фотонов. Трехфотонное поглощение представлено на фиг. 5.4, *a*; трехфотонное поглощение



Фиг. 5.4. Некоторые возможные трехфотонные процессы.

a — трехфотонное поглощение; *б* — поглощение на различных частотах; *в* — рамановское рассеяние.

различных частот показано на фиг. 5.4, *б*, а возможный трехфотонный рамановский процесс, при котором поглощаются два фо-

¹⁾ Открыто в 1928 г. Раманом и Кришнаном в жидкостях и одновременно Г. С. Ландсбергом и Л. И. Мандельштамом при исследовании рассеяния света в кристаллах. В отечественной литературе называется комбинационным рассеянием. — *Прим. перев.*

тона с частотой ω_1 , излучается один фотон с частотой ω_2 и в среде происходит переход из состояния $|1\rangle$ в состояние $|2\rangle$, изображен на фиг. 5.4, в.

Существует несколько причин, стимулирующих изучение нелинейных процессов в квантованных средах. Многофотонные эффекты могут дать информацию, относящуюся к таким свойствам вещества, как четность состояний или силы осцилляторов переходов [3]. Например, если собственные состояния имеют определенную четность, двухфотонное поглощение возникает между состояниями одинаковой четности. Поэтому такой нелинейный эффект можно использовать для изучения связи между состояниями, когда электрический дипольный переход не может быть полезен для этой цели, поскольку он имеет место между состояниями противоположной четности. Другая причина состоит в том, что, хотя здесь рассматриваются исключительно нелинейности в квантованной среде, сами нелинейные эффекты обладают общими свойствами независимо от особенностей нелинейных элементов. Будет показано, что вероятность трехфотонного поглощения, сопровождающегося излучением на частоте перехода, имеет кубическую зависимость от падающего излучения. Это же справедливо при генерации третьей гармоники в любом нелинейном материале, пока, конечно, эффекты насыщения не изменят кубическую зависимость. Еще одна причина для изучения таких нелинейных процессов состоит в том, что большинство макроскопических нелинейных свойств материалов обусловлено многофотонными процессами, происходящими между уровнями энергии или энергетическими полосами. Нелинейные элементы находят весьма широкие применения в конструкциях генераторов гармоник, модуляторов, детекторов и параметрических генераторов для широкого диапазона частот. Наконец, изучение многофотонных процессов — интересный пример, иллюстрирующий применение методов теории возмущений к квантованным средам. В гл. 8, § 4, п. 2, обсуждается не прямой переход в полупроводниках, который является фонон-фотонным процессом, имеющим общие характерные черты с многофотонными эффектами. Методика, используемая для анализа не прямых переходов, чрезвычайно близка к методике анализа двухфотонных переходов.

Появление лазера, создающего интенсивное оптическое излучение, вызвало возрастающий интерес к многофотонным процессам, поскольку n -фотонный эффект имеет вероятность перехода, зависящую от n -й степени мощности падающего излучения. Поэтому с увеличением интенсивности источника света такие эффекты проявляются сильнее. Ряд экспериментов по изучению многофотонных процессов с помощью лазера описан в литературе, приведенной в конце главы [4, 5].

В этой главе будут выведены условия, при выполнении которых возникают многофотонные процессы, и вычислена вероятность этих событий через вероятность перехода или эффективное сечение рассеяния. Рассмотрению четности состояний и вероятностей перехода посвящен § 2. Эффективное сечение рассеяния при двухфотонном поглощении между состояниями одинаковой четности и при трехфотонном поглощении между состояниями противоположной четности вычисляется в § 3. Генерация гармоник как результат многофотонного поглощения рассматривается в § 4. Выяснению зависимости частоты перехода от интенсивности электромагнитного поля посвящен § 5. В § 6 рассматривается рамановское рассеяние.

§ 2. ЧЕТНОСТЬ И ВЕРОЯТНОСТИ ПЕРЕХОДОВ

Вероятность перехода при многофотонном поглощении вычисляется на основании методов теории возмущений, применяемых к уравнениям движения для оператора плотности. Предположим, что к гамильтониану добавляется член \mathcal{H}' , характеризующий взаимодействие или возмущение, и что он значительно меньше, чем \mathcal{H}_0 — невозмущенный гамильтониан. Тогда полный гамильтониан записывается в виде

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \lambda \mathcal{H}'. \quad (5.1)$$

Здесь λ — параметр, характеризующий возмущение. Каждый элемент матрицы плотности можно разложить по степеням λ , причем показатель степени обозначает порядок возмущения

$$\rho_{ij} = \sum_p \lambda^p \rho_{ij}^{(p)}. \quad (5.2)$$

Возмущение первого порядка матричного элемента ρ_{ij} записывается как $\rho_{ij}^{(1)}$ и пропорционально \mathcal{H}' ; возмущение второго порядка элемента ρ_{ij} записывается как $\rho_{ij}^{(2)}$ и пропорционально $(\mathcal{H}')^2$ и т. д. Под вероятностью перехода W понимается вероятность того, что система переходит из одного собственного состояния в другое в единицу времени. Поэтому если рассматривается система, находящаяся в состоянии $|1\rangle$ при $t = 0$, так что

$$\rho_{ij}(t = 0) = \delta_{i1} \delta_{j1}, \quad (5.3)$$

то вероятность перехода из состояния $|1\rangle$ в состояние $|k\rangle$ выражается следующим образом:

$$W = \frac{\overline{\partial \rho_{kk}}}{\partial t}. \quad (5.4)$$

Здесь черта обозначает усреднение по времени за период гармонического возмущения. Усреднение по времени производится

потому, что вероятность W должна характеризовать изменение населенности за интервалы времени, большие по сравнению с периодом гармонического возмущения.

Поскольку мы интересуемся только индуцированными переходами между собственными состояниями и не рассматриваем переходы, возникающие в результате релаксационных процессов, то соответствующие уравнения движения для диагональных элементов оператора плотности получаются из (1.31) при $W_{kj} = 0$:

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}}{\partial t} = [\lambda \mathcal{H}', \rho]_{jj}. \quad (5.5)$$

Если воспользоваться разложением (5.2) матричного элемента ρ_{jj} по степеням λ , подставляя его в (5.5) и приравнивая члены с одинаковыми степенями λ , то можно получить выражение для вычисления возмущения p -го порядка элемента ρ_{jj}

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(p)}}{\partial t} = [\mathcal{H}', \rho^{(p-1)}]_{jj}. \quad (5.6)$$

Аналогичным образом из (1.30) можно определить возмущение p -го порядка недиагональных матричных элементов оператора плотности

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{ij} + \frac{1}{\tau_{ij}} \right) \rho_{ij}^{(p)} = [\mathcal{H}', \rho^{(p-1)}]_{ij} \quad \text{при } i \neq j. \quad (5.7)$$

Продолжим теперь вычисление вероятностей перехода с помощью (5.6) и (5.7). Из выражения (5.6) получим

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(0)}}{\partial t} = 0, \quad (5.8)$$

а из выражения (5.7)

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{ij} + \frac{1}{\tau_{ij}} \right) \rho_{ij}^{(0)} = 0 \quad \text{при } i \neq j. \quad (5.9)$$

На основании условия (5.3), означающего, что система вначале находится в состоянии $|1\rangle$, из уравнений (5.8) и (5.9) получаем

$$\rho_{ij}^{(0)} = \delta_{i1} \delta_{j1}. \quad (5.10)$$

Если коммутатор в (5.6) записать в виде суммы, то возмущение первого порядка $\rho_{jj}^{(1)}$ можно выразить в виде

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(1)}}{\partial t} = \sum_k (\mathcal{H}'_{jk} \rho_{kj}^{(0)} - \rho_{jk}^{(0)} \mathcal{H}'_{kj}). \quad (5.11)$$

Используя выражение (5.10) для матричных элементов $\rho_{jk}^{(0)}$, имеем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}^{(1)}}{\partial t} = 0. \quad (5.12)$$

Учет начальных условий (5.3) вместе с выражением (5.12) дает

$$\rho_{ij}^{(1)} = 0. \quad (5.13)$$

Из выражения (5.7) возмущения первого порядка для недиагональных матричных элементов определяются выражением

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{ij} + \frac{1}{\tau_{ij}} \right) \rho_{ij}^{(1)} = \sum_k (\mathcal{H}'_{ik} \rho_{kj}^{(0)} - \rho_{ik}^{(0)} \mathcal{H}'_{ki}), \quad i \neq j,$$

и из (5.10) имеем

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{i1} + \frac{1}{\tau_{i1}} \right) \rho_{i1}^{(1)} = \mathcal{H}'_{i1}. \quad (5.14)$$

Поскольку оператор ρ эрмитов, то $\rho_{i1}^{(1)} = (\rho_{1i}^{(1)})^*$. Все другие недиагональные матричные элементы первого порядка $\rho_{ij}^{(1)}$ равны нулю. Чтобы определить вероятность перехода при синусоидальном возбуждении, оператор \mathcal{H}' удобно представить в виде

$$\mathcal{H}' = \frac{\tilde{\mathcal{H}}'}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \quad (5.15)$$

и соответствующее стационарное решение для $\rho_{i1}^{(1)}$ определяется из (5.14):

$$\rho_{i1}^{(1)} = \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{i1} e^{i\omega t}}{2i\hbar (i\omega + i\omega_{i1} + 1/\tau_{i1})} + \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{i1} e^{-i\omega t}}{2i\hbar (-i\omega + i\omega_{i1} + 1/\tau_{i1})}. \quad (5.16)$$

Для определения вероятности перехода W необходимо вычислить производную $\overline{\partial \rho_{ij} / \partial t}$, величина которой, как было показано, равна нулю с точностью до членов второго порядка. Поэтому величина наименьшего порядка для W определяется из производной $\overline{\partial \rho_{ij}^{(2)} / \partial t}$, которую можно найти из (5.6).

Из уравнения (5.6) имеем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{ij}^{(2)}}{\partial t} = \sum_k (\mathcal{H}'_{ik} \rho_{kj}^{(1)} - \rho_{ik}^{(1)} \mathcal{H}'_{ki}) = \mathcal{H}'_{i1} \rho_{1j}^{(1)} - \rho_{j1}^{(1)} \mathcal{H}'_{i1}. \quad (5.17)$$

В правой части этого уравнения остались только отличные от нуля члены первого порядка $\rho_{1j}^{(1)}$ и $\rho_{j1}^{(1)}$. Подставив выражение

(5.16) для $\rho_{jj}^{(1)}$ в (5.17) и воспользовавшись выражением

$$\mathcal{H}'_{1j} = \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{1j}}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}),$$

получим

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(2)}}{\partial t} = \left(- \frac{|\tilde{\mathcal{H}}'_{1j}|^2}{4i\hbar (-i\omega - i\omega_{j1} + 1/\tau_{j1})} - \frac{|\tilde{\mathcal{H}}'_{1j}|^2}{4i\hbar (i\omega - i\omega_{j1} + 1/\tau_{j1})} - \text{компл. сопр.} \right) + B. \quad (5.18)$$

Здесь через B обозначена сумма членов, содержащих временную зависимость вида $e^{\pm 2i\omega t}$. Усредняя по времени правую и левую части уравнения (5.18), исключим B и, комбинируя оставшиеся в правой части члены, получаем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{jj}^{(2)}}{\partial t} = \frac{i|\tilde{\mathcal{H}}'_{1j}|^2}{2\hbar\tau_{j1}} \left(\frac{1}{(\omega - \omega_{j1})^2 + 1/\tau_{j1}^2} + \frac{1}{(\omega + \omega_{j1})^2 + 1/\tau_{j1}^2} \right). \quad (5.19)$$

При $\omega \approx \omega_{j1}$ первый член в правой части выражения (5.19) становится большим и характеризует резонансный эффект, соответствующий однофотонному поглощению. В этом случае ($\omega \approx \omega_{j1}$) последним членом в правой части выражения (5.19) можно пренебречь, так что вероятность перехода при однофотонном поглощении $W_{(1)}$ будет определяться следующим выражением:

$$W_{(1)} = \frac{\overline{\partial \rho_{jj}^{(2)}}}{\partial t} = \frac{|\tilde{\mathcal{H}}'_{1j}|^2}{2\hbar^2} \pi g_L(\omega). \quad (5.20)$$

Здесь $g_L(\omega)$ — лоренцева функция формы линии (3.22). Вероятность $W_{(1)}$ для двухуровневого электрического дипольного перехода в изотропной среде, для которой

$$|\mathcal{H}'_1|^2 = \frac{|\mu_{12}|^2}{3} |\tilde{E}|^2,$$

будет поэтому равна

$$W_{(1)} = \frac{|\mu_{12}|^2 |\tilde{E}|^2}{6\hbar^2} \pi g_L(\omega). \quad (5.21)$$

При резонансе (когда $\omega = \omega_{21}$) $\pi g_L(\omega_{21}) = \tau_{21} = T_2$ и выражение для вероятности $W_{(1)}$ становится идентично выражению (3.85) при $L = 1$. Именно это значение имеет величина L для изолированной молекулы. Уравнение (5.21) получено для отдельной молекулы, поэтому $g(\omega)$ является лоренцевой функцией. Для большого числа молекул, когда имеется доплеровское уширение линии, уравнение (5.21) остается справедливым, если $g_L(\omega)$

заменить гауссовой функцией (3.24). При резонансе для гауссовой функции

$$g_G(\omega_{21}) = \frac{2}{\Delta\omega_G} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}},$$

где $\Delta\omega_G$ — ширина линии.

При выводе вероятности перехода предполагалось выполнение следующих условий:

1. Применяется одночастотный источник излучения. Это предположение выполняется, если ширина спектра падающего излучения значительно меньше ширины линии перехода, что почти всегда будет иметь место в случае лазерного источника. Если это условие не выполняется, то для падающего сигнала можно применить разложение Фурье, а вероятность перехода вычисляется путем интегрирования по частотному диапазону.

2. Предполагается, что отношение частоты перехода к ширине линии намного больше единицы. При переходе от (5.19) к (5.20) говорилось, что величина $[(\omega - \omega_{j1})^2 + 1/\tau_{j1}^2]^{-1}$ становится большой вблизи резонанса, т. е. предполагается, что $\omega_{j1}\tau_{j1} \gg 1$, а это эквивалентно допущению, что отношение частоты перехода к ширине линии должно быть намного больше единицы.

3. Вероятность перехода вычислялась путем усреднения по времени за период гармонического возмущения. Чтобы такое усреднение было справедливым, время перехода, характеризующее обратной величиной вероятности перехода, должно быть значительно больше периода гармонического возмущения, т. е. $\omega/2\pi W \gg 1$, где $2\pi/\omega$ — период колебаний, а W — вероятность перехода. В соответствии с (5.20) это значит, что

$$\frac{|\tilde{\mathcal{H}}'_{j1}|^2}{\hbar^2} \frac{\pi^2 g_L(\omega)}{\omega} \ll 1. \quad (5.22)$$

Неравенство (5.22) определяет верхний предел интенсивности падающего излучения для заданной частоты перехода и заданного дипольного матричного элемента. Для оптических переходов это условие справедливо даже в том случае, когда в качестве источника используется сфокусированный пучок лазера, работающего в режиме модуляции добротности. В диапазоне СВЧ это условие почти всегда выполняется, однако при использовании генераторов киловаттной мощности и полых резонаторов это требование нарушается.

Любой метод теории возмущений требует, чтобы степенной ряд по λ сходил, и это условие справедливо при выполнении неравенства (5.22). Вычисляя вероятности перехода при многофотонном поглощении, мы будем предполагать, что упомянутые выше условия имеют место.

Тем же методом, который применялся для вычисления вероятности перехода при однофотонном поглощении, из членов, характеризующих возмущение высшего порядка, может быть получена вероятность перехода между состояниями $|1\rangle$ и $|j\rangle$ при двухфотонном поглощении. Если частота падающего излучения равна половине частоты перехода ω_{j1} , то резонансный эффект при двухфотонном поглощении описывается элементами матрицы плотности, содержащими множитель

$$\frac{1}{i(2\omega - \omega_{j1}) + 1/\tau_{j1}}. \quad (5.23)$$

Величина этого выражения становится большой при $\omega \approx \approx \omega_{j1}/2$. Появление множителя такого вида связано с наличием в правой части уравнения (5.7) членов с временной зависимостью вида $e^{2i\omega t}$ для ρ_{1j} или членов с временной зависимостью вида $e^{-2i\omega t}$ для ρ_{j1} . Если выписать уравнение для $\rho_{1j}^{(2)}$ [на основании (5.7)]

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{1j} + \frac{1}{\tau_{1j}} \right) \rho_{1j}^{(2)} = \sum_l (\mathcal{H}'_{1l} \rho_{lj}^{(1)} - \rho_{1l}^{(1)} \mathcal{H}'_{lj}), \quad (5.24)$$

то можно видеть, что справа имеются члены с временной зависимостью вида $e^{2i\omega t}$. Действительно, так как

$$\mathcal{H}'_{lj} = \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{lj}}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$$

и так как $\rho_{lj}^{(1)}$ имеет временную зависимость вида $e^{\pm i\omega t}$, как это видно из (5.16), то произведение $\rho_{lj}^{(1)} \mathcal{H}'_{lj}$ будет содержать члены с $e^{2i\omega t}$. Если подставить выражение (5.16) в (5.24), то в выражении для $\rho_{1j}^{(2)}$ коэффициент при члене, содержащем $e^{2i\omega t}$, будет удовлетворять соотношению

$$i\hbar \left(2i\omega - i\omega_{j1} + \frac{1}{\tau_{j1}} \right) \rho_{1j}^{(2)} = \frac{1}{4i\hbar} \sum_l \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{1l} \tilde{\mathcal{H}}'_{lj}}{(i\omega - i\omega_{l1} + 1/\tau_{l1})}, \quad (5.25)$$

причем использовались равенства $\omega_{l1} = -\omega_{1l}$ и $\tau_{l1} = \tau_{1l}$. Знаменатель дроби, стоящий под знаком суммы в (5.25), можно упростить, если принять во внимание, что $|\omega - \omega_{l1}| \tau_{l1} \gg 1$; это означает, что отсутствует непосредственное поглощение излучения. Тогда, решая (5.25) относительно $\rho_{1j}^{(2)}$, имеем

$$\rho_{1j}^{(2)} = \frac{1}{4\hbar^2 (2\omega - \omega_{j1} - i/\tau_{j1})} \sum_l \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{1l} \tilde{\mathcal{H}}'_{lj}}{(\omega - \omega_{l1})}. \quad (5.26)$$

Так как оператор ρ эрмитов, то $\rho_{j1}^{(2)} = [\rho_{1j}^{(2)}]^*$.

Теперь получены члены с резонансным знаменателем для двухфотонного поглощения, и вероятность перехода из основного состояния в состояние $|j\rangle$ может быть вычислена из $\overline{\partial\rho_{jj}/\partial t}$. Выражение для $\partial\rho_{jj}^{(3)}/\partial t$, как видно из (5.6), содержит произведение $\rho_{jj}^{(2)}$ и \mathcal{H}'_{jj} , где первый член имеет временную зависимость вида $e^{2i\omega t}$, второй — вида $e^{\pm i\omega t}$, так что $\partial\rho_{jj}^{(3)}/\partial t$ не имеет членов, не зависящих от времени. Поэтому вероятность перехода, обусловленного возмущением третьего порядка $\overline{\partial\rho_{jj}^{(3)}/\partial t}$, равна нулю. Теперь необходимо вычислить $\partial\rho_{jj}^{(4)}/\partial t$. Из уравнения (5.6) имеем

$$i\hbar \frac{\partial\rho_{jj}^{(4)}}{\partial t} = \sum_q (\mathcal{H}'_{jq}\rho_{qi}^{(3)} - \rho_{jq}^{(3)}\mathcal{H}'_{qi}), \quad (5.27)$$

где $\rho_{qi}^{(3)}$ определяется из (5.7):

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{qi} + \frac{1}{\tau_{qi}} \right) \rho_{qi}^{(3)} = \sum_f (\mathcal{H}'_{qf}\rho_{fi}^{(2)} - \rho_{qf}^{(2)}\mathcal{H}'_{fi}). \quad (5.28)$$

Поскольку резонансный знаменатель для двухфотонного поглощения с переходом в состояние $|j\rangle$ имеют только члены $\rho_{ij}^{(2)}$ и $\rho_{ji}^{(2)}$, то, сохраняя в (5.28) только их, можно записать

$$i\hbar \left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{qi} + \frac{1}{\tau_{qi}} \right) \rho_{qi}^{(3)} = \rho_{ij}^{(2)} (\mathcal{H}'_{qi} - \mathcal{H}'_{ij}\delta_{qi}). \quad (5.29)$$

Дальнейшее упрощение можно провести, если учесть, что не зависящие от времени члены в (5.27) обусловлены наличием членов в $\rho_{qi}^{(3)}$, содержащих временную зависимость вида $e^{\pm i\omega t}$. Поскольку в $\rho_{ij}^{(2)}$ существенны только члены, имеющие временную зависимость вида $e^{2i\omega t}$, то в правой части уравнения (5.29) представляют интерес только те члены, которые содержат временную зависимость вида $e^{i\omega t}$, так как \mathcal{H}' меняется как $e^{\pm i\omega t}$. Поэтому $\partial/\partial t \rightarrow i\omega$ и, учитывая условие $|\omega + \omega_{qj}| \tau_{qj} \gg 1$, получаем

$$\rho_{qi}^{(3)} = - \frac{\rho_{ij}^{(2)} (\tilde{\mathcal{H}}'_{qi} - \tilde{\mathcal{H}}'_{ij}\delta_{qi})}{2\hbar(\omega + \omega_{qi})}. \quad (5.30)$$

Комбинируя (5.27) и (5.30) и записывая временную зависимость \mathcal{H}'_{qi} в виде $(\tilde{\mathcal{H}}'_{qi}/2)(e^{i\omega t} + e^{-i\omega t})$, получаем выражение для членов в $i\hbar(\partial\rho_{jj}^{(4)}/\partial t)$, не зависящих от времени:

$$i\hbar \frac{\partial\rho_{jj}^{(4)}}{\partial t} = \sum_q \frac{1}{4\hbar(\omega - \omega_{qi})} (\tilde{\mathcal{H}}'_{jq}\tilde{\mathcal{H}}'_{qi}\rho_{ij}^{(2)} - \tilde{\mathcal{H}}'_{qi}\tilde{\mathcal{H}}'_{jq}\rho_{ji}^{(2)}). \quad (5.31)$$

При выводе уравнения (5.31) принималось во внимание следующее соотношение:

$$\frac{1}{\omega + \omega_{q1}} = \frac{1}{\omega + (\omega_{q1} + \omega_{j1})} = \frac{1}{\omega + \omega_{q1} - \omega_{j1}} \approx \frac{1}{\omega + \omega_{q1} - 2\omega} = -\frac{1}{\omega - \omega_{q1}}.$$

Вероятность перехода при двухфотонном поглощении $W_{(2)}$ равна $W_{(2)} = \partial \rho_{jj}^{(4)} / \partial t$. Подставляя (5.26) в уравнение (5.31), находим

$$\begin{aligned} W_{(2)} &= \frac{1}{16i\hbar^4} \left(\frac{1}{2\omega - \omega_{j1} - i/\tau_{j1}} \sum_q \frac{\tilde{\mathcal{H}}_{jq}^1 \tilde{\mathcal{H}}'_{q1}}{\omega - \omega_{q1}} \sum_l \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{lj} \tilde{\mathcal{H}}'_{l1}}{\omega - \omega_{l1}} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{2\omega - \omega_{j1} + i/\tau_{j1}} \sum_q \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{qj} \tilde{\mathcal{H}}'_{jq}}{\omega - \omega_{q1}} \sum_l \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{jl} \tilde{\mathcal{H}}'_{l1}}{\omega - \omega_{l1}} \right) = \\ &= \frac{\pi g_L(2\omega)}{8\hbar^4} \left| \sum_q \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{jq} \tilde{\mathcal{H}}'_{q1}}{\omega - \omega_{q1}} \right|^2. \end{aligned} \quad (5.32)$$

Здесь

$$g_L(2\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{1/\tau_{j1}}{(2\omega - \omega_{j1})^2 + 1/\tau_{j1}^2}$$

есть нормированная лоренцева кривая. Так же, как и при однофотонном поглощении, величина $g_G(2\omega)$ определяется из (3.24) для гауссовой формы линии.

Мы видим, что $W_{(2)}$ пропорционально четвертой степени поля, а потому имеет квадратичную зависимость от интенсивности излучения. Это справедливо для электрического дипольного, электрического квадрупольного и магнитного дипольного взаимодействий, когда \mathcal{H}' линейно зависит от электрического или магнитного поля. С другой стороны, вероятность $W_{(1)}$ имеет линейную зависимость от интенсивности излучения.

В гл. 2 обсуждались требования к четности состояний при однофотонном поглощении. Для состояний определенной четности, если \mathcal{H}' — электрическое дипольное взаимодействие, состояния $|1\rangle$ и $|j\rangle$ должны иметь противоположную четность, чтобы величина $\tilde{\mathcal{H}}'_{j1}$ была отлична от нуля, поскольку дипольный оператор имеет отрицательную четность. Электрические квадрупольные и магнитные дипольные переходы имеют место между состояниями одинаковой четности. Рассмотрим условия четности при двухфотонном поглощении, вероятность которого определяется выражением (5.32). Если \mathcal{H}' — электрическое дипольное взаимодействие, то, когда состояние $|1\rangle$ имеет положительную четность, состояние $|q\rangle$ должно иметь отрицательную

четность для ненулевого значения \mathcal{H}'_{q1} и аналогично состояние $|j\rangle$ должно иметь положительную четность для ненулевого значения \mathcal{H}'_{jq} . Поэтому двухфотонное поглощение при электрическом дипольном взаимодействии может возникнуть только между состояниями одинаковой четности. Если \mathcal{H}' — электрическое квадрупольное или магнитное дипольное взаимодействие, то двухфотонное поглощение возникает также между состояниями одинаковой четности, однако для переходов на оптических частотах вероятности перехода приблизительно на двенадцать порядков меньше, чем для электрического дипольного взаимодействия. Между состояниями, имеющими различную четность, наиболее интенсивное двухфотонное поглощение возникает вследствие комбинации электрического дипольного и электрического квадрупольного или магнитного дипольного переходов. Это значит, что \mathcal{H}'_{q1} может быть электрическим дипольным переходом между состояниями $|q\rangle$ и $|1\rangle$, имеющими различную четность, а \mathcal{H}'_{jq} — электрическим квадрупольным переходом между состояниями $|j\rangle$ и $|q\rangle$, имеющими одинаковую четность. В этом случае состояния $|j\rangle$ и $|1\rangle$ имеют противоположную четность. При переходах на оптических частотах двухфотонное поглощение в переходах между состояниями, имеющими противоположную четность, приблизительно на шесть порядков слабее, чем двухфотонное поглощение в переходах между состояниями с одинаковой четностью, поскольку в последнем случае включаются электрические квадрупольные переходы.

Если в двухфотонном поглощении участвуют только два уровня, что действительно имеет место, только когда единственный отличный от нуля член в (5.32) соответствует значениям $q = 1$ или $q = j$, то при электрическом дипольном взаимодействии необходимо, чтобы состояния $|1\rangle$ или $|j\rangle$ имели смешанную четность. Например, если значению $q = 1$ соответствует единственный отличный от нуля член в (5.32), то \mathcal{H}'_{11} будет множителем в выражении для $W_{(2)}$. Это означает, что состояние $|1\rangle$ должно иметь смешанную четность, поскольку электрический дипольный оператор имеет отрицательную четность. В изолированном атоме собственные состояния имеют определенную четность, так что двухфотонное поглощение не может возникать при электрическом дипольном взаимодействии, в котором участвуют только два уровня. Однако в кристалле симметрия гамильтониана относительно инверсии может исчезнуть при наличии локального поля, и тогда состояния могут иметь смешанную четность. То же самое имеет место, когда к среде приложено постоянное поле.

Вероятность перехода при трехфотонном поглощении в переходе между состояниями $|1\rangle$ и $|j\rangle$ вычисляется из $\partial \rho_{jj}^{(6)} / \partial t$,

откуда мы находим резонансный член вида

$$\frac{1}{i(3\omega - \omega_{j1}) + 1/\tau_{j1}}.$$

Методика вычисления $W_{(3)}$ аналогична методике вычисления $W_{(2)}$, поэтому получаем

$$W_{(3)} = \frac{\pi g_L(3\omega)}{32\hbar^6} \left| \sum_{q, k} \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{1q} \tilde{\mathcal{H}}'_{qk} \tilde{\mathcal{H}}'_{k1}}{(2\omega - \omega_{q1})(\omega - \omega_{k1})} \right|^2. \quad (5.33)$$

Вывод формулы для $W_{(3)}$ не приводится, так как он аналогичен выводу выражения (5.32). Видно, что величина $W_{(3)}$ имеет кубическую зависимость от мощности падающего излучения как для электрического дипольного, так и для электрического квадрупольного и магнитного дипольного взаимодействий.

Из (5.33) можно заключить, что для электрического дипольного перехода между состояниями определенной четности трехфотонное поглощение возникает только тогда, когда состояния $|1\rangle$ и $|j\rangle$ имеют противоположную четность. Трехфотонное поглощение может возникать в двухуровневой системе между состояниями противоположной четности. В этом можно убедиться, полагая, что единственный отличный от нуля член в (5.33) соответствует значениям $k = j$ и $q = 1$. При этих условиях

$$W_{(3)} = \frac{\pi g_L(3\omega)}{32\hbar^6} \left| \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{j1} \tilde{\mathcal{H}}'_{1j} \tilde{\mathcal{H}}'_{j1}}{2\omega(\omega - \omega_{j1})} \right|^2, \quad (5.34)$$

а $\tilde{\mathcal{H}}'_{1j}$ отличен от нуля, когда состояния $|1\rangle$ и $|j\rangle$ имеют противоположную четность. Поэтому в двухуровневой системе с состояниями определенной четности трехфотонное поглощение в переходах между состояниями противоположной четности является низшим многофотонным процессом поглощения при электрическом дипольном взаимодействии.

Общее выражение для m -фотонного поглощения в переходах между состояниями $|1\rangle$ и $|j\rangle$ имеет вид

$$W_{(m)} = \frac{\pi g_L(m\omega)}{2^{2m-1} \hbar^{2m}} \times \left| \sum_{q, k, \dots, s, p} \frac{\tilde{\mathcal{H}}'_{1q} \tilde{\mathcal{H}}'_{qk} \dots \tilde{\mathcal{H}}'_{sp} \tilde{\mathcal{H}}'_{p1}}{[(m-1)\omega - \omega_{q1}][(m-2)\omega - \omega_{k1}] \dots [2\omega - \omega_{s1}][\omega - \omega_{p1}]} \right|^2. \quad (5.35)$$

Если \mathcal{H}' представляет чисто электрическое дипольное взаимодействие, то $W_{(m)}$ зависит от m -й степени мощности излучения и при состояниях определенной четности состояния $|1\rangle$ и $|j\rangle$ должны иметь одинаковую четность, когда m — четное число, и противоположную четность, когда m — нечетное число.

§ 3 СЕЧЕНИЯ РАССЕЯНИЯ ДЛЯ ПРОЦЕССОВ МНОГОФОТОННОГО ПОГЛОЩЕНИЯ

Сечение рассеяния σ_c , введенное в гл. 3, § 2, определяется следующей формулой:

$$\sigma_c = \frac{\mathcal{P}}{N_V I}. \quad (5.36)$$

Здесь \mathcal{P} — средняя мощность, поглощаемая в единице объема; N_V — число молекул в единице объема, а I — средняя мощность падающего излучения, приходящаяся на единицу площади. Сечение рассеяния является эффективной площадью, на которой молекула поглощает падающее излучение, так что произведение σ_c на плотность мощности падающего излучения дает мощность, поглощаемую одной молекулой.

При однофотонном поглощении величина сечения рассеяния для переходов с силой осциллятора порядка единицы одного порядка с физической площадью молекулы. При многофотонном поглощении σ_c зависит от интенсивности падающего излучения и даже при сравнительно сильных полях сечение намного меньше величины, соответствующей однофотонному поглощению. В этом параграфе мы вычислим величину σ_c для двухфотонного и трехфотонного взаимодействий, используя типичные значения параметров для электрического дипольного перехода.

Можно выразить σ_c через вероятность перехода W . Поскольку W является вероятностью перехода в единицу времени для одной молекулы, величина энергии, поглощенной N_V молекулами в единице объема в единицу времени, определяется произведением энергии перехода $\hbar\omega_{21}$ на $N_V W$. Следовательно,

$$\mathcal{P} = N_V \hbar\omega_{21} W. \quad (5.37)$$

В бегущей волне плотность мощности равна

$$I = \frac{\eta c \epsilon_0 |\tilde{E}|^2}{2}. \quad (5.38)$$

Здесь η — показатель преломления, c — скорость света в свободном пространстве. Комбинируя (5.36) — (5.38), получаем

$$\sigma_c = \frac{2\hbar\omega_{21}}{\eta c \epsilon_0 |\tilde{E}|^2} W. \quad (5.39)$$

Сечение при однофотонном поглощении для электрического дипольного перехода можно вычислить, подставляя $W_{(1)}$ из (5.21) в (5.39). Имеем

$$\sigma_{c(i)} = \frac{\pi \omega_{21} |\mu_{12}|^2 g_L(\omega)}{3 \eta c \epsilon_0 \hbar}. \quad (5.40)$$

При $L = 1$ это выражение совпадает с (3.16). Уравнение (5.40) применимо к изолированной молекуле, а для плотной среды, когда η существенно отличается от единицы, необходимо вводить лоренцев поправочный множитель L .

Сечение рассеяния для двухфотонного поглощения можно определить, подставляя в (5.39) значение $W_{(2)}$ из (5.32). Для упрощения вычислений будем предполагать, что в процессе участвуют только три уровня, так что переход $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ совершается через промежуточный уровень $|3\rangle$. Это означает, что в выражении (5.32) надо подставить значения $q = 3$ и $j = 2$. Так как для электрического дипольного перехода в изотропной среде

$$|\mathcal{H}_{ij}|^2 = \frac{|\mu_{ij}|^2 |\tilde{E}|^2}{3},$$

то имеем

$$W_{(2)} = \frac{\pi g_L(2\omega)}{8\hbar^4} \frac{|\mu_{32}|^2}{3} \frac{|\mu_{31}|^2}{3} \frac{|\tilde{E}|^4}{(\omega - \omega_{31})^2}. \quad (5.41)$$

Сечение рассеяния для двухфотонного поглощения в трехуровневой системе при $\omega_{21} = 2\omega$ можно найти, если подставить (5.41) в (5.39):

$$\sigma_{c(2)} = \frac{\pi \omega g_L(2\omega)}{18\eta c \epsilon_0 \hbar^3} \frac{|\mu_{32}|^2 |\mu_{31}|^2 |\tilde{E}|^2}{(\omega - \omega_{31})^2}. \quad (5.42)$$

Для трехфотонного поглощения в переходах, имеющих состояния противоположной четности в двухуровневой системе, после подстановки (5.34) в (5.39) с учетом $j = 2$ и $\omega_{21} = 3\omega$ получим

$$\sigma_{c(3)} = \frac{3\pi \omega g_L(3\omega)}{16\hbar^5 \eta c \epsilon_0} \left(\frac{|\mu_{21}|^2}{3} \right)^3 \frac{|\tilde{E}|^4}{[2\omega(\omega - \omega_{21})]^2}. \quad (5.43)$$

Сечения рассеяния для одно-, двух- и трехфотонного поглощения могут быть вычислены путем подстановки типичных значений параметров, входящих в (5.40), (5.42) и (5.43). В табл. 5 приводятся приближенные значения этих параметров.

Табл. 6 содержит вычисленные значения σ_c для различных процессов. Из табл. 6 видно, что $\sigma_{c(m+1)} \approx 10^{-19} |\tilde{E}|^2 \sigma_{c(m)}$ для m -фотонного процесса поглощения. Если зададимся плотностью мощности падающего излучения порядка 10 Мвт/см^2 (величина, легко достижимая с помощью лазеров, работающих в режиме модуляции добротности), то, учитывая, что это соответствует $|\tilde{E}| \approx 9 \cdot 10^4 \text{ в/см}$, получаем следующие значения для σ_c :

$$\sigma_{c(2)} \approx 1,5 \cdot 10^{-25} \text{ см}^2,$$

$$\sigma_{c(3)} \approx 8 \cdot 10^{-34} \text{ см}^2.$$

Таблица 5

Предполагаемые значения параметров, необходимых для определения сечения рассеяния

Параметр	Обозначение	Предполагаемое значение
Матричный элемент	$ \mu_{ij} $	1 дебай
Показатель преломления	η	1,0 (для единичной молекулы)
Функция формы линии	$g_L(m\omega)^1$	$\frac{1}{3} \cdot 10^{-12}$ сек
Частота падающего излучения	ω	$2,7 \cdot 10^{15}$ рад/сек (частота рубинового лазера)
Частота перехода	ω_{21}	$(2,7 \cdot 10^{15} \times m)$ рад/сек (для m -фотонного процесса)
Частота перехода для третьего уровня при двухфотонном поглощении	ω_{31}	$2\omega_{21}$ (предполагается, что три уровня являются равноотстоящими)

¹⁾ Значение функции формы линии $g(m\omega)$ оценено при резонансном условии, когда $m\omega = \omega_{21}$. Поэтому $g_L(m\omega) = T_2/\pi = 2/\pi (\Delta\omega)$ для лоренцевой линии. При ширине линий $\Delta\omega$, равной десяти волновым числам, $g_L(m\omega)$ имеет значение, приведенное в табл. 5.1.

Таблица 6

Сечение рассеяния для многофотонного поглощения

Процесс	$\sigma_c, \text{ см}^2$	Уравнение, из которого определено σ_c
Однофотонное поглощение	$2,6 \cdot 10^{-16}$	(5.40)
Двухфотонное поглощение в трехуровневой системе	$1,1 \cdot 10^{-35} \tilde{E} ^2$ (\tilde{E} измеряется в в/см)	(5.42)
Трехфотонное поглощение в двухуровневой системе	$1,2 \cdot 10^{-54} \tilde{E} ^4$ (\tilde{E} измеряется в в/см)	(5.43)

Сравнение теоретических и экспериментальных значений W и σ_c для двух-, трех- и четырехфотонных процессов поглощения в антрацене и нафталине проведено в работе [3].

§ 4. ГЕНЕРАЦИЯ ГАРМОНИК

В § 2 и 3 рассматривались процессы многофотонного поглощения, когда поглощается m фотонов, каждый из которых обладает энергией $\hbar\omega$, и в среде возникают переходы из состояния $|1\rangle$ в состояние $|2\rangle$, так что $m\hbar\omega = \hbar\omega_{21}$. С другой стороны, энергия может сохраняться благодаря излучению фотона

с энергией $\hbar\omega_{21}$. При этом состояние среды не изменяется. Таким образом происходит генерация гармоник, когда возникает излучение энергии с частотой ω_{21} , в m раз превышающей частоту падающего излучения. Методика расчета интенсивности излучения гармоник состоит в вычислении компонент поляризации, которые изменяются на частоте перехода, и нахождении затем электрического поля на частоте гармоник.

Дипольный момент $\langle \mu \rangle$ записывается в виде

$$\langle \mu \rangle = \text{Sp} \langle \rho \mu \rangle.$$

На частоте перехода элементы матрицы плотности ρ_{12} и ρ_{21} велики, так как выражения для этих элементов имеют резонансный знаменатель при $\omega = \omega_{21}$. Поэтому компонента дипольного момента $\langle \mu \rangle$, которая изменяется с частотой перехода ω_{21} , имеет вид

$$\langle \mu \rangle_{21} = \rho_{12} \mu_{21} - \rho_{21} \mu_{12}. \quad (5.44)$$

Здесь обозначение $\langle \mu \rangle_{21}$ применяется для компоненты $\langle \mu \rangle$, изменяющейся с частотой ω_{21} . Если рассматривать состояния определенной четности, то можно видеть, что в электрических дипольных переходах не возникает генерация второй гармоники. Это связано с тем, что двухфотонное поглощение имеет место между состояниями одинаковой четности, когда $\mu_{12} = 0$, поэтому компонента поляризации на частоте ω_{21} отсутствует. Чтобы получить генерацию второй гармоники на электрическом дипольном переходе, необходимо существование локального поля либо в самом кристалле, либо приложенного извне, которое будет нарушать симметрию гамильтониана относительно инверсии.

Однако если состояния $|1\rangle$ и $|2\rangle$ имеют противоположную четность, может возникать генерация третьей гармоники, поскольку матричный элемент μ_{12} не равен нулю. В этом случае представляет интерес компонента ρ_{12} , изменяющаяся с частотой, равной утроенной частоте падающего излучения. Из выражения (5.28) видно, что $\rho_{12}^{(3)}$ содержит член с желаемой частотой, поскольку \mathcal{H}'_{af} имеет временную зависимость вида $e^{\pm i\omega t}$, а $\rho_{ff}^{(2)}$ содержит компоненту с временной зависимостью вида $e^{\pm 2i\omega t}$, так что $\rho_{12}^{(3)}$ будет включать член вида $e^{\pm 3i\omega t}$. Используя выражение для $\rho_{12}^{(3)}$ в (5.44), находим компоненту дипольного момента, осциллирующую с частотой, в 3 раза превышающей частоту падающего излучения. Учитывая поляризацию $N_V \langle \mu \rangle_{12}$, где N_V — число атомов (предполагается идентичных) в единице объема, из уравнения (2.50) можно найти электрическое поле с частотой третьей гармоники.

Если интересоваться генерацией третьей гармоники в двухуровневой системе между состояниями противоположной четности, то несколько проще проводить вычисления на основе уравнений (3.1)—(3.3), выраженных через поляризацию. Уравнения (3.1) и (3.2), переписанные ниже, относятся к линейно поляризованному электрическому полю в изотропной среде

$$\ddot{P} + \frac{2}{T_2} \dot{P} + \Omega^2 P = -\frac{2\Omega}{\hbar} L \frac{|\mu_{12}|^2}{3} NE, \quad (5.45)$$

$$\dot{N} + \frac{N - N^e}{T_1} = \frac{2}{\hbar\Omega} \dot{P} E. \quad (5.46)$$

Здесь $N = N_2 - N_1$ — разность населенностей в единице объема. Предполагается, что амплитуда электрического поля, создаваемого на частоте третьей гармоники, намного меньше амплитуды поля основной частоты, так что нет необходимости учитывать обратное воздействие третьей гармоники на систему. Будем пользоваться экспоненциальными функциями:

$$E = \frac{\tilde{E}_\omega}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}, \quad (5.47)$$

$$P = \frac{\tilde{P}_\omega}{2} e^{i\omega t} + \frac{\tilde{P}_{3\omega}}{2} e^{i3\omega t} + \text{компл. сопр.}, \quad (5.48)$$

$$N = N_0 + \left(\frac{\tilde{N}_{2\omega}}{2} e^{i2\omega t} + \text{компл. сопр.} \right). \quad (5.49)$$

Здесь индексы $m\omega$ указывают на компоненты, содержащие временную зависимость вида $e^{im\omega t}$.

Поляризация на частоте третьей гармоники обусловлена следующими процессами:

1) прежде всего благодаря приложенному полю появляется \tilde{P}_ω . Из (5.45) видно, что поляризация \tilde{P}_ω возникает как результат действия \tilde{E}_ω ;

2) произведение P и E обуславливает компоненту N на частоте 2ω , как видно из (5.46);

3) поляризация $\tilde{P}_{3\omega}$ возникает за счет произведения $\tilde{N}_{2\omega}$ и \tilde{E}_ω в соответствии с (5.45).

Это можно изобразить схематически

$$\tilde{E}_\omega \rightarrow \tilde{P}_\omega \rightarrow \tilde{N}_{2\omega} \rightarrow \tilde{P}_{3\omega}. \quad (5.45) \quad (5.46) \quad (5.45)$$

Под стрелками указаны номера уравнений, определяющих связь между переменными.

Каждый этап при генерации $\tilde{P}_{3\omega}$ может быть рассчитан отдельно. Из уравнения (5.45) при $\Omega \approx 3\omega$ и $\Omega T_2 \gg 1$ получаем

$$\tilde{P}_\omega = -\frac{|\mu_{12}|^2 L N_0}{4\hbar\omega} \tilde{E}_\omega. \quad (5.50)$$

Из уравнения (5.46), замечая, что $\Omega T_1 \gg 1$, имеем

$$\tilde{N}_{2\omega} = \frac{\tilde{P}_\omega \tilde{E}_\omega}{6\hbar\omega}. \quad (5.51)$$

Наконец, возвращаясь к уравнению (5.45) и используя $\Omega = 3\omega$, находим

$$\tilde{P}_{3\omega} = \frac{iT_2 |\mu_{12}|^2 L}{6\hbar} \tilde{N}_{2\omega} \tilde{E}_\omega. \quad (5.52)$$

Комбинируя уравнения (5.50)–(5.52), выразим поляризацию $\tilde{P}_{3\omega}$ через \tilde{E}_ω :

$$\tilde{P}_{3\omega} \approx -\frac{i |\mu_{12}|^4 L^2 T_2 N_0}{144\hbar^3 \omega^2} (\tilde{E}_\omega)^3. \quad (5.53)$$

Если падающее излучение рассматривается в виде бегущей волны, то поляризацию на частоте гармоники можно записать в виде

$$P_{3\omega} = \frac{\tilde{P}_{3\omega}}{2} e^{i3\omega t} e^{-i3kz} + \text{компл. сопр.}$$

Здесь $k = \eta_1 \omega / c$ — постоянная распространения, а η_1 — показатель преломления на частоте входного сигнала.

Рассмотрим поле, амплитуда которого является медленно меняющейся функцией z :

$$E_{3\omega} = \frac{\tilde{E}_{3\omega}(z)}{2} e^{i3\omega t} e^{-i3kz} + \text{компл. сопр.} \quad (5.54)$$

Подставляя (5.54) в (3.3а) и пренебрегая потерями (т. е. $\mathcal{A}=0$), получаем

$$6ik \frac{d\tilde{E}_{3\omega}}{dz} + \left[(3k)^2 - \left(\frac{3\omega\eta_3}{c} \right)^2 \right] \tilde{E}_{3\omega} = \mu_0 (3\omega)^2 \tilde{P}_{3\omega}. \quad (5.55)$$

Здесь η_3 — показатель преломления для третьей гармоники. При выводе (5.55) предполагалось, что

$$\frac{d^2 \tilde{E}_{3\omega}}{dz^2} \ll 3k \frac{d\tilde{E}_{3\omega}}{dz},$$

поскольку $\tilde{E}_{3\omega}$ является медленно меняющейся функцией, так что второй производной от $\tilde{E}_{3\omega}$ по z можно пренебречь. Интегрируя (5.55), находим

$$\tilde{E}_{3\omega} = \frac{\mu_0 (3\omega)^2 \tilde{P}_{3\omega}}{(3k)^2 - (3\omega\eta_3/c)^2} \left[1 - \exp\left(\frac{i[(3k)^2 - (3\omega\eta_3/c)^2] z}{6k} \right) \right]. \quad (5.56)$$

Здесь использовано граничное условие $\tilde{E}_{3\omega} = 0$ при $z = 0$. Из соотношения (5.38) получим, что плотность мощности третьей гармоники $I_{3\omega}$ равна

$$I_{3\omega} = \frac{\eta_3 c \epsilon_0 |\tilde{E}_{3\omega}|^2}{2}. \quad (5.57)$$

Подставляя (5.53) и (5.56) в (5.57), находим выражение для мощности гармоники через напряженность поля входного сигнала:

$$I_{3\omega} = I_0 \frac{\sin^2 \alpha z}{\alpha^2}. \quad (5.58)$$

Здесь

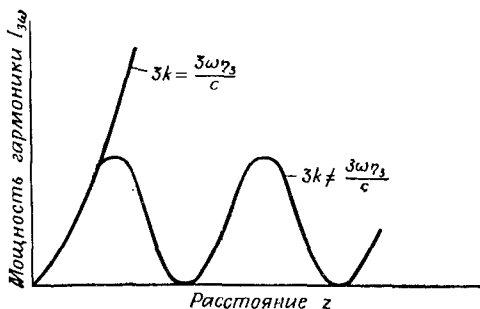
$$\alpha \equiv \frac{(3k)^2 - (3\omega\eta_1/c)^2}{12k}, \quad I_0 \equiv \frac{\eta_3 \mu_0 |\mu_{12}|^8 L^4 T_2^2 N_0^2}{9 \cdot 2^{11} c k^2 \hbar^6} |\tilde{E}_\omega|^6.$$

На основании (5.58) можно сформулировать три существенных вывода, общие для всех экспериментов по генерации гармоник независимо от применяемых нелинейных сред.

1. Максимальную плотность мощности гармоники можно получить, когда

$$3k = \frac{3\omega\eta_3}{c}. \quad (5.59)$$

Из выражения (5.58) видно, что тогда $I_{3\omega}$ увеличивается пропорционально квадрату расстояния.



Фиг. 5.5. Зависимость выходной мощности гармоники от расстояния.

Если равенство (5.59)

не выполняется, то мощность гармоники изменяется по синусоидальному закону, как показано на фиг. 5.5. Период изменений увеличивается с приближением значения $3k$ к $3\omega\eta_3/c$.

Излучение на частоте гармоники имеет постоянную распространения, определяемую нелинейным процессом и равную $3k$. С другой стороны, естественная постоянная распространения падающего на среду излучения с частотой 3ω равна $3\omega\eta_3/c$. Максимальное преобразование мощности имеет место, когда эти две константы равны. Если равенство (5.59) выполняется, то говорят, что для системы выполнено условие импульсного, или фазового, согласования¹⁾.

Если среда не обладает дисперсией, т. е. показатель преломления не зависит от частоты, то равенство (5.59) выполняется, поскольку $k = \omega\eta_1/c$. Обычно же это равенство не выполняется вследствие дисперсионных свойств сред. Однако для выполнения равенства (5.59) можно использовать материалы, обладающие двойным лучепреломлением, и добиться того, чтобы показатель преломления для обыкновенной волны с одной частотой был

¹⁾ В отечественной литературе условие фазового согласования называется обычно условием синхронизма. — Прим. перев.

равен показателю преломления необыкновенной волны с другой частотой. Основанная на этом принципе генерация гармоник бегущих волн широко освещена в литературе [6]. Условие согласования показателей преломления (5.59) применимо при рассмотрении генерации любой гармоники, так что для получения максимальной мощности m -й гармоники требуется выполнение равенства

$$\eta_1 = \eta_m,$$

где η_m — показатель преломления для m -й гармоники.

2. Выходная мощность третьей гармоники имеет кубическую зависимость от входной мощности. Такая зависимость сохраняется до тех пор, пока напряженность поля гармоники не станет настолько большой, что нельзя будет пренебрегать ее обратным воздействием на систему. Вообще говоря, независимо от вида используемого нелинейного элемента мощность m -й гармоники возрастает как $(I_\omega)^m$, где I_ω — плотность мощности падающего излучения.

3. На генерацию гармоник не накладываются пороговые требования. Из уравнения (5.58) видно, что даже при исчезающе малых полях основной частоты существует возможность генерации гармоник. Наоборот, в лазере или в случае вынужденного рамановского рассеяния для возникновения колебаний необходимо, чтобы мощность падающего излучения превышала некоторое минимальное значение.

Различие между пороговыми и непороговыми процессами состоит в следующем. В первом случае первый член степенного разложения поляризации на частоте выходного излучения по электрическому полю этой же частоты линейно зависит от величины поля. Для непороговых процессов первый член разложения не зависит от электрического поля с частотой выходного излучения.

Если величина $P_{3\omega}$ не зависит от $E_{3\omega}$, как, например, в выражении (5.52), то на основании уравнений Максвелла (3.3а) или (3.3б) электрическое поле $E_{3\omega}$ можно выразить через другие переменные, например E_ω . При этом пороговый эффект исключается. Если же, например, как в случае лазера, исходить из уравнения (3.1) и учитывать линейную зависимость поляризации от поля с частотой выходного излучения, то обнаруживается пороговый эффект. Если выражение для P подставить в уравнения Максвелла, то E сокращается с обеих сторон уравнения и получается уравнение для постоянной распространения бегущей волны k или для частоты ω в резонаторе. Для существования колебаний необходимо, чтобы k или ω были комплексными величинами и имели соответствующие знаки, указывающие на возрастание амплитуды сигнала. В отсутствие поляризации

сигнал экспоненциально уменьшается с расстоянием или во времени вследствие потерь в системе, и для существования колебаний необходимо, чтобы поляризация вносила усиление, превышающее по величине потери в системе. В § 6, где рассматриваются рамановские колебания, проводится более детальное обсуждение пороговых условий.

При заданном выборе параметров дипольного перехода мощность гармоники можно определить из уравнения (5.58). В диапазоне СВЧ эта мощность была вычислена и измерена Фонтана, Пантелом и Смитом [7], а в оптическом диапазоне расчет был проведен Пао и Рентзеписом [8].

§ 5. ШТАРКОВСКОЕ СМЕЩЕНИЕ

В этом параграфе мы рассмотрим нелинейный эффект, приводящий к смещению частоты перехода для дипольного взаимодействия при наличии электромагнитного поля. В статических полях этот эффект называется постоянным штарковским смещением; аналогичный эффект наблюдается и в осциллирующих полях. Если электромагнитное излучение с частотой ω_1 падает на среду, то функцией отклика на пробный сигнал с частотой ω будет кривая поглощения, максимум которой смещается на величину, пропорциональную интенсивности поля с частотой ω_1 .

Чтобы рассчитать величину этого смещения, определим поле, поляризацию и разность населенностей следующим образом:

$$E = \frac{\tilde{E}_1}{2} e^{i\omega_1 t} + \frac{\tilde{E}}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}, \quad (5.60)$$

$$P = \frac{\tilde{P}}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}, \quad (5.61)$$

$$N = N_0 + \frac{\tilde{N}_-}{2} e^{i(\omega - \omega_1)t} + \frac{\tilde{N}_+}{2} e^{i(\omega + \omega_1)t} + \dots \quad (5.62)$$

Компонента поляризации на частоте ω_1 исключена из уравнения (5.61), поскольку учет этой компоненты не приводит к штарковскому смещению. В выражении для N к штарковскому смещению имеют отношение только члены, содержащие $e^{i(\omega \pm \omega_1)t}$, поэтому остальные компоненты опущены.

Из уравнения (5.45), приравнявая коэффициенты при $e^{i\omega t}$, получаем

$$\left(\Omega^2 - \omega^2 + \frac{i2\omega}{T_2} \right) \tilde{P} = -\frac{2\Omega}{h} \left| \mu_{12} \right|^2 \frac{P}{3} L \left(N_0 \tilde{E} + \frac{\tilde{N}_- \tilde{E}_1}{2} + \frac{\tilde{N}_+ \tilde{E}_1^*}{2} \right). \quad (5.63)$$

Из уравнения (5.46), приравнявая коэффициенты при $e^{i(\omega+\omega_1)t}$ и $e^{i(\omega-\omega_1)t}$, имеем

$$\begin{aligned} \left[i(\omega - \omega_1) + \frac{1}{T_1} \right] \tilde{N}_- &= \frac{i\omega}{\hbar\Omega} \tilde{P} \tilde{E}_1^*, \\ \left[i(\omega + \omega_1) + \frac{1}{T_1} \right] \tilde{N}_+ &= \frac{i\omega}{\hbar\Omega} \tilde{P} \tilde{E}_1. \end{aligned} \quad (5.64)$$

Математические расчеты упрощаются, если ω_1 достаточно сильно отличается от ω , так что $|\omega - \omega_1| T_1 \gg 1$. Основной интерес представляет отклик на пробный сигнал при $\omega \approx \Omega$, а это значит, что случай $\omega_1 \approx \Omega$ исключен из анализа условием $|\omega - \omega_1| T_1 \gg 1$.

Подставляя (5.64) в (5.63), получаем следующее уравнение:

$$\left(\Omega^2 - \omega^2 + \frac{2\omega^2 |\mu_{12}|^2 L}{3\hbar^2 (\omega^2 - \omega_1^2)} |\tilde{E}_1|^2 + \frac{i2\omega}{T_2} \right) \tilde{P} = - \frac{2\Omega |\mu_{12}|^2 L}{3\hbar} N_0 \tilde{E}. \quad (5.65)$$

Приравнявая к нулю вещественную часть коэффициента при \tilde{P} , получаем выражение для резонансной частоты

$$\omega = \left[\Omega^2 + \frac{2\omega^2 |\mu_{12}|^2 L}{3\hbar^2 (\omega^2 - \omega_1^2)} |\tilde{E}_1|^2 \right]^{1/2}. \quad (5.66)$$

Вообще говоря, относительное смещение частоты мало, поэтому квадратный корень в (5.66) можно разложить в степенной ряд, т. е.

$$\omega \approx \Omega + \frac{\Omega |\mu_{12}|^2 L}{3\hbar^2 (\Omega^2 - \omega_1^2)} |\tilde{E}_1|^2. \quad (5.67)$$

Из (5.38) находим усредненную по времени мощность I_1 излучения с частотой ω_1 , приходящуюся на единицу площади:

$$I_1 = \frac{1}{2} \eta_1 c \epsilon_0 |\tilde{E}_1|^2. \quad (5.68)$$

Здесь η_1 — показатель преломления среды для колебаний с частотой ω_1 . Таким образом, из (5.67) и (5.68) определим смещение частоты $\Delta\Omega$

$$\Delta\Omega = \frac{2\Omega |\mu_{12}|^2 L I_1}{3\hbar^2 \eta_1 c \epsilon_0 (\Omega^2 - \omega_1^2)}. \quad (5.69)$$

Смещение частоты в зависимости от частоты ω_1 для фиксированной плотности мощности падающего излучения изображено графически на фиг. 5.6.

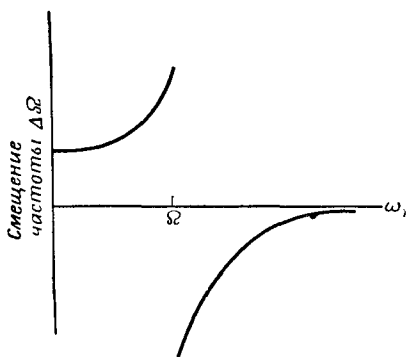
Таблица 7

Смещение частоты перехода, обусловленное падающим излучением с частотой ω_1 , для различных значений частоты перехода и плотности мощности

Частота перехода Ω , рад/сек	Частота излучения ω_1 , рад/сек	Плотность мощности I_1 , вт/см ²	Смещение частоты $\Delta\Omega$, рад/сек
$1,4 \cdot 10^{11}$	$\omega_1 \ll \Omega$	10^4	$0,2 \cdot 10^8$
$4 \cdot 10^{15}$	$\omega_1 \ll \Omega$	10^4	$0,7 \cdot 10^4$
$4 \cdot 10^{15}$	$\omega_1 \ll \Omega$	10^6	$0,7 \cdot 10^6$
$1,4 \cdot 10^{11}$	$4,1 \cdot 10^{15}$	10^4	$-0,23$
$4 \cdot 10^{15}$	$4,1 \cdot 10^{15} 1)$	10^4	$-1,4 \cdot 10^5$

1) Поскольку всегда $T_1 \gg 10^{-14}$, то удовлетворяется условие $|\omega - \omega_1| T_1 \gg 1$.

В табл. 7 приводятся штарковские смещения для различных частот переходов, различных значений ω_1 и различных плотностей мощности. Предполагается, что показатель преломления равен



Фиг. 5.6. Зависимость смещения частоты перехода $\Delta\Omega$ для постоянной плотности мощности падающего излучения от частоты приложенного электромагнитного поля ω_1 .

единице, $|\mu_{12}| = 1$ дебай. Экспериментальные измерения штарковских смещений были выполнены с помощью лазера, работающего в режиме модулированной добротности, и было проведено сравнение с теоретическими расчетами [8].

§ 6. ВЫНУЖДЕННОЕ РАМАНОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ

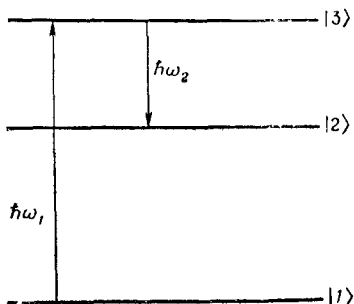
В § 4 утверждалось, что вынужденное рамановское рассеяние представляет собой пороговый процесс. Пороговое условие для двухфотонного эффекта в трехуровневой системе (фиг. 5.7) было рассмотрено Джаваном [10], а для трехфотонного процесса в двухуровневой системе (фиг. 5.4, в) — Фонтана, Паптелом и Смитом [11].

Рассмотрим для примера рамановский процесс, изображенный на фиг. 5.7.

1. Электрическое поле записывается в виде

$$E = \frac{\tilde{E}_1}{2} e^{i\omega_1 t} + \frac{\tilde{E}_2}{2} e^{i\omega_2 t} + \text{компл. сопр.}$$

Заметим, что необходимо включать член с возбуждающей частотой ω_1 и с выходной частотой ω_2 . Таким образом, в гамильтониане матричные элементы \mathcal{H}'_{ij} члена, соответствующего взаимодействию, будут иметь компоненты как с частотой ω_1 , так и с частотой ω_2 .



Фиг. 5.7. Энергетическая диаграмма для трехуровневого двухфотонного рамановского генератора, проанализированного Джаваном [10].

Предполагается наличие электрической дипольной связи между состояниями определенной четности, причем состояния $|1\rangle$ и $|2\rangle$ имеют одинаковую четность, состояние $|3\rangle$ — противоположную четность. Энергия вводится в среду на частоте ω_1 , рамановские колебания происходят на частоте ω_2 .

2. Рассматривается равновесное распределение вероятностей, согласованное с внешними условиями. При тепловом равновесии для оптических переходов $\rho_{jj} \approx \delta_{1j}$, где $|1\rangle$ обозначает основное состояние.

3. Вычисляются матричные элементы оператора ρ , изменяющиеся с частотой ω_2 , и, поскольку ρ_{23} имеет резонансный знаменатель на частоте ω_2 , рассматривается этот элемент. Если написать в явном виде последовательные члены теории возмущений для ρ_{23} , определяемые (5.7), то можно видеть, что компонента с частотой ω_2 получается в $\rho_{23}^{(3)}$ по следующей схеме:

$$\mathcal{H}'_{13} \rightarrow \rho_{13}^{(1)} \rightarrow \rho_{21}^{(2)} \rightarrow \rho_{23}^{(3)}, \quad (5.14) \quad (5.24) \quad (5.28)$$

где цифры под стрелками указывают номера уравнений, которые используются на каждом этапе. Доказательство того, что лишь упомянутая последовательность приводит от возбуждающего поля к ρ_{23} при резонансных взаимодействиях, вынесено в задачу 5.8. Если частота ω_1 равна частоте перехода из состояния $|1\rangle$ в состояние $|3\rangle$, то из (5.14) можно найти $\rho_{13}^{(1)}$ в виде

$$\rho_{13}^{(1)} \sim \mu_{13} \tau_{13} \tilde{E}_1 e^{i\omega_1 t}. \quad (5.70)$$

Из выражения (5.24) находим, что $\rho_{21}^{(2)}$ имеет член вида

$$\rho_{21}^{(2)} \sim \mu_{23} \tau_{12} \tilde{E}_2 e^{i\omega_2 t} (\rho_{13}^{(1)})^* \quad (5.71)$$

Из (5.28) следует, что $\rho_{23}^{(3)}$ имеет член вида

$$\rho_{23}^{(3)} \sim \mu_{13} \tau_{23} \tilde{E}_1 e^{i\omega_1 t} \rho_{21}^{(2)} \quad (5.72)$$

Подставляя (5.70) и (5.71) в (5.72), получаем

$$\rho_{23}^{(3)} \sim |\mu_{13}|^2 \mu_{23} \tau_{12} \tau_{13} \tau_{23} \tilde{E}_2 |\tilde{E}_1|^2 e^{i\omega_2 t} \quad (5.73)$$

Временная зависимость правой части выражения (5.73) указывает на то, что упомянутая выше последовательность приводит к члену в ρ_{23} , изменяющемуся с частотой ω_2 .

4. Компонента поляризации P_2 , содержащая множитель $e^{i\omega_2 t}$, вычисляется из соотношения

$$P_2 = N_V (\rho_{23}^{(3)} \mu_{32} + \text{компл. сопр.}), \quad (5.74)$$

где N_V — число идентичных молекул в единице объема. Из выражений (5.73) и (5.74) находим P_2 в виде

$$P_2 \sim N_V |\mu_{13}|^2 |\mu_{23}|^2 \tau_{12} \tau_{13} \tau_{23} |\tilde{E}_1|^2 \tilde{E}_2 e^{i\omega_2 t} \quad (5.75)$$

Введем восприимчивость χ :

$$\tilde{P}_2 = \epsilon_0 \chi \tilde{E}_2.$$

Точные расчеты приводят к выражению

$$\chi = \frac{i N_V |\mu_{13}|^2 |\mu_{23}|^2 \tau_{12} \tau_{13} \tau_{23} |\tilde{E}_1|^2}{36 \hbar^3 \epsilon_0} \quad (5.76)$$

5. Подставляя \tilde{P}_2 в уравнения Максвелла (3.3а) и (3.3б), вычислим \tilde{E}_2 . Поскольку величина \tilde{P}_2 пропорциональна \tilde{E}_2 , то обе части уравнения можно сократить на \tilde{E}_2 и в окончательном выражении останутся только $|\tilde{E}_1|^2$, параметры переходов и характеристики потерь в среде и резонаторе.

Как указано в § 4, порог достигается тогда, когда мощность, вносимая за счет поляризационного члена в правой части выражений (3.3а) и (3.3б), компенсирует потери энергии в системе. Если рассмотреть, например, резонатор с частотой ω_2 , заполненный квантованной средой, то P_2 будет иметь такую же пространственную зависимость, как и \tilde{E}_2 , а \tilde{E}_2 в свою очередь будет иметь такую же пространственную зависимость, как и нормальная мода. Поэтому уравнение для E_2 может быть записано подобно (2.55):

$$\ddot{E}_2 + \frac{1}{\tau_c} \dot{E}_2 + \omega_c^2 E_2 = -\frac{1}{\epsilon} \tilde{P}_2 \quad (5.77)$$

Здесь

$$E_2 = \frac{\tilde{E}_2}{2} e^{i\omega_2 t} + \text{компл. сопр.}$$

Член $(1/\tau_c)\dot{E}_2$ характеризует потери энергии, поэтому пороговое условие можно записать в виде

$$\frac{i\omega_2}{\tau_c} \tilde{E}_2 = \frac{\omega_2^2 \epsilon_0}{\epsilon} \chi \tilde{E}_2. \quad (5.78)$$

Из выражений (5.76) и (5.78) имеем

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{\omega_2 \epsilon_0}{\epsilon} \frac{N_V |\mu_{13}|^2 |\mu_{23}|^2 \tau_{12} \tau_{13} \tau_{23}}{36\hbar^3} |\tilde{E}_1|^2. \quad (5.79)$$

Уравнение (5.79) определяет минимальное значение $|\tilde{E}_1|^2$, при котором возникают вынужденные рамановские колебания. Если величина $|\tilde{E}_1|^2$ меньше значения, определяемого уравнением (5.79), то потери в системе превышают вклад энергии, и колебания не возникают. С другой стороны, при больших значениях $|\tilde{E}_1|^2$ напряженность поля на частоте ω_2 возрастает и достигает равновесного значения, определяемого эффектами насыщения. Если предположить, что излучение на частоте ω_1 проходит через резонатор один раз, то в переходах на оптических частотах при плотности мощности падающего излучения в несколько ватт на квадратный сантиметр возникают вынужденные рамановские колебания. Рокни и Ятсив [12] опубликовали экспериментальные наблюдения резонансного рамановского эффекта в калии.

Вывод уравнения (5.79) основан на предположении, что все линии имеют лоренцеву форму, а все сигналы — точно резонансную частоту. Вообще говоря, для произвольных форм линий и нерезонансных сигналов в правой части уравнения (5.79) необходимо заменить τ_{ij} на $\pi g_{ij}(\omega)$, где $g_{ij}(\omega)$ — нормированная функция формы линии для перехода $|u_i\rangle \rightarrow |u_j\rangle$.

В этом параграфе был рассмотрен *резонансный* рамановский эффект, который называется так потому, что падающее излучение на частоте ω_1 вызывает резонансные переходы из состояния $|1\rangle$ в состояние $|3\rangle$. Часть гл. 7 будет посвящена рассмотрению нерезонансного рамановского процесса, в котором состояние $|3\rangle$ не участвует. Некоторые авторы используют термин «рамановское рассеяние», имея в виду только рассеяние света оптическими фононами. Такие процессы рассматриваются в гл. 7, а в данном параграфе использовалось более общее определение, когда допускается и рассеяние за счет электронных состояний.

ЛИТЕРАТУРА

1. Hughes V. W., Grabner L., The Radiofrequency Spectrum of Rb⁸⁵F and Rb⁸⁷F by the Electric Resonance Method, Phys. Rev., **79**, 314, 826 (1950).
2. Brossel J., Cagnac B., Kastler A., Observations de Résonances Magnétiques à Plusieurs Quanta Sur un Jet d'Atomes de Sodium Orientés Optiquement, Compt Rend., **237**, 984 (October 1953).

3. *Pantell R., Pradere F., Hanus J., Schott M., Puthoff H.*, Theoretical and Experimental Values for Two, Three and Four Photon Absorptions, Journ. Chem. Phys., **46**, 3507 (May 1967).
4. *Kaiser W., Garrett C.*, Two-Photon Excitation in $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$, Phys. Letters, **7**, 229 (September 1961).
5. *Singh S., Bradley L.*, Three-Photon Absorption in Naphthalene Crystals by Laser Excitation, **12**, 612 (June 1964).
6. *Bloembergen N.*, Nonlinear Optics (ed. W. A. Benjamin), New York, 1965. (См. перевод: *Н. Бломберген*, Нелинейная оптика, изд-во «Мир», 1966.)
7. *Fontana J., Pantell R., Smith R.*, Harmonic Generation Using the Ammonia Inversion Transition, Proc. IRE, **50**, 469 (April 1962).
8. *Pao Y., Rentzepis P.*, Multiphoton Absorption and Optical-Harmonic Generation in Highly Absorbing Molecular Crystals, Journ. Chem. Phys., **43**, 1281 (August 1965).
9. *Е. Б. Александров, А. М. Бонч-Бруевич, Н. Н. Костин, В. А. Ходовой*, Смещение частоты оптического перехода в поле световой волны, Письма в ЖЭТФ, т. III, вып. 2, 85 (1966).
10. *Javan A.*, Stimulated Raman Effect, Proc. of the International School of Physics Enrico Fermi Course XXXI, New York, 1964, p. 284.
11. *Fontana J., Pantell R., Smith R.*, Parametric Effects in a Two-Level Electric Dipole System, Journ. Appl. Phys., **33**, 2085 (June 1962).
12. *Rokni M., Yatsiv S.*, Resonance Raman Effect in Free Atoms of Potassium, Phys. Letters, **24A**, 277 (February 1967).

Задачи

5.1. Получить выражение, аналогичное (5.32), для двухфотонного поглощения при различных энергиях фотонов (см. фиг. 5.3, а).

5.2. Для среды с центром симметрии электрическое дипольное взаимодействие приводит к уравнениям (5.45) и (5.46). Показать на основе этих уравнений, что возбуждаются только нечетные гармоники. Если приложить постоянное поле, то симметрия нарушается. Показать, что при наличии постоянного поля возможна генерация четных гармоник.

5.3. Исходя из уравнений Блоха (2.83), показать возможность генерации второй гармоники. Если приложить постоянное магнитное поле B_0 вдоль оси z , то какова должна быть поляризация возбуждающего поля и какова будет поляризация поля второй гармоники?

5.4. Вывести выражение, аналогичное (5.58), выявив зависимость генерации второй гармоники от расстояния для системы со спином $1/2$.

5.5. В § 4 при рассмотрении генерации гармоники мы пренебрегали уменьшением внешнего поля вследствие нарастания третьей гармоники. Для случая точного фазового согласования (т. е. когда $\eta_1 = \eta_3$) на основании выражений (5.52) и (5.55)

и условия сохранения энергии

$$|\tilde{E}_\omega|^2 + |\tilde{E}_{3\omega}|^2 = |\tilde{E}_0|^2 = \text{const}$$

показать, что

$$|\tilde{E}_{3\omega}|^2 = |\tilde{E}_0|^2 \frac{(Dz)^2}{(Dz)^2 + 1}, \quad (\text{П. 5.1})$$

где

$$D \equiv \frac{\mu_0 |\mu_{12}|^4 L^2 T_2 N_0 |\tilde{E}_0|^2}{24 \hbar^3 k}; \quad k = \frac{\eta_1 \omega}{c}.$$

Изобразить графически (П.5.1) и сравнить с квадратичным законом, полученным из (5.58). Показать, что для $z \rightarrow 0$ выражение (П.5.1) сводится к (5.58).

5.6. Используя первый порядок теории возмущений, показать, что изменение собственного значения E_i при наличии поля излучения определяется следующим образом:

$$\Delta E_i = \frac{1}{2\hbar} \sum_k \frac{\omega_{ik}}{\omega_{ik}^2 - \omega^2} |\mathcal{H}'_{ik}|^2. \quad (\text{П. 5.2})$$

Здесь ω — частота излучения, $\hbar\omega_{ik} = E_i - E_k$. Показать, что уравнение (П.5.2) сводится к выражению для штарковского смещения (5.69) для двухуровневой системы.

5.7. Показать, что максимальное поглощение для двухуровневой электрической дипольной системы при наличии одного интенсивного сигнала происходит на частоте

$$\omega \approx \Omega + \frac{|\mu_{12}|^2 L |\tilde{E}|^2}{12 \hbar^2 \Omega}, \quad (\text{П. 5.3})$$

где Ω — невозмущенная частота перехода, L — лоренцев поправочный множитель. Сравнить (П.5.3) и (5.67). Из уравнения (5.67) определяется резонансная частота для пробного сигнала при наличии другого интенсивного сигнала.

5.8. Показать, что последовательность, приведенная непосредственно перед (5.70),

$$\mathcal{H}'_{31} \rightarrow \rho_{13}^{(1)} \rightarrow \rho_{21}^{(2)} \rightarrow \rho_{23}^{(3)}$$

представляет собой единственный путь, который ведет от возбуждающего поля к ρ_{23} через резонансные взаимодействия. Это можно доказать, выписывая члены теории возмущений и предполагая, что система вначале находится в состоянии $|1\rangle$.

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

Гипотеза о том, что энергия в поле излучения существует в виде отдельных квантов, впервые была выдвинута Эйнштейном [1, 2]. Согласно этой гипотезе, энергия на частоте ω должна быть кратна энергии фотона $\hbar\omega$. Это противоречит классическим представлениям об электромагнитном поле, в которых предполагается, что энергия принимает непрерывные значения.

В настоящей главе будет рассмотрено квантование электромагнитного поля, при котором изменения энергии излучения происходят дискретными количествами в соответствии с гипотезой Эйнштейна. Математический формализм для описания дискретных изменений энергии в поле излучения основывается на введении операторов рождения и уничтожения, соответствующих излучению и поглощению фотонов. Этот подход широко используется при описании систем, которые ведут себя как гармонические осцилляторы. В таких системах квантами энергии являются фотоны, фононы, магноны и плазмоны [3].

Уравнения, описывающие взаимодействие излучения с веществом, будут выведены для случая, когда и поле и среда квантуются. Сравнение с результатами, полученными полуклассическим методом в гл. 3, показывает, что метод кинетических уравнений, характеризующих взаимодействие излучения с веществом через средние значения входящих в них переменных, почти эквивалентен новому подходу. Основная разница заключается в появлении дополнительных членов в подходе квантованного поля, которые описывают процесс спонтанного излучения. Включение эффектов спонтанного излучения важно при рассмотрении некоторых вопросов квантовой электроники. Спонтанное излучение определяет, например, условия в начале генерации в лазерах, спектральные свойства излучения в условиях теплового равновесия и шумовые характеристики лазеров и параметрических усилителей.

Электромагнитное поле квантуется таким же образом, как механическая система. Сначала записывается гамильтониан через координаты q_i и канонически сопряженные импульсы p_i ,

так что уравнения Гамильтона

$$\dot{q}_i = \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial p_i}, \quad \dot{p}_i = - \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial q_i} \quad (6.1)$$

приводят к уравнениям движения системы.

Затем, чтобы перейти от классического рассмотрения к квантовомеханическому формализму, переменные q_i и p_j рассматриваются как операторы, удовлетворяющие перестановочным соотношениям:

$$[q_i, p_j] = i\hbar\delta_{ij}. \quad (6.2)$$

Некоммутативность координаты и сопряженного с ней импульса является требованием, которое представляет собой фундаментальный постулат квантовой механики, и именно здесь в квантовой механике вводится постоянная Планка. Перестановочные соотношения [уравнение (6.2)] для координаты и импульса применимы как к механическим системам, так и к полю.

Наконец, должно быть получено решение уравнения Шредингера. Когда \mathcal{H} не зависит явно от времени, решение записывается в виде (1.5):

$$|\varphi_n\rangle = \exp\left(-i \frac{E_n}{\hbar} t\right) |n\rangle.$$

Здесь $|n\rangle$ и E_n — собственные векторы и собственные значения оператора Гамильтона \mathcal{H} , удовлетворяющие не зависящему от времени уравнению для определения собственных значений:

$$\mathcal{H} |n\rangle = E_n |n\rangle. \quad (6.3)$$

В § 2 уравнение (6.3) будет решено для собственных значений методом применения операторов рождения и уничтожения для электромагнитного поля.

§ 2. КВАНТОВАНИЕ ПОЛЕЙ В РЕЗОНАТОРЕ

В качестве введения в метод квантования начнем рассмотрение простого случая — замкнутого полого резонатора, в котором отсутствует ток или свободные заряды. Будем предполагать, что стенки резонатора являются идеально проводящими, а заполняющая среда имеет диэлектрическую проницаемость ϵ и магнитную проницаемость μ . Распределение поля внутри такого резонатора может быть выражено через сумму нормальных мод

$$\mathbf{E} = - \frac{1}{\sqrt{\epsilon}} \sum_a p_a(t) \mathbf{E}_a(\mathbf{r}), \quad \mathbf{H} = \frac{1}{\sqrt{\mu}} \sum_a \omega_a q_a(t) \mathbf{H}_a(\mathbf{r}). \quad (6.4)$$

Здесь \mathbf{E}_a и \mathbf{H}_a — ортогональные функции, определяемые выражениями (2.51) и (2.52).

Если рассматривать энергию, запасенную в резонаторе, как гамильтониан системы, а $q_a(t)$ и $p_a(t)$ — как координаты и канонически сопряженные импульсы соответственно, то можно показать, что такой выбор гамильтониана приводит к правильным уравнениям движения системы, которые являются уравнениями Максвелла.

Пусть

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \int (\epsilon \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} + \mu \mathbf{H} \cdot \mathbf{H}) dV = \frac{1}{2} \sum_a (p_a^2 + \omega_a^2 q_a^2). \quad (6.5)$$

Здесь второе выражение получено подстановкой разложения по нормальным модам (6.4) с учетом условия ортогональности (2.52).

Из уравнений Гамильтона имеем

$$\dot{q}_a = \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial p_a} = p_a.$$

Поэтому

$$\frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} = \frac{1}{V\mu} \sum_a \omega_a \dot{q}_a \mathbf{H}_a = \frac{1}{V\mu} \sum_a \omega_a p_a \mathbf{H}_a.$$

Из уравнения (2.51) получим

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{V\epsilon} \sum_a p_a \nabla \times \mathbf{E}_a = -\frac{1}{V\epsilon} \sum_a p_a \frac{\omega_a \eta}{c} \mathbf{H}_a.$$

Из последних двух уравнений находим $\nabla \times \mathbf{E} = -\mu \partial \mathbf{H} / \partial t$ — одно из уравнений Максвелла. Аналогичным образом получим $\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon \partial \mathbf{E} / \partial t$. Следовательно, выбор гамильтониана в виде (6.5) является удачным.

Гамильтониан для электромагнитного поля (6.5) аналогичен гамильтониану совокупности осцилляторов с единичными массами. Поэтому квантование электромагнитного поля в резонаторе сводится к проблеме квантования гармонических осцилляторов. Чтобы упростить обозначения, рассмотрим поле с одной нормальной модой. При таком предположении знак суммы в (6.5) можно опустить и гамильтониан поля будет идентичен гамильтониану гармонического осциллятора единичной массы. Отбрасывая индекс a при ω , запишем

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} (p^2 + \omega^2 q^2). \quad (6.6)$$

Теперь определим собственные векторы и собственные значения, удовлетворяющие уравнению

$$\mathcal{H} |n\rangle = E_n |n\rangle. \quad (6.7)$$

Здесь \mathcal{H} берется в виде (6.6).

Решать уравнение (6.7) можно разными способами. Один из стандартных подходов заключается в подстановке операторов $q_i \equiv q_i$, $p_i \equiv -i\hbar\partial/\partial q_i$ и в решении полученного дифференциального уравнения для определения собственных функций и собственных значений.

Другой подход заключается в построении совокупности собственных векторов и определении соответствующих собственных значений, непосредственно основываясь на формальных операциях с бра- и кет-векторами. Этот общий подход называется вторичным квантованием и является наиболее прямым при решении задачи о гармоническом осцилляторе. Прежде всего полезно определить следующие операторы:

$$a = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega}} (\omega q + ip), \quad (6.8a)$$

$$a^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega}} (\omega q - ip). \quad (6.8б)$$

Поскольку операторы p и q соответствуют наблюдаемым и, следовательно, эрмитовы, то оператор a^\dagger является сопряженным оператору a . Заметим, что операторы a и a^\dagger сами по себе не эрмитовы, так как $a \neq a^\dagger$, поэтому эти операторы не соответствуют наблюдаемым. Операторы a и a^\dagger , так же как q и p , не коммутируют. Если образовать коммутатор для a и a^\dagger с помощью определения (6.8) и соотношения $[q, p] = i\hbar$, то найдем

$$[a, a^\dagger] = 1. \quad (6.9)$$

Операторы q и p можно выразить через операторы a и a^\dagger следующим образом:

$$q = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega}} (a^\dagger + a), \quad (6.10a)$$

$$p = i \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2}} (a^\dagger - a). \quad (6.10б)$$

Подстановка этих выражений в гамильтониан (6.6) и применение перестановочного соотношения (6.9) позволяют выразить \mathcal{H} через a и a^\dagger :

$$\mathcal{H} = \hbar\omega a^\dagger a + \frac{l\omega}{2}. \quad (6.11)$$

Подставляя (6.10) в (6.4), получаем выражения для электрического и магнитного полей в следующем виде (для одной моды):

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= -i \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon}} \mathbf{E}_a(\mathbf{r}) (a^\dagger - a), \\ \mathbf{H} &= \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\mu}} \mathbf{H}_a(\mathbf{r}) (a^\dagger + a). \end{aligned} \quad (6.12)$$

Теперь можно определить собственные значения оператора \mathcal{H} . Как упоминалось ранее, методика, которая здесь используется, отличается от наиболее часто применяемой, например, при определении собственных функций и собственных значений для атома водорода. В последнем случае, вообще говоря, решается задача на собственные значения в виде дифференциального уравнения в частных производных и находится совокупность волновых функций, зависящих от координат. Волновые функции, однако, сами не являются наблюдаемыми, и с точки зрения матричной механики такой подход рассматривается просто как математический метод определения собственных значений. Вторичное квантование — другой подход, предложенный Дираком, позволяет находить собственные значения на основе общего бра- и кет-формализма. Этот метод и будет здесь использован. Действуя на уравнение (6.7) оператором a , получаем

$$a\mathcal{H}|n\rangle = aE_n|n\rangle.$$

Подставляя \mathcal{H} из (6.11), имеем

$$a\left(\hbar\omega a^\dagger a + \frac{\hbar\omega}{2}\right)|n\rangle = aE_n|n\rangle, \quad (6.13)$$

однако

$$a(a^\dagger a) = (aa^\dagger)a = (1 + a^\dagger a)a. \quad (6.14)$$

Здесь первое равенство вытекает из того, что a и a^\dagger подчиняются свойству ассоциативности, а второе получено после подстановки перестановочного соотношения (6.9). Подставляя (6.14) в уравнение (6.13) и используя (6.11), получаем

$$\mathcal{H}a|n\rangle = (E_n - \hbar\omega)a|n\rangle.$$

Из этого равенства ясно, что $a|n\rangle$ является собственным вектором гамильтониана \mathcal{H} с собственным значением $(E_n - \hbar\omega)$. Оператор a называется оператором *уничтожения*, так как при его действии на собственное состояние возникает другое собственное состояние, собственное значение энергии у которого меньше, чем у первоначального состояния. Следовательно, при действии оператора a одно собственное состояние преобразуется в другое с одновременным уничтожением энергии, равной по величине $\hbar\omega$.

Подобным образом действуя на уравнение (6.7) оператором a^\dagger , получаем

$$\mathcal{H}a^\dagger|n\rangle = (E_n + \hbar\omega)a^\dagger|n\rangle. \quad (6.15)$$

Следовательно, при действии оператора a^\dagger происходит преобразование одного собственного состояния в другое, сопровождающееся увеличением собственного значения энергии на величину $\hbar\omega$. Поэтому оператор a^\dagger называется оператором *рождения*.

Если начать рассмотрение с собственного состояния $|n\rangle$, то, применяя оператор рождения или уничтожения, можно получить новое собственное состояние с энергией, отличающейся от энергии исходного состояния на величину $\hbar\omega$. Этот процесс можно повторять и получать новые собственные состояния, отличающиеся друг от друга по энергии на величину $\hbar\omega$.

Определим теперь область возможных собственных значений E_n , чтобы установить, можно ли применять процесс повторения до бесконечности в обоих направлениях для получения собственных состояний под действием операторов рождения и уничтожения. Ответ получается отрицательный, поскольку имеется нижний предел собственных значений энергии, обусловленный тем, что величина энергии должна быть больше или равна нулю. Доказательство того, что $E_n \geq 0$, начнем с рассмотрения уравнения

$$\mathcal{H} |n\rangle = \frac{1}{2} (p^2 + \omega^2 q^2) |n\rangle = E_n |n\rangle.$$

Умножив слева обе части уравнения на $\langle n|$, получим

$$\frac{1}{2} (\langle n | p^2 | n \rangle + \omega^2 \langle n | q^2 | n \rangle) = E_n. \quad (6.16)$$

Здесь предполагается, что $|n\rangle$ составляют ортонормированную совокупность. Поскольку операторы p и q эрмитовы, то применение единичного оператора $I = \sum_m |m\rangle \langle m|$ дает

$$\begin{aligned} \langle n | p^2 | n \rangle &= \sum_m \langle n | p | m \rangle \langle m | p | n \rangle = \\ &= \sum_m \langle m | p | n \rangle^* \langle m | p | n \rangle = \\ &= \sum_m |\langle m | p | n \rangle|^2 \geq 0 \end{aligned}$$

и аналогично $\langle n | q^2 | n \rangle \geq 0$. Следовательно, из выражения (6.16) имеем $E_n \geq 0$.

В результате проведенных рассмотрений можно заключить, что имеется минимальное собственное значение $E_0 \geq 0$, которому соответствует собственное состояние, обозначаемое $|0\rangle$. Поскольку $a|n\rangle$ является собственным состоянием с энергией $(E_n - \hbar\omega)$, то должно выполняться равенство $a|0\rangle = 0$, ибо в противном случае существовали бы собственные значения, меньшие чем E_0 .

Поскольку $a|0\rangle = 0$, то справедливо следующее равенство:

$$\hbar\omega a^\dagger a |0\rangle = 0. \quad (6.17)$$

Учитывая (6.11), можно переписать (6.17) в виде

$$\left(\mathcal{H} - \frac{\hbar\omega}{2} \right) |0\rangle = 0.$$

Так как $\mathcal{H}|0\rangle = E_0|0\rangle$, то $E_0 = \hbar\omega/2$. Таким образом установлено, что существует собственное состояние $|0\rangle$ с минимальной энергией $E_0 = \hbar\omega/2$.

Последовательное действие оператором a^\dagger на $|0\rangle$ дает новые собственные состояния с собственными значениями энергии, отличающимися друг от друга на $\hbar\omega$. В связи с этим собственные значения, расположенные равномерно по шкале энергий, определяются соотношением

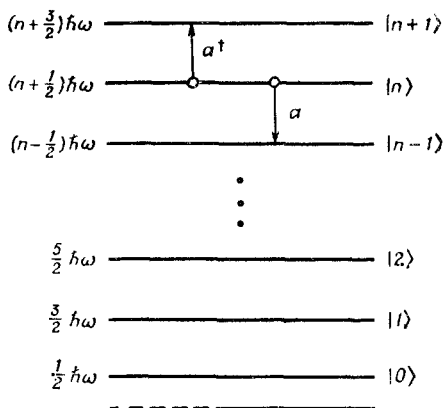
$$E_n = \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar\omega, \quad (6.18)$$

где n — положительное целое число или нуль.

Итак, показано, что существует минимальное собственное значение E_0 и имеется бесконечное число равномерно распределенных по шкале энергий собственных значений, соответствующих собственным состояниям, получаемым последовательным действием оператора a^\dagger .

Существуют ли еще какие-нибудь дополнительные собственные значения, кроме тех, которые определяются условием (6.18)? Предположим, что имеется собственное значение энергии E_k , не учитываемое условием (6.18), и соответствующее собственное состояние $|k\rangle$. Последовательное действие оператором a на $|k\rangle$ приводит к собственным значениям вида $(E_k - m\hbar\omega)$, где m — положительное целое число. Поскольку собственное значение не может быть отрицательным, должно существовать минимальное собственное значение энергии E'_0 , которому соответствует собственный вектор $|0'\rangle$, такой, что $a|0'\rangle = 0$. Из выражения (6.11) получим результат такой же, как и прежде, т. е. $E'_0 = E_0 = \hbar\omega/2$. Поскольку E_k больше E'_0 на целое число $\hbar\omega$, то собственное значение E_k учтено в (6.18).

Диаграмма уровней энергии для квантованного гармонического осциллятора представлена на фиг. 6.1. Когда осциллятор возбужден и находится в n -м собственном состоянии, он обладает энергией $(n + 1/2)\hbar\omega$, т. е. энергией, на $n\hbar\omega$ превышающей энергию самого нижнего уровня. В случае электромагнитного поля возбуждение гармонического осциллятора нормальной моды на n -е собственное состояние можно описать, говоря, что имеется n фотонов в этой моде, каждый из которых обладает



Фиг. 6.1. Диаграмма энергетических уровней для гармонического осциллятора.

энергией $\hbar\omega$. Иначе говоря, состояние $|n\rangle$ — это состояние с n квантами энергии.

Состояние $|0\rangle$, называемое вакуумным состоянием, характеризуется отсутствием квантов энергии, однако ему соответствует «нулевая энергия» $\hbar\omega/2$. Нет ничего необычного в наличии нулевого энергетического уровня, поскольку измерения энергии носят скорее относительный характер, чем абсолютный, и можно путем вычета величины $\hbar\omega/2$ из гамильтониана (6.11) сместить энергетическую шкалу так, что нулевая энергия будет равна нулю. Это допустимо, поскольку добавление постоянной величины к гамильтониану не изменяет вида ни классических, ни квантовомеханических уравнений движения. Например, средние значения электрических и магнитных полей, их квадратов и так далее не изменяются, если исключить нулевую энергию из гамильтониана (см. задачу 6.3).

Когда оператор рождения a^\dagger действует на собственный вектор $|n\rangle$, соответствующий некоторому собственному состоянию, содержащему n фотонов, то получается новый собственный вектор $|n+1\rangle$, соответствующий собственному состоянию, содержащему $n+1$ фотон. Поэтому оператор рождения описывает добавление одного фотона к полю, что приводит к увеличению энергии на величину $\hbar\omega$. Аналогично оператор уничтожения характеризует уничтожение одного фотона с соответствующим уменьшением энергии поля на величину $\hbar\omega$.

На языке фотонов операторы a и a^\dagger описывают рождение и уничтожение фотонов, отсюда и их названия. Комбинируя выражения (6.7), (6.11) и (6.18), замечаем, что произведение операторов $a^\dagger a$ удовлетворяет следующему уравнению:

$$a^\dagger a |n\rangle = n |n\rangle. \quad (6.19)$$

Оператор $a^\dagger a$ характеризует число фотонов в моде, причем среднее значение $\langle a^\dagger a \rangle$ для системы, находящейся в собственном состоянии $|n\rangle$, равно n . Поэтому оператор $a^\dagger a$ называется оператором числа фотонов.

В общем случае, когда состояние поля не описывается собственным состоянием $|n\rangle$ с числом фотонов n , а скорее представляет собой статистическую смесь состояний, под понятием «число фотонов в моде» следует понимать среднее значение оператора числа фотонов:

$$\langle n \rangle = \langle a^\dagger a \rangle = \text{Sp}(\rho a^\dagger a) = \sum_{n, m} \rho_{nm} (a^\dagger a)_{mn} = \sum_{n, m} \rho_{nm} n \delta_{mn} = \sum_n \rho_{nn} n. \quad (6.20)$$

Здесь матричные элементы $(a^\dagger a)_{mn}$ получены умножением слева выражения (6.19) на $\langle m|$. Последний член равенства (6.20) представляет собой стандартную запись для средних значений,

поскольку ρ_{nn} есть вероятность заселенности собственного состояния, содержащего n -фотонов.

Для вычисления матричных элементов операторов, выраженных через a и a^\dagger , необходимо определить нормировочные константы, связанные с этими операторами. Так как в результате действия оператора a на $|n\rangle$ получается собственное состояние $|n-1\rangle$, то можно записать

$$a|n\rangle = C_n|n-1\rangle.$$

Здесь C_n — коэффициент пропорциональности. Аналогично,

$$a^\dagger|n\rangle = D_n|n+1\rangle.$$

Здесь D_n — коэффициент пропорциональности для оператора рождения. Из выражения (6.19) имеем

$$a^\dagger a|n\rangle = n|n\rangle = a^\dagger C_n|n-1\rangle = C_n D_{n-1}|n\rangle.$$

Отсюда следует

$$C_n D_{n-1} = n. \quad (6.21)$$

Кроме того, поскольку оператор a^\dagger является сопряженным с оператором a и состояния $|n\rangle$ ортонормированы, находим

$$\langle n-1|a|n\rangle = C_n = \langle n|a^\dagger|n-1\rangle^* = D_{n-1}^*. \quad (6.22)$$

Коэффициенты C_n и D_n можно выбрать вещественными без ограничения общности решения. Поэтому на основании (6.21) и (6.22) запишем

$$C_n = \sqrt{n}, \quad D_n = \sqrt{n+1}.$$

Действия с операторами a и a^\dagger можно систематизировать следующим образом:

$$\begin{aligned} a|0\rangle &= 0, \\ a|n\rangle &= \sqrt{n}|n-1\rangle, \quad n \neq 0, \\ a^\dagger|n\rangle &= \sqrt{n+1}|n+1\rangle, \\ a^\dagger a|n\rangle &= n|n\rangle. \end{aligned} \quad (6.23)$$

Умножая слева каждое уравнение (6.23) на $\langle m|$, получаем соответствующие матричные элементы (6.24). Они также пред-

ставлены в табл. 8:

$$\begin{aligned} a_{mn} &= \sqrt{n} \delta_{m, n-1}, \\ a_{mn}^\dagger &= \sqrt{n+1} \delta_{m, n+1}, \\ (a^\dagger a)_{mn} &= n \delta_{mn}. \end{aligned} \quad (6.24)$$

Определив таким образом матричные элементы, можно приступить к решению интересующих нас проблем.

Таблица 8

Матричные элементы операторов a , a^\dagger и $a^\dagger a$

$$\begin{aligned} a \rightarrow & \begin{pmatrix} 0 & \sqrt{1} & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & \sqrt{2} & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 0 & \sqrt{3} & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \\ a^\dagger \rightarrow & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ \sqrt{1} & 0 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & \sqrt{2} & 0 & 0 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \\ a^\dagger a \rightarrow & \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 1 & 0 & 0 & \dots \\ 0 & 0 & 2 & 0 & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \end{pmatrix} \end{aligned}$$

1. Затухание энергии в моде резонатора

Рассмотрим применение формализма, развитого в предыдущем разделе, к изучению довольно простой задачи о нарастании и затухании электромагнитной энергии в резонаторе.

Оператор энергии для поля в резонаторе определяется гамильтонианом (6.11). Среднее значение энергии записывается следующим образом:

$$\langle \mathcal{H} \rangle = \text{Sp}(\rho \mathcal{H}).$$

Чтобы получить уравнение движения, описывающее поведение энергии в резонаторе, будем следовать методике, развитой в гл. 2, где выведено дифференциальное уравнение для средних значений переменных. Из табл. 8 можно видеть, что все матричные элементы оператора $\mathcal{H} = \hbar\omega(a^\dagger a + 1/2)$, кроме диа-

гопальных, равны нулю. Следовательно, соответствующее уравнение движения для первой производной $\langle \mathcal{H} \rangle$ находится с помощью (1.49):

$$\langle \dot{\mathcal{H}} \rangle + \frac{\langle \mathcal{H} \rangle - \langle \mathcal{H} \rangle^e}{T_1} = 0. \quad (6.25)$$

Точкой обозначается дифференцирование по времени $\partial/\partial t$. Здесь очень важно уяснить себе, что это первый пример в данной книге, когда метод дифференциальных уравнений для средних значений величин, развитый в гл. 1, § 4, п. 5, применяется к системе, имеющей более двух уровней (гармонический осциллятор является системой с бесконечным числом уровней). Поэтому необходимо проанализировать предположение о том, что все времена продольной релаксации T_{jk} равны друг другу и определяются величиной T_1 . Это требование должно удовлетворяться при использовании формализма гл. 1. Для резонатора с линейным законом потерь в стенках видим, что энергия поля внутри резонатора затухает во времени экспоненциально с постоянной времени $T_1 = \tau_c$ (постоянной затухания резонатора) независимо от уровня возбуждения. Поскольку предположение о том, что $T_{jk} = T_1$, которое приводит к (6.25), согласуется с таким экспоненциальным затуханием, то можно заключить, что предположение о равенстве времен релаксации в этом случае оправдано.

С помощью выражений (6.11) и (6.20) уравнение (6.25) можно записать в виде

$$\langle \dot{\mathcal{H}} \rangle + \frac{\langle \mathcal{H} \rangle}{T_1} = \frac{1}{T_1} \hbar \omega \left(\langle n \rangle^e + \frac{1}{2} \right).$$

Величина $\langle n \rangle^e$ представляет собой число фотонов в моде при условиях теплового равновесия и определяется из (6.20)

$$\langle n \rangle^e = \sum_n \rho_{nn}^e n.$$

Таким образом, видим, что среднее значение энергии в нормальной моде резонатора подчиняется экспоненциальному закону затухания вида e^{-t/T_1} , где T_1 — постоянная затухания резонатора τ_c , связанная с потерями энергии поля в окружающее пространство. В результате затухания величина энергии стремится достичь значения $\hbar \omega (\langle n \rangle^e + 1/2)$, которое представляет собой сумму нулевой энергии $\hbar \omega / 2$ и энергии, соответствующей числу фотонов в моде при равновесных условиях. При условиях теплового равновесия устанавливается равновесный уровень в результате теплового излучения окружающих тел.

2. Уравнение поля для отдельной моды резонатора

Другой важной задачей, при рассмотрении которой применяются квантование поля, является определение временной зависимости электрического поля. С помощью соотношений (6.12) оператор электрического поля для одной нормальной моды резонатора можно выразить через операторы рождения и уничтожения a^+ и a следующим образом:

$$\mathbf{E} = -i \left(\frac{\hbar \omega}{2\epsilon} \right)^{1/2} \mathbf{E}_a(\mathbf{r}) (a^+ - a). \quad (6.26)$$

На основании табл. 8 видим, что все диагональные элементы матрицы \mathbf{E} равны нулю. Поэтому, используя (1.48), можно получить уравнение движения для первой производной от среднего значения величины $\langle \mathbf{E} \rangle = \text{Sp}(\rho \mathbf{E})$:

$$\langle \dot{\mathbf{E}} \rangle + \frac{\langle \mathbf{E} \rangle}{T_2} = \frac{1}{i\hbar} \langle [\mathbf{E}, \mathcal{H}] \rangle.$$

Пользуясь выражениями (6.11) и (6.26), вычислим коммутатор $[\mathbf{E}, \mathcal{H}]$:

$$[\mathbf{E}, \mathcal{H}] = i\hbar \omega \sqrt{\frac{\hbar \omega}{2\epsilon}} \mathbf{E}_a(\mathbf{r}) (a + a^+), \quad (6.27)$$

который, как видно из (6.12), пропорционален оператору магнитного поля \mathbf{H} . Используя (1.51), получаем выражение для второй производной $\langle \ddot{\mathbf{E}} \rangle$:

$$\langle \ddot{\mathbf{E}} \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{\mathbf{E}} \rangle + \frac{1}{T_2^2} \langle \mathbf{E} \rangle = -\frac{1}{\hbar^2} \langle [[\mathbf{E}, \mathcal{H}], \mathcal{H}] \rangle. \quad (6.28)$$

Внутренний коммутатор в правой части (6.28) определяется выражением (6.27). Вычисляя внешний коммутатор, находим

$$[[\mathbf{E}, \mathcal{H}], \mathcal{H}] = \hbar^2 \omega^2 \mathbf{E}.$$

Подставляя это выражение в (6.28), получаем уравнение, полностью выраженное через величину $\langle \mathbf{E} \rangle$:

$$\langle \ddot{\mathbf{E}} \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{\mathbf{E}} \rangle + \omega^2 \langle \mathbf{E} \rangle = 0. \quad (6.29)$$

Здесь мы предположили, что $\omega \gg 1/T_2$.

Уравнение (6.29) является дифференциальным уравнением для электрического поля в резонаторе с резонансной частотой ω и с коэффициентом затухания для поля T_2 . Решения уравнения (6.29) записываются в виде $e^{\pm i\omega t} e^{-t/T_2}$. Затухание с постоянной времени T_2 связано с потерями энергии поля в окружающем пространстве. Поскольку постоянная времени $T_1 = \tau_c$ в уравнении (6.25) для затухания $\langle \mathcal{H} \rangle$ характеризует те же

потери и поскольку $\langle \mathcal{H} \rangle$ является величиной, пропорциональной квадрату электрического поля, то постоянная T_2 связана с T_1 следующим равенством: $1/T_1 = 1/\tau_c = 2/T_2$.

Рассмотренные примеры показывают, каким образом можно перейти от квантования поля к описанию интересующих нас явлений с помощью дифференциальных уравнений для средних величин.

§ 3. КВАНТОВАНИЕ ПЛОСКИХ ВОЛН

В § 2 при квантовании поля ортонормированные моды в резонаторе использовались как базисные функции. Вместо этого иногда удобно применять разложение поля по плоским бегущим волнам.

Волновое уравнение для электрического поля \mathbf{E} в свободном от источников излучения пространстве имеет вид

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0. \quad (6.30)$$

Здесь $c = 1/\sqrt{\mu_0 \epsilon_0}$, а $\eta = \sqrt{\mu \epsilon / \mu_0 \epsilon_0}$ — показатель преломления. Аналогичное уравнение может быть выведено для \mathbf{H} .

Решения волнового уравнения для \mathbf{E} можно представить в виде плоских волн типа $\mathbf{1}_\sigma \exp[\pm i(\omega_k t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})]$, где $\mathbf{1}_\sigma$ — единичный вектор в направлении поляризации, а \mathbf{k} — волновой вектор. Из уравнения $\nabla \cdot \mathbf{D} = 0$ видно, что $\mathbf{1}_\sigma \cdot \mathbf{k} = 0$, т. е. направления поляризации и распространения взаимно ортогональны. Это условие называется условием поперечности. Каждому значению \mathbf{k} соответствуют два независимых направления поляризации $\sigma = 1, 2$ в поперечной плоскости, которые ортогональны вектору \mathbf{k} и друг другу.

Подставляя решение в экспоненциальной форме $\mathbf{1}_\sigma \exp[\pm i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})]$ в волновое уравнение (6.30) и используя равенство

$$\nabla \times (\mathbf{1}_\sigma e^{\pm i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}) = \mp i(\mathbf{1}_\sigma \times \mathbf{k}) e^{\pm i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}},$$

находим, что \mathbf{k} и ω_k связаны следующим образом:

$$k^2 = \frac{\omega_k^2 \eta^2}{c^2},$$

где $k^2 \equiv \mathbf{k} \cdot \mathbf{k}$.

Удобно потребовать, чтобы электрическое и магнитное поля удовлетворяли периодическим условиям на противоположных гранях куба с линейными размерами L и объемом $V = L^3$. Это позволяет выражать поля через моды, которые обладают свойством дискретности и ортогональности. Вдоль оси x имеем

$$e^{i[k_x x + k_y y + k_z z]} = e^{i[k_x(x+L) + k_y y + k_z z]}.$$

Таким образом, периодические граничные условия включают в себя требование, чтобы перенос на расстояние L параллельно ребру куба не изменял значения экспоненциального решения. Это требование удовлетворяется при выполнении условий

$$k_x = \frac{2\pi n_x}{L}, \quad k_y = \frac{2\pi n_y}{L}, \quad k_z = \frac{2\pi n_z}{L}. \quad (6.31)$$

Здесь n_x , n_y и n_z — целые числа в интервале от $-\infty$ до $+\infty$. Следовательно, постоянные распространения составляют дискретную совокупность значений.

Если экспоненциальные решения выбрать в виде

$$\mathbf{U}_{k\sigma}(\mathbf{r}) = \mathbf{1}_\sigma \frac{e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}}{\sqrt{V}}, \quad (6.32)$$

то функции $\mathbf{U}_{k\sigma}(\mathbf{r})$ будут удовлетворять условию ортонормированности

$$\int_V \mathbf{U}_{k\sigma}^*(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{U}_{k'\sigma'}(\mathbf{r}) dV = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{\sigma\sigma'}. \quad (6.33)$$

Здесь интеграл берется по всему объему куба V .

Электрическое поле может быть записано в виде суммы

$$\mathbf{E} = i \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\epsilon V}} \mathbf{1}_\sigma [a_{k\sigma} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + b_{k\sigma} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}]. \quad (6.34)$$

Здесь для классического поля $a_{k\sigma}$ и $b_{k\sigma}$ — изменяющиеся во времени коэффициенты, а выражение, стоящее перед скобками, является нормировочным коэффициентом, который позволяет выразить \mathcal{H} для плоских волн в такой форме, которую \mathcal{H} имеет для полей резонатора. В классическом случае \mathbf{E} является вещественной переменной, так что $\mathbf{E} = \mathbf{E}^*$, следовательно, из (6.34) имеем $b_{k\sigma} = -a_{k\sigma}^*$. В общем случае при переходе к квантовомеханическому описанию изменяющиеся во времени величины (в данном случае $a_{k\sigma}$ и $b_{k\sigma}$) становятся операторами. Поскольку \mathbf{E} является наблюдаемой, то оператор, соответствующий \mathbf{E} , эрмитов. Отсюда имеем $\mathbf{E} = \mathbf{E}^\dagger$, а это дает с учетом (6.34), что $b_{k\sigma} = -a_{k\sigma}^\dagger$. Следовательно, как для классического, так и для квантовомеханического случаев можно записать

$$\mathbf{E} = i \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\epsilon V}} \mathbf{1}_\sigma [a_{k\sigma} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - a_{k\sigma}^\dagger e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}]. \quad (6.35)$$

В случае плоских волн магнитное поле ортогонально вектору \mathbf{k} и вектору $\mathbf{1}_\sigma$, а отношение \mathbf{E} к \mathbf{H} равно $\sqrt{\mu/\epsilon}$. Следова-

тельно, магнитное поле можно представить в виде суммы

$$\mathbf{H} = i \sum_{\mathbf{k}, \sigma} V \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\mathbf{k}}}{2\mu V}} (\mathbf{1}_{\mathbf{k}} \times \mathbf{1}_{\sigma}) [a_{\mathbf{k}\sigma} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}]. \quad (6.36)$$

Здесь $\mathbf{1}_{\mathbf{k}}$ — единичный вектор в направлении вектора \mathbf{k} .

Когда гамильтониан выбран таким образом, что он равен электромагнитной энергии в нормировочном объеме V , т. е.

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \int_V (\epsilon \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} + \mu \mathbf{H} \cdot \mathbf{H}) dV,$$

на основании формул (6.32) — (6.36) получим

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \hbar \omega_{\mathbf{k}} (a_{\mathbf{k}\sigma} a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} + a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} a_{\mathbf{k}\sigma}). \quad (6.37)$$

Если (6.37) есть действительно гамильтониан, то, выразив $a_{\mathbf{k}\sigma}$ через координату q и импульс p , из уравнений Гамильтона получим уравнения Максвелла. Пользуясь выражением (6.8) для определения $a_{\mathbf{k}\sigma}$, можно преобразовать \mathcal{H} в гамильтониан гармонических осцилляторов:

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}, \sigma} (p_{\mathbf{k}\sigma}^2 + \omega_{\mathbf{k}}^2 q_{\mathbf{k}\sigma}^2).$$

Применяя методику, аналогичную использованной при квантовании поля резонатора, можно показать, что уравнения Максвелла получаются из уравнений Гамильтона. Для квантования полей далее постулируется, что $q_{\mathbf{k}\sigma}$ и $p_{\mathbf{k}\sigma}$ являются операторами, удовлетворяющими перестановочным соотношениям $[q_{\mathbf{k}\sigma}, p_{\mathbf{k}'\sigma'}] = i\hbar \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{\sigma\sigma'}$. Переменные $a_{\mathbf{k}\sigma}$, $a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger}$ можно рассматривать как операторы рождения и уничтожения, для которых справедливо следующее соотношение: $[a_{\mathbf{k}\sigma}, a_{\mathbf{k}'\sigma'}^{\dagger}] = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{\sigma\sigma'}$. Тогда гамильтониан (6.37) записывается в виде

$$\mathcal{H} = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \hbar \omega_{\mathbf{k}} \left(a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} a_{\mathbf{k}\sigma} + \frac{1}{2} \right),$$

а разложения (6.35) и (6.36) рассматриваются как выражения для квантованных полей через операторы $a_{\mathbf{k}\sigma}$, $a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger}$.

После приведения гамильтониана к указанному выше виду решение задачи о собственных значениях и определение матричных элементов операторов a и a^{\dagger} проводятся точно таким же способом, какой применялся в предыдущей главе для квантования поля в резонаторе. Следовательно, матричные элементы определяются выражением (6.24) и табл. 8.

Если увеличивать объем, так что $L \rightarrow \infty$, то суммы в выражениях настоящего параграфа заменяются интегралами вида

$$\frac{1}{V} \sum_{\mathbf{k}} \rightarrow \frac{1}{V(2\pi)^3} \int d\mathbf{k}$$

и условие ортогональности (6.33) будет иметь вид

$$\frac{1}{V(2\pi)^3} \int \mathbf{U}_{\mathbf{k}\sigma}^*(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{U}_{\mathbf{k}'\sigma'}(\mathbf{r}) dV = \delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \delta_{\sigma\sigma'}$$

Здесь $\delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k})$ — дельта-функция Дирака.

§ 4. ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ В СЛУЧАЕ, КОГДА ПОЛЕ И СРЕДА КВАНТУЮТСЯ

В гл. 2 и 3 рассматривалось взаимодействие излучения с веществом на основе полуклассического подхода, когда среда квантована, а поля предполагаются классическими. Полуклассический подход, вообще говоря, был полностью справедлив для рассматриваемых задач. Однако в задачах, в которых учитываются спонтанное излучение и шумы, необходимо применять полностью квантовый подход, при котором как поле, так и среда квантуются.

В этом параграфе будет развит полностью квантовый подход к резонансному взаимодействию излучения и двухуровневых молекулярных систем, связанных электрическим дипольным переходом. Поскольку эта проблема аналогична той, которая рассматривалась в полуклассической точке зрения в гл. 2 и 3, изучение ее позволит заметить разницу между обоими подходами. Она будет служить также моделью, на которой мы разработаем методику, применяемую в тех случаях, когда требуется полностью квантовый подход, например при рассмотрении эффектов спонтанного излучения и квантовых шумов.

Предполагается, что рассматриваемая система состоит из \mathcal{N} атомов или молекул, заполняющих резонатор. Атомы или молекулы обладают парой невырожденных энергетических собственных состояний противоположной четности, $|u_1\rangle$ и $|u_2\rangle$, различающихся по энергии на величину $E_2 - E_1 = \hbar\Omega$ и связанных электрическим дипольным переходом. Будем считать, что резонатор может возбуждаться на одной моде с резонансной частотой $\omega_a \approx \Omega$. Диаграммы уровней энергии для среды и поля приведены на фиг. 6.2. Гамильтониан берется в виде $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'$. Член \mathcal{H}_0 , являющийся гамильтонианом системы в отсутствие взаимодействия молекул с полем, представляется в виде суммы двух слагаемых

$$\mathcal{H}_0 = \mathcal{H}_{0m} + \mathcal{H}_{0f}$$

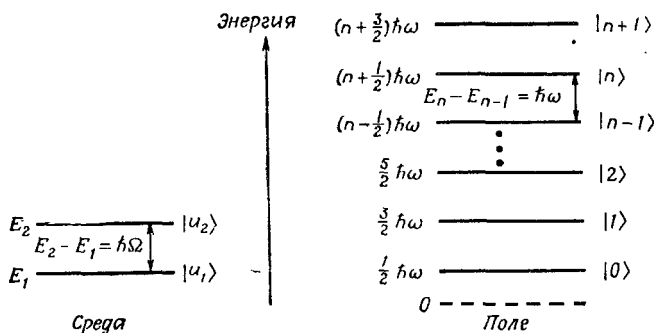
Первое слагаемое характеризует энергию молекулы в отсутствие излучения, второе — энергию поля в отсутствие молекулы. В качестве базисных функций выберем собственные векторы $|u_i, n\rangle = |u_i\rangle |n\rangle$, удовлетворяющие уравнению

$$(\mathcal{H}_{0m} + \mathcal{H}_{0f})|u_i, n\rangle = \left[E_i + \left(n + \frac{1}{2} \right) \hbar\omega \right] |u_i, n\rangle, \\ i = 1, 2; \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (6.38)$$

Здесь $|u_i\rangle$ — собственное состояние среды. Член \mathcal{H}' , характеризующий взаимодействие и соответствующий электрическому дипольному переходу, записывается в виде

$$\mathcal{H}' = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} = -\mu_\alpha E_\alpha,$$

где подразумевается суммирование по повторяющимся индексам.



Фиг. 6.2. Диаграммы энергетических уровней для двухуровневой квантованной среды и квантованного электромагнитного поля.

При полуклассическом подходе считалось, что $\boldsymbol{\mu}$ является оператором, а \mathbf{E} — классической величиной. При полностью квантовом подходе обе величины являются операторами. В этом случае матричные элементы задаются следующим образом:

$$\mathcal{H}'_{i, n; j, m} = -\langle u_i | \langle n | \mu_\alpha E_\alpha | u_j \rangle | m \rangle = -(\mu_\alpha)_{ij} (E_\alpha)_{nm}. \quad (6.39)$$

Поскольку предполагалось, что состояния $|u_1\rangle$ и $|u_2\rangle$ имеют противоположную четность, то отличными от нуля матричными элементами дипольного оператора $(\mu_\alpha)_{ij}$ будут только $(\mu_\alpha)_{12} = (\mu_\alpha)_{21}^* \equiv \mu_\alpha$. Для поля предполагается наличие одной нормаль-

ной моды. Матричные элементы E_{nm} находятся с помощью (6.24) и (6.26):

$$(E_a)_{nm} = -i \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon}} (E_a)_\alpha (\sqrt{m+1} \delta_{n, m+1} - \sqrt{m} \delta_{n, m-1}).$$

Здесь E_a — нормальная мода поля. Следовательно, находим, что матричными элементами гамильтониана (6.39), характеризующего взаимодействие, будут

$$\begin{aligned} \mathcal{H}'_{1, n; 2, n-1} &= i \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon}} \mu_\alpha (E_a)_\alpha \sqrt{n}, \\ \mathcal{H}'_{2, n; 1, n-1} &= i \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon}} \mu_\alpha^* (E_a)_\alpha \sqrt{n}, \\ \mathcal{H}'_{1, n; 2, n+1} &= -i \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon}} \mu_\alpha (E_a)_\alpha \sqrt{n+1}, \\ \mathcal{H}'_{2, n; 1, n+1} &= -i \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon}} \mu_\alpha^* (E_a)_\alpha \sqrt{n+1}. \end{aligned} \quad (6.40)$$

1. Уравнения движения для оператора плотности

Уравнения движения для системы получаются из уравнений для матрицы плотности (1.30) и (1.36). Обозначения для элементов матрицы плотности в случае полного квантования несколько сложнее, чем при полуклассическом подходе, поскольку как состояние среды, так и состояние поля должны быть определены. Типичный матричный элемент имеет вид $\langle u_i, n | \rho | u_j, m \rangle = \langle u_i | \langle n | \rho | u_j \rangle | m \rangle = \rho_{i, n; j, m}$. Диагональный элемент $\rho_{i, n; i, n}$ характеризует совокупную вероятность того, что среда находится в состоянии $|u_i\rangle$, а поле — в состоянии $|n\rangle$. С помощью диагональных элементов можно вычислить полную вероятность того, что молекула находится в состоянии $|u_i\rangle$:

$$\rho_{ii} = \sum_n \rho_{i, n; i, n}. \quad (6.41)$$

Аналогично полная вероятность того, что поле находится в состоянии $|n\rangle$, равна

$$\rho_{nn} = \sum_i \rho_{i, n; i, n}. \quad (6.42)$$

Уравнения для матрицы плотности системы молекула — поле получаются на основании уравнений (1.30) и (1.36) и

ИМЕЮТ ВИД

$$i\hbar\dot{\rho}_{i, n; j, m} - \hbar\omega_{i, n; j, m}\rho_{i, n; j, m} + \frac{i\hbar}{\tau_{i, n; j, m}}\rho_{i, n; i, m} = [\mathcal{H}', \rho]_{i, n; j, m} \quad (6.43)$$

$$i = 1, 2, \quad j = 1, 2,$$

$$n, m = 0, 1, 2, \dots,$$

$$i, n \neq j, m,$$

$$i\hbar\dot{\rho}_{i, n; i, n} + \frac{i\hbar}{T_{i, n; i, n}}(\rho_{i, n; i, n} - \rho_{i, n; i, n}^c) = [\mathcal{H}', \rho]_{i, n; i, n}, \quad (6.44)$$

$$i = 1, 2,$$

$$n = 0, 1, 2, \dots$$

Здесь

$$\hbar\omega_{i, n; j, m} = E_i - E_j + (n - m)\hbar\omega. \quad (6.45)$$

Соответствующие значения времен релаксации $\tau_{i, n; j, m}$ и $T_{i, n; i, n}$ выбираются в процессе вывода уравнений для изучаемых величин.

В большей части книги не применялись непосредственно уравнения для матрицы плотности (1.30) и (1.36), а использовались уравнения, содержащие производные по времени от среднего значения (гл. 1, § 4, п. 5). Аналогичный подход можно было бы применить и здесь. Однако при наличии произведений собственных состояний поля и вещества удобно оперировать с основными уравнениями для матрицы плотности, что мы и будем делать в дальнейшем.

2. Кинетические уравнения

Выведем теперь уравнения движения для средних значений переменных. Одной из переменных является число фотонов в моде $\langle n \rangle$, задаваемое выражением (6.20):

$$\langle n \rangle = \langle a^\dagger a \rangle = \text{Sp}(\rho a^\dagger a) = \sum_{i, n; j, m} \rho_{i, n; j, m} (a^\dagger a)_{j, m; i, n}. \quad (6.46)$$

Матричные элементы оператора $a^\dagger a$ определяются с помощью выражения (6.24):

$$(a^\dagger a)_{j, m; i, n} = \langle u_j | \langle m | a^\dagger a | u_i \rangle | n \rangle = (a^\dagger a)_{mni} \delta_{ij} = n \delta_{mi} \delta_{ij}. \quad (6.47)$$

Комбинируя (6.46) и (6.47), находим

$$\langle n \rangle = \sum_n n \rho_{nn}. \quad (6.48)$$

Здесь ρ_{nn} определяются из (6.42).

Чтобы получить уравнение движения, начнем с дифференцирования выражения (6.48) по времени

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle = \sum_n n \dot{\rho}_{nn} = \sum_n n \sum_i \dot{\rho}_{i, n; i, n} = \sum_n n (\dot{\rho}_{1, n; 1, n} + \dot{\rho}_{2, n; 2, n}). \quad (6.49)$$

При вычислении правой части уравнения (6.49) надо ввести ряд довольно громоздких подстановок из уравнений для матрицы плотности (6.43) и (6.44). Это вынесено в приложение 7.

В результате получаем

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_c} = -G \sum_n n (\rho_{1, n; 1, n} - \rho_{2, n; 2, n}) + G\rho_{22}. \quad (6.50)$$

Здесь

$$G = \frac{\pi\omega}{\hbar\epsilon} (\mu_\alpha \mu_\beta^*) (E_\alpha)_\alpha (E_\alpha)_\beta g_L(\omega, \Omega), \quad (6.51)$$

$g_L(\omega, \Omega)$ — лоренцева функция формы линии.

Аналогичным образом можно вывести выражение для разности вероятностей заселенности верхнего и нижнего состояний ($\rho_{11} - \rho_{22}$), которая определяется из выражения (6.41):

$$\rho_{11} - \rho_{22} = \sum_n (\rho_{1, n; 1, n} - \rho_{2, n; 2, n}). \quad (6.52)$$

Дифференцируя (6.52) по времени и используя (6.40) и выражения (П. 7.4) — (П. 7.7) из приложения 7, получаем

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_{11} - \rho_{22}) + \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11} - \rho_{22})^e}{T_1} = \\ = -2G \sum_n n (\rho_{1, n; 1, n} - \rho_{2, n; 2, n}) + 2G\rho_{22}, \end{aligned} \quad (6.53)$$

где отождествление постоянной времени в левой части (6.53) с T_1 соответствует физическому смыслу T_1 как времени продольной релаксации среды, связанного с такими процессами, которые заставляют вероятности заселенности ρ_{11} и ρ_{22} релаксировать к их равновесным значениям.

Уравнения (6.50) и (6.53) представляют собой разновидность кинетических уравнений, которые описывают развитие процессов во времени, а именно изменение числа фотонов в моде и изменение разности вероятностей заселенности верхнего и нижнего состояний молекулы. Кинетические уравнения описывают изменения этих величин в результате взаимодействия между полем, молекулой и окружающей средой.

Смысл членов в правой части уравнений (6.50) и (6.53) можно проиллюстрировать на двух примерах. Сначала предположим, что молекула находится в нижнем состоянии, так что

$\rho_{11} = 1$ и $\rho_{2, n; 2, n} = 0$. Используя (6.42) и (6.48), уравнение (6.50) можно записать в виде

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_c} = -G \langle n \rangle. \quad (6.54a)$$

Таким образом, когда молекула находится в нижнем состоянии, число фотонов в моде уменьшается со скоростью $G \langle n \rangle$ вследствие взаимодействия с молекулой. Это процесс поглощения, причем он развивается со скоростью, пропорциональной числу присутствующих фотонов.

С другой стороны, если молекула находится в верхнем состоянии, так что $\rho_{1, n; 1, n} = 0$ и $\rho_{22} = 1$, то уравнение (6.50) приобретает вид

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_c} = G \langle n \rangle + G\rho_{22} = G(\langle n \rangle + 1). \quad (6.54b)$$

Отсюда видно, что, когда молекула находится в верхнем состоянии, число фотонов в резонаторе увеличивается в результате взаимодействия с молекулой. Увеличение числа фотонов обусловлено двумя процессами. Один процесс идет со скоростью $G \langle n \rangle$, пропорциональной числу фотонов в моде. Этот процесс, обратный процессу поглощения, называется вынужденным излучением. Именно вынужденное излучение обеспечивает работу лазеров. Второй член в правой части уравнения (6.54b) описывает излучение фотонов в моду резонатора молекулой, находящейся в верхнем состоянии, благодаря процессу, который не зависит от числа фотонов в моде. Этот процесс существует даже в отсутствие полей и поэтому называется спонтанным излучением. Поскольку этот член имеет такой же вид, как и член для вынужденного излучения при $\langle n \rangle = 1$, то этот процесс иногда называют процессом излучения «экстра-фотона».

Когда молекула не находится точно в верхнем или нижнем состоянии, разделение взаимодействия на процессы поглощения и излучения, скорость которых пропорциональна $\langle n \rangle$, не всегда возможно. Эта трудность вызвана тем, что существует возможность статистической зависимости состояний. Элемент матрицы плотности $\rho_{i, n; i, n}$ есть вероятность того, что молекула находится в состоянии $|u_i\rangle$, а поле — в состоянии $|n\rangle$. Если вероятность нахождения молекулы в состоянии $|u_i\rangle$ зависит от того, в каком состоянии $|n\rangle$ находится поле, то

$$\rho_{i, n; i, n} \neq \rho_{ii} \rho_{nn}.$$

Здесь ρ_{ii} — вероятность того, что система находится в состоянии $|u_i\rangle$, а ρ_{nn} — вероятность нахождения системы в состоянии $|n\rangle$. Когда это неравенство существует, говорят, что состояния

молекулы и поля статистически зависимы и кинетические уравнения не могут быть выражены в терминах ρ_{11} , ρ_{22} и $\langle n \rangle$. Если, однако,

$$\rho_{i, n; l, n} = \rho_i \rho_{nn}, \quad (6.55)$$

то говорят, что состояния молекулы и поля статистически независимы. В дальнейшем будем предполагать, что состояния статистически независимы, т. е. справедливо равенство (6.55). Машкевич [4] рассмотрел условия, при которых равенство (6.55) может нарушаться, и нашел, что статистическая зависимость играет существенную роль только в лазерах высокой мощности, работающих в режиме модуляции добротности.

Предполагая, что (6.55) выполняется, с помощью выражений (6.41) и (6.42) кинетические уравнения (6.50) и (6.53) можно свести к виду

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_c} = G (\langle n \rangle + 1) \rho_{22} - G \langle n \rangle \rho_{11}, \quad (6.56)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_{11} - \rho_{22}) + \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11} - \rho_{22})^e}{T_1} = \\ = 2G (\langle n \rangle + 1) \rho_{22} - 2G \langle n \rangle \rho_{11}. \end{aligned} \quad (6.57)$$

Первый и второй члены в правой части уравнений (6.56) и (6.57) характеризуют соответственно процессы излучения и поглощения.

Коэффициент G является константой связи, определяемой выражением (6.51). Для изотропной среды выражение для G сводится к

$$G = \frac{\pi \omega}{\hbar \epsilon} \frac{|\mu_{12}|^2}{3} g_L(\omega, \Omega) E_a^2. \quad (6.58)$$

Рассмотрим резонатор, в котором нормальная мода описывается функцией, пропорциональной $\cos kx$, т. е. $E_a \sim \cos kx$. Тогда константа связи G , определяемая выражением (6.58), будет пропорциональна $\cos^2 kx$, а следовательно, будет иметь узлы и пучности. Для атома, находящегося в окрестности узла, константа связи G будет иметь малую величину, и согласно (6.57), переходы будут осуществляться с малой скоростью. Соблазнительно истолковать это так, что в пучностях нормальной моды больше фотонов, чем в узлах, и, следовательно, переходы в пучностях будут идти с большей скоростью. Однако это неправильно. Анализ уравнения (6.56) и его физическая интерпретация показывают, что величина $\langle n \rangle$ характеризует число фотонов в моде и не изменяется при переходе от одной точки пространства к другой. Скорость изменения числа фотонов при определенном положении атома зависит от константы

связи G , являющейся функцией координат. Переменная $\langle n \rangle$ указывает квантованный уровень возбуждения гармонического осциллятора нормальной моды.

Рассмотрим также основанное на принципе неопределенности доказательство того, что некорректно полагать, будто фотоны могут быть локализованы в некоторой области пространства, размеры которой меньше длины волны. Пусть Δx и Δp — неопределенности в измерении координаты и импульса. Поскольку $p = \hbar k = 2\pi\hbar/\lambda$ и $\Delta x \Delta p \geq \hbar/2$, то $\Delta x \geq \lambda^2/4\pi\Delta\lambda$. Неопределенность в измерении длины волны $\Delta\lambda$ всегда меньше длины волны λ . Отсюда видно, что невозможно локализовать положение фотона в области Δx , если ее размеры меньше длины волны фотона.

Кинетические уравнения (6.56) и (6.57) были получены для отдельной молекулы. Поскольку константа связи G является функцией поля нормальной моды E_a , а E_a — функция координат, то разность населенностей также зависит от координат. Рассмотрим теперь случай, когда внутри объема V находится много молекул. Уравнение (6.56) можно распространить на случай многих молекул, если провести интегрирование правой части по объему резонатора.

Пренебрегая пространственными изменениями E_a и ρ_{ii} и рассматривая только усредненные по пространству величины, для \mathcal{N} молекул, однородно распределенных в объеме резонатора V , из (6.56) — (6.58) получим

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_c} = K (\langle n \rangle + 1) \mathcal{N}_2 - K \langle n \rangle \mathcal{N}_1, \quad (6.59)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) + \frac{(\mathcal{N}_1^e - \mathcal{N}_2^e) - (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2)^e}{T_1} = 2K (\langle n \rangle + 1) \mathcal{N}_2 - 2K \langle n \rangle \mathcal{N}_1. \quad (6.60)$$

Здесь $\mathcal{N}_1 = \mathcal{N} \rho_{11}$ и $\mathcal{N}_2 = \mathcal{N} \rho_{22}$ обозначают полное число молекул соответственно в нижнем и верхнем состояниях. Константа связи K задается в виде

$$K = \frac{\pi\omega}{\hbar\epsilon} \frac{|\mu_{12}|^2}{3} g_L(\omega, \Omega) \frac{1}{V}. \quad (6.61)$$

При вычислении K был использован тот факт, что условие нормировки $\int E_a^2 dV = 1$ сводится к виду $E_a^2 V = 1$, если пренебрегать пространственными изменениями в нормальной моде.

Уравнения (6.59) и (6.60) справедливы также и при учете пространственных изменений, если с достаточной точностью выполняется условие $\overline{G\rho_{ii}} = \overline{G}\rho_{ii}$, где черточки указывают на пространственное усреднение. В противном случае требуется

проводить интегрирование по объему резонатора правой части уравнения (6.56).

Кинетические уравнения (6.59) и (6.60) описывают взаимодействие поля резонатора и двухуровневого электрического дипольного перехода и выведены на основе подхода, когда квантуются как поле, так и среда. Первый член в правой части уравнения (6.59) описывает вынужденное и спонтанное излучение фотонов в моду резонатора от \mathcal{N}_2 молекул, находящихся в верхнем состоянии, а второй член характеризует поглощение фотонов \mathcal{N}_1 молекулами, находящимися в нижнем состоянии. Уравнение (6.60) описывает изменение разности населенностей в результате таких переходов. Множитель 2, который появляется в (6.60) и отсутствует в (6.59), указывает на то, что при любом процессе поглощения или излучения, приводящем к переходу молекулы из одного состояния в другое, разность населенностей изменяется на 2.

Если благодаря накачке имеется инверсная населенность, т. е. $(\mathcal{N}_2 - \mathcal{N}_1)^e > 0$, то уравнения (6.59) и (6.60) применимы для описания работы лазера. Поскольку уравнения для лазера были введены ранее (гл. 3, § 4, и гл. 4) на основе полуклассического анализа, то теперь можно сравнить результаты двух подходов, полуклассического и полностью квантового, и выяснить разницу между ними.

Уравнения, полученные на основе полуклассического рассмотрения, имеют вид (3.78) и (3.79). Сравнивая их с (6.59) и (6.60), замечаем, что полуклассические переменные N и φ соответствуют инверсной разности населенностей в *единице объема* и энергии $\hbar\omega$ в *единице объема*. Поэтому прежде чем проводить сравнение, их надо умножить на объем резонатора V . После этого можно заметить, что главное различие состоит в следующем. *Когда учитывается квантование поля, скорость перехода для процессов излучения пропорциональна не $\langle n \rangle$, как в полуклассической теории, а $(\langle n \rangle + 1)$, где дополнительный член, равный единице, характеризует спонтанное излучение.* Следовательно, в уравнения, полученные полуклассическим методом, можно внести поправки, учитывающие результаты квантования поля, а именно для процессов излучения произвести замену

$$\langle n \rangle \rightarrow \langle n \rangle + 1,$$

где дополнительный член, равный единице, характеризует учет эффектов спонтанного излучения.

Примененный в предыдущих главах полуклассический подход, при котором поле не квантуется, справедлив, когда выполняется условие $\langle n \rangle \gg 1$. Для резонатора это означает, что средняя запасенная энергия должна быть намного больше $\hbar\omega$.

В оптическом диапазоне ($\lambda = 5000 \text{ \AA}$) полуклассический подход дает хорошую аппроксимацию, если энергия значительно больше $4 \cdot 10^{-19} \text{ Дж}$. Полуклассический анализ, развитый в гл. 4, является исключительно хорошим приближением до тех пор, пока не интересуются работой лазера на пороге возбуждения или шумовыми характеристиками лазера.

3. Плотность мод

В предыдущих разделах рассматривалось взаимодействие только между молекулярным переходом и полем излучения, имеющим одномодовое распределение. Теперь эти результаты должны быть распространены на случай перехода, связанного одновременно с большим числом мод излучения. Поскольку фотоны излучаются спонтанно во все возможные моды, член, описывающий спонтанное излучение, должен учитывать наличие большого числа мод. Более того, когда молекулярный переход взаимодействует с излучением, имеющим широкий частотный спектр, члены, описывающие поглощение и вынужденное излучение, также должны учитывать наличие большого количества мод.

Будем рассматривать только случай, когда размеры резонатора велики по сравнению с длиной волны. Это предположение почти всегда справедливо для оптических частот. Когда размеры резонатора велики по сравнению с длиной волны, нормальные моды резонатора оказываются очень густо расположенными по сравнению с оптической частотой и относительно слабо зависят от точной формы резонатора.

Чтобы изучить взаимодействие с многомодовым излучением, необходимо рассчитать плотность мод, т. е. число мод в единице объема, приходящихся на единичный частотный интервал. Рассмотрим резонатор в виде куба с линейными размерами L и объемом $V = L^3$. Стоячие волны — нормальные моды резонатора — представляют собой тройные произведения синусов и косинусов с аргументами $k_x x$, $k_y y$ и $k_z z$ (представление в виде бегущих волн будет рассмотрено ниже).

Граничные условия на идеально проводящих стенках приводят к следующим требованиям:

$$k_x = \frac{n_x \pi}{L}, \quad k_y = \frac{n_y \pi}{L}, \quad k_z = \frac{n_z \pi}{L}.$$

Здесь n_x , n_y и n_z — целые числа от 0 до ∞ . Допустимые значения $\mathbf{k} = \mathbf{i}_x k_x + \mathbf{i}_y k_y + \mathbf{i}_z k_z$ можно представить в виде совокупности точек в \mathbf{k} -пространстве, как показано на фиг. 6.3. Каждая точка соответствует допустимому значению \mathbf{k} ,

определяемому тройкой целых чисел (n_x, n_y, n_z) . Будем применять следующее обозначение: $k \equiv |\mathbf{k}| = \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2}$.

Каждому значению \mathbf{k} , т. е. каждой точке, соответствуют две моды резонатора $TE_{n_x n_y n_z}$ и $TM_{n_x n_y n_z}$. Следовательно, имеются две моды в объеме $(\pi/L)^3$ \mathbf{k} -пространства и плотность мод равна $2(L/\pi)^3$ мод в единице объема в \mathbf{k} -пространстве. Число мод $d\mathcal{N}$ в бесконечно малой области $d\mathbf{k}$ определяется произведением плотности мод на объем сферического слоя в \mathbf{k} -пространстве, равный $4\pi k^2 dk$. Рассматривается только первый квадрант, поэтому вводится множитель $1/8$, учитывающий, что целые числа n_x, n_y и n_z могут иметь только положительные значения. Окончательно имеем

$$d\mathcal{N} = 2 \frac{V}{\pi^3} \times \frac{1}{8} \times 4\pi k^2 dk. \quad (6.62)$$

Здесь $V = L^3$. Переходя от совокупности дискретных точек к континууму, предположим, что элемент $d\mathbf{k}$ велик по сравнению с расстоянием между модами (π/L) . Поскольку частота моды ω связана с величиной \mathbf{k} соотношением $k = \omega\eta/c$, где η —

Фиг. 6.3. Распределение точек в \mathbf{k} -пространстве, соответствующих решениям в виде нормальных мод резонатора.

показатель преломления среды, заполняющей резонатор, имеем $dk = (\eta/c) d\omega$. Поэтому из (6.62) находим число мод в частотном интервале $d\omega$:

$$d\mathcal{N} = \frac{\omega^2 \eta^3 V}{\pi^2 c^3} d\omega.$$

Соответствующее число мод в единице объема в частотном интервале $d\omega$ определяется тогда следующим образом:

$$p(\omega) d\omega = \frac{d\mathcal{N}}{V} = \frac{\omega^2 \eta^3}{\pi^2 c^3} d\omega. \quad (6.63)$$

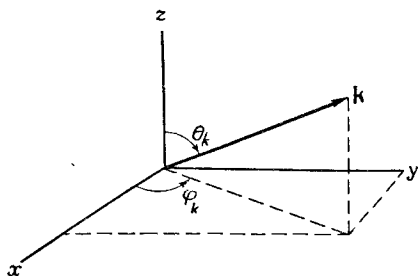
Поскольку $\omega = 2\pi\nu$, выражение (6.63) можно записать в виде

$$p(\nu) d\nu = \frac{8\pi\nu^2 \eta^3}{c^3} d\nu. \quad (6.64)$$

Итак, рассмотрена задача о плотности мод для случая, когда решения для нормальных мод можно представить в виде стоя-

чих волн. Если же рассматриваются моды в виде бегущих волн, как в § 3, то окончательные результаты получаются такими же, хотя имеется разница в промежуточных результатах. В этом случае периодические граничные условия приводят к требованию (6.31). Как и в методе стоячих волн, допустимые значения \mathbf{k} можно представить в виде ряда точек в \mathbf{k} -пространстве. Если в случае стоячих волн точки отстоят друг от друга на расстоянии (π/L) и рассматриваются только в первом квадранте, как показано на фиг. 6.3, то в случае бегущих волн они отстоят на $(2\pi/L)$ и допускается их существование во всех квадрантах. Поскольку для каждого значения \mathbf{k} могут существовать две поляризации, имеются две моды в объеме $(2\pi/L)^3$ \mathbf{k} -пространства, и плотность мод равна $2(L/2\pi)^3$ мод в единице объема \mathbf{k} -пространства. Число мод $d\mathcal{N}$ в элементарном объеме \mathbf{k} -пространства определяется следующим образом:

$$d\mathcal{N} = 2 \frac{V}{(2\pi)^3} dk_x dk_y dk_z.$$



Фиг. 6.4. \mathbf{k} — вектор в цилиндрических координатах.

В сферической системе координат (фиг. 6.4) элемент объема $dk_x dk_y dk_z$ записывается в виде $k^2 dk \sin \theta_k d\theta_k d\varphi_k$. Поэтому

$$d\mathcal{N} = \frac{2V}{(2\pi)^3} k^2 dk \sin \theta_k d\theta_k d\varphi_k = \frac{2V}{(2\pi)^3} k^2 dk d\zeta.$$

Здесь $d\zeta$ — элементарный телесный угол в \mathbf{k} -пространстве. Следовательно, $d\mathcal{N}$ — число мод в телесном угле $d\zeta$ и в элементе dk . Так как $k = \omega\eta/c$, $dk = (\eta/c) d\omega$, то число мод в единичном телесном угле, в единице объема и в частотном интервале $d\omega$ определяется следующим образом:

$$\frac{dp(\omega)}{d\zeta} d\omega = \frac{1}{V} \frac{d\mathcal{N}}{d\zeta} = 2 \frac{\omega^2 \eta^3}{(2\pi c)^3} d\omega. \quad (6.65)$$

При исследовании процессов, для которых характерна угловая зависимость, часто перед интегрированием по телесному углу необходимо выражать плотность мод в указанной выше форме. Если угловая зависимость отсутствует, то определение числа мод в единице объема в частотном интервале $d\omega$ и телесном угле $\zeta = 4\pi$ по (6.65) приводит к выражению (6.63), полученному для случая стоячих волн.

В следующих параграфах выражения для плотности мод будут использованы для определения величины спонтанного

излучения, чтобы распространить результаты, полученные при одномодовом рассмотрении, на случай большого количества мод или широкого частотного интервала.

4. Спонтанное излучение

Согласно (6.59), скорость, с которой фотоны в результате спонтанного излучения попадают в заданную моду резонатора, определяется выражением

$$\frac{\partial \langle n \rangle_a}{\partial t} = K \mathcal{N}_2. \quad (6.66)$$

Здесь индекс a обозначает рассматриваемую моду; \mathcal{N}_2 — число атомов или молекул в резонаторе, находящихся в верхнем состоянии, а величина K , определяемая (6.61), является вероятностью излучения фотона в единицу времени атомом, находящимся в верхнем состоянии. В результате спонтанного излучения в заданной моде разность населенностей, определяемая (6.60), будет изменяться в соответствии с уравнением

$$\frac{\partial}{\partial t} (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) = 2K \mathcal{N}_2. \quad (6.67)$$

В § 4, п. 3 было показано, что, вообще говоря, на заданную малую частотную область приходится очень большое число мод. Совокупность мод резонатора, с которыми связан переход, определяется частотной зависимостью коэффициента связи K , которая содержит функцию формы линии перехода. Обычно на ширину линии приходится много мод резонатора. Следовательно, полный выход фотонов (называемый флуоресценцией), попавших в результате спонтанного излучения во все моды резонатора, определяется при обобщении выражения (6.66).

Флуоресцентный выход фотонов =

$$= \sum_a \frac{\partial \langle n \rangle_a}{\partial t} = \sum_a K(\omega_a) \mathcal{N}_2. \quad (6.68)$$

Здесь основной вклад в сумму по всем модам дают моды, приходящиеся на ширину молекулярной линии. Отсюда находим скорость спонтанного излучения $A = 1/\tau_{sp}$, являющуюся вероятностью в единицу времени излучения фотона атомом, находящимся в верхнем состоянии:

$$A = \frac{1}{\tau_{sp}} = \sum_a K(\omega_a) \rightarrow V \int_0^{\infty} K(\omega) p(\omega) d\omega. \quad (6.69)$$

Здесь $p(\omega)d\omega$ — число мод в единице объема в частотном интервале $d\omega$, определяемое (6.63); V — объем резонатора; $K(\omega)$ — скорость спонтанного излучения при одномодовом рассмотрении, определяемая (6.61), а τ_{sp} — время спонтанной эмиссии.

Частотная зависимость подынтегрального выражения в (6.69) определяется главным образом быстро меняющейся функцией формы линии, содержащейся в $K(\omega)$. Поэтому линейную зависимость $K(\omega)$ от частоты и квадратичную зависимость $p(\omega)$ от ω можно вынести из-под знака интеграла, заменив ω на частоту перехода Ω . Тогда функция формы линии может быть проинтегрирована ($\int g(\omega) d\omega = 1$) и скорость спонтанного излучения будет определяться следующим выражением:

$$A = \frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{\Omega^3 \eta^3 |\mu_{12}|^2}{3\pi \hbar \epsilon c^3}. \quad (6.70)$$

Соотношение (6.70) связывает $|\mu_{12}|^2$ с обратной величиной времени спонтанного излучения. Следовательно, измеряя τ_{sp} , можно оценить матричный элемент, что часто используется на практике для нахождения $|\mu_{12}|^2$. Изменение разности населенностей в результате спонтанного излучения во все моды определяется уравнением, полученным путем обобщения (6.67):

$$\frac{\partial}{\partial t} (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) = 2A\mathcal{N}_2. \quad (6.71)$$

5. Модифицированные кинетические уравнения для одномодового случая

Поскольку спонтанное излучение носит многомодовый характер, изменение разности населенностей вследствие спонтанного излучения определяется величиной A , а не K , т. е. описывается уравнением (6.71), а не (6.67). Поэтому необходимо модифицировать кинетические уравнения (6.59) и (6.60), записав их в виде

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_c} = -K \langle n \rangle (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) + K\mathcal{N}_2, \quad (6.72)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) + \frac{(\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) - (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2)^e}{T_1} = \\ = 2K \langle n \rangle (\mathcal{N}_2 - \mathcal{N}_1) + 2A\mathcal{N}_2. \end{aligned} \quad (6.73)$$

Это означает, что разность населенностей уменьшается со скоростью $2A = 2/\tau_{sp}$ вследствие спонтанного излучения во всех возможных модах. Однако из приведенных выше уравнений видно, что скорость роста числа фотонов в одной моде $\langle n \rangle$ все еще определяется величиной K . Поэтому число фотонов, спонтанно излученных в данную моду, равно K/A от полного спонтанного излучения.

Уравнения (6.72) и (6.73) можно записать в более компактном виде, в котором при $\langle n \rangle \gg 1$ они становятся аналогичны уравнениям (3.78) и (3.79), полученным полуклассическим путем:

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^{e'}}{\tau_c} = -K \left(\langle n \rangle + \frac{1}{2} \right) \Delta \mathcal{N}^o, \quad (6.74)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \Delta \mathcal{N}^o + \frac{\Delta \mathcal{N}^o - \Delta \mathcal{N}^{oe'}}{T'_1} = -2K \langle n \rangle \Delta \mathcal{N}^o. \quad (6.75)$$

Здесь

$$\Delta \mathcal{N}^o = \mathcal{N}^o_1 - \mathcal{N}^o_2, \quad \mathcal{N}^o = \mathcal{N}^o_1 + \mathcal{N}^o_2, \quad \langle n \rangle^{e'} = \langle n \rangle^e + \frac{K \mathcal{N}^o \tau_c}{2},$$

$$\Delta \mathcal{N}^{oe'} = \left(\Delta \mathcal{N}^{oe} + \mathcal{N}^o \frac{T_1}{\tau_{sp}} \right) \left(\frac{T'_1}{T_1} \right)$$

и

$$\left(\frac{1}{T'_1} \right) = \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{\tau_{sp}} \right).$$

Уравнения (6.74) и (6.75) имеют такой же вид, как и уравнения (3.78) и (3.79), если произвести подстановки

$$\frac{\langle n \rangle}{V} \rightarrow \varphi, \quad \frac{\Delta \mathcal{N}^o}{V} \rightarrow -N.$$

В уравнениях (6.74) и (6.75) поправочный лоренцев коэффициент L принят равным единице и равновесная плотность фотонов $\langle n \rangle^e$ может быть отлична от нуля. Если не считать этих различий, то при $\langle n \rangle \gg 1$ соответствующие уравнения идентичны.

Скорость продольной релаксации $1/T'_1$ определяется двумя отдельными вкладами: с одной стороны, обычными тепловыми процессами, как, например, столкновениями или возбуждением колебаний решетки, и, с другой стороны, спонтанным излучением. При уменьшении температуры продольная релаксация, обусловленная тепловыми процессами, уменьшается, т. е. снижается скорость $1/T_1$. В рубиновом лазере для лазерного перехода с частотой 6943 \AA время релаксации $T'_1 = 3 \text{ мсек}$ при комнатной температуре, когда оба вклада играют существенную роль, увеличивается до $4,3 \text{ мсек}$ при 77° K , когда релаксация определяется полностью спонтанным излучением [5].

6. Взаимодействие немонахроматического излучения с веществом

В предыдущем разделе было рассмотрено взаимодействие одномодового монохроматического излучения с атомным или молекулярным переходом. Теперь распространим эти результаты на молекулярные системы, взаимодействующие с широкополосным излучением, когда полная ширина полосы спектра излучения превышает ширину молекулярного перехода.

Из правой части уравнения (6.72) можно определить скорость перехода с уровня 1 на уровень 2 в присутствии одномодового поля излучения

$$W_{12} = K \langle n \rangle \quad (6.76)$$

и скорость перехода с уровня 2 на уровень 1

$$W_{21} = K \langle n \rangle + A. \quad (6.77)$$

Уравнение для разности населенностей (6.73) можно выразить через скорости переходов

$$\frac{\partial}{\partial t} (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) + \frac{(\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2) - (\mathcal{N}_1 - \mathcal{N}_2)^e}{T_1} = 2W_{21}\mathcal{N}_2 - 2W_{12}\mathcal{N}_1. \quad (6.78)$$

При переходе от случая одномодового излучения к случаю широкополосного излучения можно еще пользоваться уравнением (6.78), однако скорости переходов W_{12} и W_{21} , определяемые уравнениями (6.76) и (6.77), должны быть обобщены суммированием или интегрированием по частотному диапазону

$$W_{12} = \sum_a K(\nu_a) \langle n(\nu_a) \rangle \rightarrow V \int_0^\infty K(\nu) p(\nu) \langle n(\nu) \rangle d\nu, \quad (6.79)$$

$$W_{21} \rightarrow V \int_0^\infty K(\nu) p(\nu) \langle n(\nu) \rangle d\nu + A. \quad (6.80)$$

Здесь $p(\nu) d\nu$ — число мод в единице объема в частотном интервале $d\nu$; V — объем резонатора; $K(\nu)$ — константа для одномодового излучения, определяемая уравнением (6.61). Если частотное распределение поля излучения $\langle n(\nu) \rangle$ и плотность мод $p(\nu)$ медленно меняются по сравнению с функцией формы линии, содержащейся в $K(\nu)$, то все величины, имеющие частотную зависимость, отличную от частотной зависимости функции формы линии, могут быть вынесены из-под знака интеграла. Учитывая это, уравнения (6.79) и (6.80) можно свести к виду

$$W_{12} = B_{12}\rho(\nu), \quad (6.81)$$

$$W_{21} = B_{21}\rho(\nu) + A. \quad (6.82)$$

Здесь $\rho(\nu)$ — энергия в единице объема, приходящаяся на единичный частотный интервал, определяется выражением

$$\rho(\nu) = p(\nu) h\nu \langle n(\nu) \rangle \quad (6.83)$$

и

$$B_{12} = B_{21} = B = \left(\frac{1}{h\nu} \right) V \int_0^\infty K d\nu.$$

Используя выражение (6.69) для A , находим отношение

$$\frac{A}{B} = h\nu\rho(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3\eta^3}{c^3}. \quad (6.84a)$$

С другой стороны, из (6.83) и (6.84a) можно найти

$$\frac{A}{B\rho} = \frac{1}{\langle n \rangle}. \quad (6.84б)$$

Здесь $\langle n \rangle$ — среднее значение числа фотонов в одной моде. При выводе этих соотношений использовалось выражение для плотности мод (6.64). Из (6.81) и (6.82) очевидно, что величина A связана со спонтанным излучением, в то время как величина B связана с процессами вынужденного излучения и поглощения.

Коэффициенты A и B называются коэффициентами Эйнштейна, поскольку первоначально их получил Эйнштейн, однако не методом квантования поля, а на основании термодинамического рассмотрения и классических предпосылок. Такой подход будет рассмотрен в п. 8. Из (6.84б) видно, что скорость вынужденного перехода в $\langle n \rangle$ раз больше скорости спонтанных переходов.

7. Излучение черного тела

Квантование поля позволяет предсказать спектральное распределение излучения черного тела, т. е. излучение от тела, находящегося в тепловом равновесии с окружающей средой [6]. В качестве излучателя рассмотрим полость, заполненную средой. В условиях теплового равновесия моды излучения возбуждены в результате обмена энергией между переходами в среде и полем излучения. В стационарных условиях число молекул на каждом энергетическом уровне остается постоянным и равным равновесному значению ввиду баланса между процессами поглощения и излучения.

Рассмотрим теперь некоторую пару уровней, различающихся по энергии на $h\nu$. Из (6.78) для стационарного состояния имеем

$$W_{12}N_1 = W_{21}N_2.$$

Это равенство с помощью (6.81) — (6.83) можно свести к виду

$$\langle n(\nu) \rangle N_1 = (\langle n(\nu) \rangle + 1) N_2. \quad (6.85)$$

Поскольку система в целом находится в состоянии теплового равновесия, населенности уровней подчиняются больцмановскому распределению, так что $N_2 = N_1 e^{-h\nu/kT}$. Подстановка этой формулы в (6.85) приводит к выражению для среднего значения числа фотонов в моде

$$\langle n(\nu) \rangle = \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1}. \quad (6.86)$$

Так как число мод в единице объема в частотном интервале $d\nu$ равно $(8\pi\nu^2\eta^3/c^3)d\nu$, а энергия, приходящаяся на каждую моду, равна $h\nu\langle n \rangle$, из выражения (6.83) получим формулу для энергии в единице объема в частотном интервале $d\nu$:

$$\rho(\nu) d\nu = \frac{8\pi h\nu^3\eta^3}{c^3} \frac{1}{e^{h\nu/kT} - 1} d\nu. \quad (6.87)$$

Это распределение характеризует излучение черного тела и известно как закон Планка.

8. Эйнштейновское рассмотрение вынужденных и спонтанных переходов

На основе метода квантования поля были выведены выражения (6.70) и (6.84) для коэффициентов A и B для спонтанного и вынужденного переходов. Еще до того, как было введено квантование поля, Эйнштейн высказал предположение [7, 8], что в стационарном состоянии выражение вида

$$\rho(\nu) B_{12}\mathcal{N}_1 = \rho(\nu) B_{21}\mathcal{N}_2 + A\mathcal{N}_2 \quad (6.88)$$

должно быть справедливо при рассмотрении переходов, имеющих место при действии широкополосного излучения, где все величины те же, что и в п. 6. Покажем теперь, что некоторые из полученных выше результатов непосредственно вытекают из (6.88). Чтобы найти связь между коэффициентами B_{12} и B_{21} , достаточно представить себе эксперимент, в котором величины \mathcal{N}_1 , \mathcal{N}_2 и $\rho(\nu)$ известны априори. Пример, который сразу же приходит в голову, — это излучение черного тела. Здесь населенности уровней подчиняются больцмановскому закону, а распределение излучения задается законом Планка.

Подставляя $\mathcal{N}_2 = \mathcal{N}_1 e^{-h\nu/kT}$ в (6.88) и разрешая относительно $\rho(\nu)$, получаем

$$\rho(\nu) = \frac{A/B_{21}}{(B_{12}/B_{21}) e^{h\nu/kT} - 1}.$$

Сравнение этого выражения с (6.87) приводит к следующим результатам:

$$\begin{aligned} B_{21} &= B_{12}, \\ \frac{A}{B_{12}} &= \frac{8\pi h\nu^3\eta^3}{c^3}. \end{aligned}$$

Эти выражения согласуются с результатами, полученными в п. 6 из уравнений, выведенных методом квантования поля.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Einstein A.*, Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt, *Ann d. Phys.*, **17**, 132 (1905). (См. перевод: *А. Эйнштейн*, Собрание научных трудов, т. 3, «Наука», 1966, стр. 92, «Об одной эвристической точке зрения, касающейся возникновения и превращения света».)
2. *Einstein A.*, Zur Theorie der Lichterzeugung und Lichtabsorption, *Ann. d. Phys.*, **20**, 199 (1906). (См. перевод: *А. Эйнштейн*, Собрание научных трудов, т. 3, «Наука», 1966, стр. 128, «К теории возникновения и поглощения света».)
3. *Kittel C.*, *Quantum Theory of Solids*, New York, 1963. (См. перевод: *Ч. Киттель*, Квантовая теория твердых тел, изд-во «Наука», 1967.)
4. *Mashkevich V. S.*, *Laser Kinetics*, New York, 1967, Ch. 2.
5. *Lengyel B. A.*, *Introduction to Laser Physics*, New York, 1966, p. 99.
6. *Bohm D.*, *Quantum Theory*, Englewood Cliffs, N. J., 1951, p. 18. (См. перевод: *Д. Бом*, Квантовая теория, Физматгиз, 1961.)
7. *Einstein A.*, Zur Quantentheorie der Strahlung, *Phys. Zs.*, **18**, 121 (1917). (См. перевод: *А. Эйнштейн*, Собрание научных трудов, «Наука», т. 3, 1966, стр. 393, «К квантовой теории излучения».)
8. *Einstein A.*, Strahlungs-Emission und Absorption nach der Quantentheorie, *Verh. d. Deutsch. Phys. Ges.*, **18**, 318 (1916). (См. перевод: *А. Эйнштейн*, Собрание научных трудов, изд-во «Наука», т. 3, 1966, стр. 386, «Испускание и поглощение излучения по квантовой теории».)
9. *Louisell W.*, *Radiation and Noise in Quantum Electronics*, New York, 1964, Ch. 4.
10. *Heitler W.*, *The Quantum Theory of Radiation*, 2nd ed., Oxford, Fair Lawn, N. J., 1944, Ch. 1, 2. (См. перевод: *В. Гайтлер*, Квантовая теория излучения, ИЛ, 1956.)

Задачи

6.1. Показать, что с помощью уравнений Гамильтона, соответствующих гамильтониану (6.5), можно получить уравнение Максвелла

$$\nabla \times \mathbf{H} = \varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}.$$

6.2. Определить $\langle \mathbf{E} \rangle$, $\langle \mathbf{H} \rangle$, $\langle \mathbf{E}^2 \rangle$, $\langle \mathbf{H}^2 \rangle$ и $\langle \mathcal{H} \rangle$ для одномодового поля резонатора в вакуумном состоянии $|0\rangle$. Используя полученные результаты, найти нулевые флуктуации полей \mathbf{E} и \mathbf{H} , определяемые выражениями вида

$$\langle \Delta \mathbf{E} \rangle^2 = \langle \mathbf{E}^2 \rangle - \langle \mathbf{E} \rangle^2.$$

6.3. Исходя из гамильтониана поля, в котором опущена нулевая энергия:

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} (p^2 + \omega^2 q^2) - \frac{\hbar \omega}{2},$$

ответить на следующие вопросы:

- а) каковы собственные значения энергии?
- б) каковы будут результаты задачи 6.2 в этом случае?
- в) что можно сказать о смысле нулевой энергии в \mathcal{H} ?

6.4. а) Для одномодовой квантованной плоской волны показать, что $\langle \mathbf{E} \rangle$ удовлетворяет волновому уравнению

$$\nabla \times (\nabla \times \langle \mathbf{E} \rangle) + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \langle \mathbf{E} \rangle}{\partial t^2} = 0.$$

б) Для квантованных плоских волн получить выражение для вектора Пойнтинга через величины a и a^\dagger .

в) Получить выражение для матричных элементов вектора Пойнтинга.

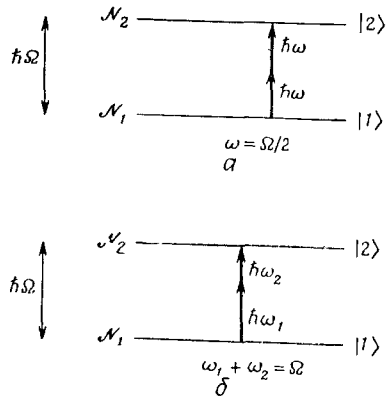
6.5. а) Для двухфотонного поглощения было найдено, что вероятность перехода пропорциональна интенсивности. Поэтому можно записать

$$\frac{dI}{dt} = CI^2.$$

Здесь C — коэффициент пропорциональности, I — интенсивность. Это выражение выведено полуклассическим методом для поглощения в переходе из состояния $|1\rangle$ в состояние $|2\rangle$, как показано на фиг. 6.5, а.

Используя правило $n \rightarrow n + 1$ для излучения и $n \rightarrow n$ для поглощения, составить кинетическое уравнение, применимое при подходе полного квантования как для двухфотонного поглощения, так и для двухфотонного излучения. \mathcal{N}_1 и \mathcal{N}_2 — населенности уровней.

б) Рассмотреть процессы двухфотонного поглощения и излучения, когда два фотона имеют различные энергии, как показано на фиг. 6.5, б. Написать кинетические уравнения для dn_1/dt , dn_2/dt в случае полного квантования. При каких условиях возможно получить усиление на частоте ω_1 без инверсии населенностей?



Фиг. 6.5. Двухфотонное поглощение и излучение.

а — энергии фотонов равны; б — энергии фотонов различны.

6.6. При комптоновском рассеянии энергия поглощается электронами, причем падающий фотон имеет энергию $\hbar\omega_1$, рассеянный фотон — энергию $\hbar\omega_2$. Для классических полей соответствующее выражение имеет вид

$$\frac{dI_2}{dt} = -C\mathcal{N}^0 I_1 I_2.$$

Здесь C — коэффициент пропорциональности, I_1 и I_2 — интенсивности на частотах ω_1 и ω_2 , а \mathcal{N} — число электронов в объеме взаимодействия. Составить уравнение для квантованных полей, описывающее обратный процесс (поглощение кванта энергии $\hbar\omega_2$).

6.7. а) Сколько мод может существовать в 1 см^3 кристалла рубина ($\eta = 1,76$) в пределах ширины линии ($\Delta\nu = 330 \text{ ГГц}$) лазерного перехода ($\lambda = 6043 \text{ \AA}$)?

б) Сколько мод TEM_{00n} существует в пределах ширины линии лазерного перехода, если рассматриваются только те моды, для которых вектор \mathbf{k} направлен вдоль одного направления кристалла (например, вдоль оси z ; при этом $k_x = k_y = 0$)? Эти моды могут быть возбуждены, если имеются только две отражающие поверхности и уровень накачки кристалла превышает порог генерации лазера.

б) Какова разность частот этих мод?

6.8. Показать, что коэффициент поглощения $\Gamma(\omega)$ для изотропной среды с лоренцевой линией поглощения можно выразить через время спонтанного излучения τ_{sp} следующим образом:

$$\Gamma = \frac{\pi^2 c^2}{\Omega^2 \eta^2 \tau_{sp}} (N_1 - N_2) g_L(\omega, \Omega).$$

Здесь N_1 и N_2 — число молекул в единице объема в нижнем и верхнем состояниях.

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

В этой главе рассмотрено взаимодействие электромагнитного излучения с колебаниями среды. Особое внимание уделяется колебаниям кристаллической решетки, хотя полученные результаты применимы и к непрерывным средам, как к предельному случаю.

В § 2, посвященном описанию колебаний кристаллической решетки, показано, что такие колебания можно разделить на два класса: акустические и оптические. Акустические колебания являются звуковыми волнами, распространяющимися в кристалле, в котором смежные атомы колеблются с малым относительным сдвигом по фазе. Оптические колебания представляют собой набор мод, в которых смежные атомы движутся навстречу друг другу. Акустические и оптические колебания отличаются друг от друга характеристиками распространения, параметрами взаимодействия со светом и резонансными частотами.

В § 3 колебания решетки квантуются. Этот метод подобен методу квантования электромагнитного излучения, приведенному в гл. 6. Результаты также аналогичны: колебания ведут себя как набор гармонических осцилляторов, а соответствующая интерпретация состоит в том, что свойства различных мод можно описать с помощью дискретных квантов, называемых фононами.

Так как основной интерес представляет взаимодействие электромагнитного излучения с колебаниями решетки, то в § 4 рассмотрена общая задача взаимодействия волн и переноса энергии. Показано, что применимы общие законы сохранения энергии и импульса.

В § 5—7 рассмотрены частные случаи взаимодействия электромагнитного излучения с фононами. В § 5 обсуждается непосредственное линейное поглощение оптическими модами. Нелинейные процессы рассеяния света, известные как эффекты Рамана и Бриллюэна, рассмотрены соответственно в § 6 и 7. Оба эти эффекта являются следствием модуляции диэлектрической проницаемости колебаниями, имеющими место в среде. В результате таких флуктуаций падающая световая волна

рассеивается в среде с появлением частотного смещения, соответствующего частоте той моды, на которой происходит рассеяние. Эффект Рамана связан с рассеянием на оптических колебаниях, и смещения частоты имеют величину порядка сотен ангстрем. Рассеяние Бриллюэна подобно рамановскому рассеянию, но имеет место не на оптических, а на акустических колебаниях, и поэтому смещения частоты меньше и составляют несколько гигагерц. При использовании лазера в качестве источника падающего света оба эффекта наблюдались при превышении определенного порога как вынужденные эффекты. В результате рассеянные световые пучки имели интенсивность и направленность, сравнимую с интенсивностью и направленностью возбуждающего лазерного излучения. Такие нелинейные эффекты, следовательно, являются эффективными методами генерации новых частот и исследования свойств материалов.

В § 8 описывается явление самофокусировки и самоканализации световых лучей. Это явление представляет интерес ввиду его заметного влияния на пороговые свойства таких нелинейных процессов, как вынужденное рамановское и бриллюэновское рассеяния.

§ 2. КОЛЕБАНИЯ КРИСТАЛЛИЧЕСКОЙ РЕШЕТКИ

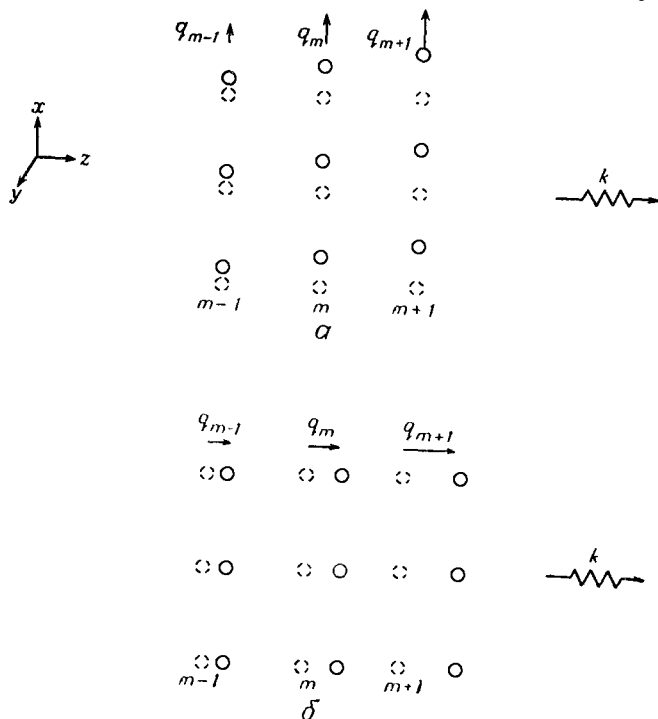
Для рассмотрения взаимодействия излучения с колебаниями кристалла необходимо исследовать свойства самих колебаний. При анализе будем для простоты идеализировать модель кристалла, предполагая, что силы, действующие на данные атомы, определяются только близлежащими атомами и являются центральными, т. е. направлены по линиям, соединяющим атомы. В реальном кристалле, если имеется ковалентная связь, силы не обязательно являются центральными, и необходимо учитывать взаимодействия не только близлежащих атомов [1, 2]. Тем не менее анализ идеализированной модели дает возможность просто получить результаты, которые описывают поведение реальных кристаллов.

1. Колебания одноатомной кристаллической решетки

Начнем обсуждение колебаний кристалла с рассмотрения одноатомной кристаллической решетки, в которой все атомы идентичны и элементарная ячейка¹⁾ содержит только один атом. Примером является гранцентрированная кубическая структура алюминия. Кроме того, ограничимся рассмотрением

¹⁾ Элементарная ячейка — это единичная ячейка минимального объема, по которой можно восстановить полную кристаллическую решетку с помощью ряда соответствующих трансляций.

волн, распространяющихся в таких направлениях, для которых они являются чисто поперечными или чисто продольными. В кубическом кристалле такими направлениями являются $[100]$, $[111]$ и $[110]$ ¹⁾. При распространении в этих направлениях целые плоскости атомов движутся в фазе. С другой стороны, при



Фиг. 7.1. Распространение поперечной (а) и продольной (б) акустических волн.

Пунктирные кружки показывают равновесные положения атомов, сплошные кружки — положения при колебаниях.

распространении в произвольном направлении волны не являются ни чисто продольными, ни чисто поперечными, а имеют скорее смешанный характер, причем движение атомов является более сложным.

Рассмотрим сначала распространение в направлении z такой волны, которая приводит к смещению последовательных плоскостей атомов в направлении x , как показано на фиг. 7.1, а. Эта волна является чисто поперечной, так как смещение

¹⁾ Индексы направления в кристалле $[hkl]$ являются наименьшими целыми числами, которые имеют такие же отношения, как компоненты вектора в данном направлении, отнесенные к векторам кристаллографических осей.

атомов перпендикулярно направлению волнового вектора, обозначаемого через \mathbf{k} .

Когда одна плоскость атомов смещается по отношению к другой, возникают возвращающие силы, обусловленные разностью их смещений. Первый член в разложении Тейлора для силы, действующей на атом в данной плоскости со стороны атомов, расположенных в других плоскостях, линейно зависит от относительных смещений. Это эквивалентно предположению о выполнении закона Гука, который справедлив при малых смещениях. При взаимодействиях соседних плоскостей имеем

$$M \frac{d^2 q_m}{dt^2} = C_T (q_{m+1} - q_m) - C_T (q_m - q_{m-1}) = C_T (q_{m+1} - 2q_m + q_{m-1}), \quad (7.1)$$

где M — масса атома; C_T — постоянная жесткости для поперечной волны; индекс m является целым числом и обозначает данную плоскость атомов, а q_m — смещение атома, соответствующего плоскости m , из положения равновесия.

Ищем решение уравнения (7.1) в виде бегущей волны

$$q_m = \frac{1}{2} \tilde{q} e^{i(\omega_k t - k m a)} + \text{компл. сопр.}, \quad (7.2)$$

где \tilde{q} — комплексная амплитуда, a — расстояние между плоскостями, k — величина волнового вектора и ω_k — частота колебаний для данного значения k . Подстановка (7.2) в (7.1) приводит к дисперсионному соотношению, связывающему ω_k и k :

$$\omega_k = 2 \left(\frac{C_T}{M} \right)^{1/2} \left| \sin \frac{k a}{2} \right|, \quad (7.3)$$

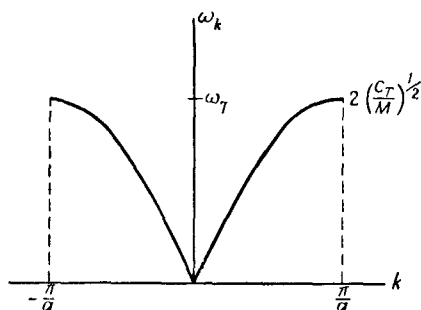
график которого приведен на фиг. 7.2 для $-\pi/a \leq k \leq \pi/a$. Положительные значения k соответствуют поперечным волнам, распространяющимся в направлении $+z$, а отрицательные значения k — волнам, распространяющимся в направлении $-z$. Кроме того, заметим, что, хотя в дисперсионном соотношении (7.3) ничто не ограничивает область значений k в пределах $\pm\pi/a$, значения вне этой области просто воспроизводят решения, которые соответствуют точно таким же движениям частицы, что и решения при значениях k внутри области. Это легко проверить с помощью подстановки $k = k_0 + 2p\pi/a$, где k_0 лежит внутри области $\pm\pi/a$, а p — любое положительное или отрицательное целое число. В этом случае найдем, что решения для различных значений p в точности эквивалентны решению для $k = k_0$. Ограниченная область значений k , заключенная в пределах $\pm\pi/a$, называется первой зоной Бриллюэна.

На границе зоны $k = \pi/a$ частота имеет максимальное значение $\omega_T = 2 \sqrt{C_T/M}$, которое является критической частотой

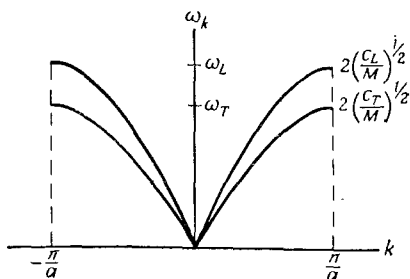
для поперечных мод. Длина волны λ , определяемая соотношением $k = 2\pi/\lambda$, равна $2a$, и решение (7.2) преобразуется к виду

$$q_m = \frac{1}{2} \tilde{q} e^{i(\omega_R t - m\pi)} + \text{компл. сопр.} = |\tilde{q}| \cos(\omega_R t - m\pi + \varphi),$$

где $\tilde{q} = |\tilde{q}| e^{i\varphi}$. Следовательно, для значения k на границе зоны соседние плоскости колеблются со сдвигом фаз, равным 180° . Движение частиц в этом случае соответствует не распространяющемуся вдоль кристалла волновому движению, а скорее стоячей волне, которая иногда называется π -модой.



Фиг. 7.2. Дисперсионная характеристика для поперечных мод одноатомного кристалла.



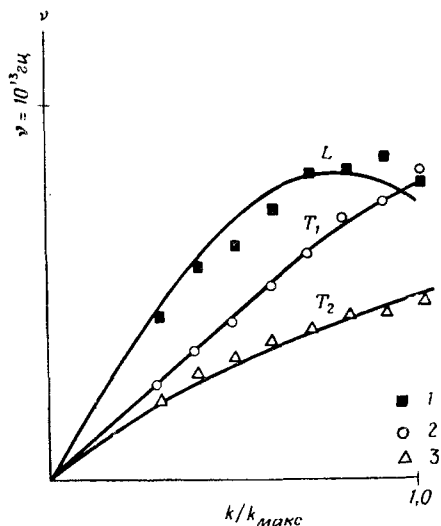
Фиг. 7.3. Дисперсионные характеристики для поперечных и продольных мод одноатомного кристалла.

Таким образом, для поперечных волн, распространяющихся в решетке, величина k имеет значения, лежащие в пределах $\pm\pi/a$. Когда значение k изменяется от нуля до π/a , частота увеличивается до критического значения, а длина волны уменьшается до значения, при котором половина длины волны соответствует расстоянию между плоскостями решетки, при этом бегущая волна превращается в стоячую на границе зоны.

Прежде чем закончить рассмотрение поперечных волн, заметим, что возможна также поперечная волна, в которой смещение происходит в направлении y , а не x , как показано на фиг. 7.1, а. Это приводит ко второй дисперсионной кривой, которая может быть как вырожденной, так и невырожденной по отношению к первой в зависимости от относительных значений c_T для этих двух случаев.

Рассмотрим теперь распространение такой волны в направлении z , когда последовательные плоскости атомов смещаются в направлении оси z , как показано на фиг. 7.1, б. Такая волна является чисто продольной. Уравнение движения и его решение имеют ту же форму, что и (7.1) — (7.3), только постоянная

жесткости для поперечного случая C_T заменена на постоянную жесткости для продольного случая C_L . В результате дисперсионная кривая для продольного случая отличается от кривой для поперечного случая, как показано на фиг. 7.3. Отсутствие вырождения между продольными и поперечными модами имеет место даже для среды, упругость которой полностью изотропна [3].



Фиг. 7.4. Дисперсионные кривые для упругих волн, распространяющихся в алюминии вдоль оси [110].

1 — измеренные значения для поперечной волны; 2 — значения для продольной волны T_1 , поляризация которой параллельна оси [100]; 3 — значения для поперечной волны T_2 , поляризация которой параллельна оси [110]. Кривые представляют собой соответствующие решения, в которых учитываются нецентральные силы и взаимодействия, вплоть до третьих соседей [4].

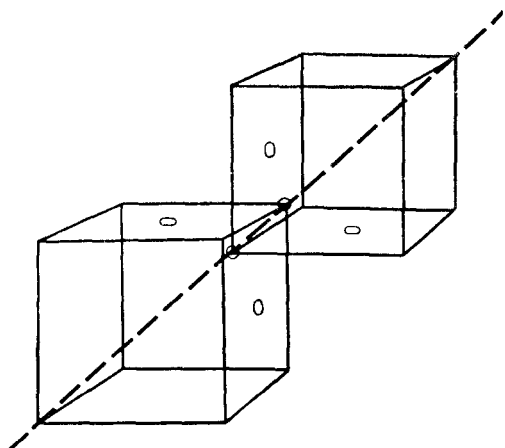
Дисперсионные кривые для упругих волн, распространяющихся вдоль оси [110] в кристалле алюминия, найденные с помощью неупругого рассеяния рентгеновских лучей, показаны на фиг. 7.4. Эти кривые качественно согласуются с проведенным выше рассмотрением. Чтобы получить количественное соответствие, необходимо учесть нецентральные силы, а также взаимодействие не только соседних атомов [4].

До сих пор рассматривались волны, которые распространяются вдоль определенных выбранных осей. Если рассмотреть распространение в произвольном направлении, то обнаружится, что дисперсионная кривая все еще имеет три ветви, но соответствующие типы колебаний в общем случае не являются чисто продольными или чисто поперечными.

2. Колебания двухатомной кристаллической решетки

В этом разделе рассмотрим типы колебаний двухатомной кристаллической структуры, т. е. структуры, которая содержит два атома в элементарной ячейке, как, например, NaCl или ал-

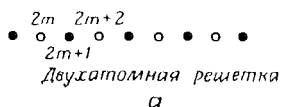
маз. Заметим, что двухатомный кристалл не обязательно содержит атомы двух различных сортов. Он может состоять полностью из одного элемента, как, например, алмаз, который со-



Фиг. 7.5. Структура решетки алмаза.

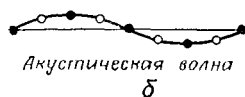
Решетка алмаза состоит из двух взаимопроникающих гранецентрированных кубических решеток, одна из которых смещена вдоль пространственной диагонали другой на одну четверть ее длины.

держит только атомы углерода. Алмаз имеет двухатомную структуру, так как его кристаллическая решетка состоит из двух гранецентрированных кубических подрешеток, одна из



Фиг. 7.6. Движение при распространении поперечной волны в двухатомном кристалле.

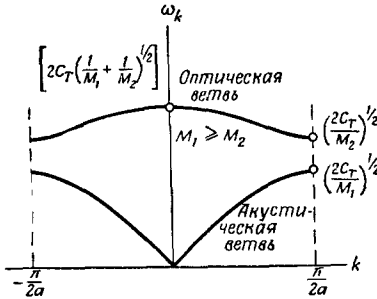
Для акустической волны обе подрешетки колеблются вместе; для оптической волны они колеблются навстречу друг другу.



$$\begin{matrix} \bullet & \circ \\ M_1 & M_2 \\ M_1 \geq M_2 \end{matrix}$$

которых смещена вдоль диагонали другой на четверть ее длины, как показано на фиг. 7.5. Такую структуру нельзя воспроизвести с помощью трансляций элементарной ячейки, содержащей один атом, а требуется ячейка, содержащая два атома.

Анализ двухатомной решетки проводится аналогично анализу одноатомной решетки. Снова ограничимся рассмотрением волн, которые распространяются в таких направлениях, что они являются чисто поперечными или чисто продольными. Например, чисто поперечная или чисто продольная волна в структуре типа NaCl распространяется в направлении [111].



Фиг. 7.7. Дисперсионные характеристики для поперечных оптических и акустических мод двухатомного кристалла.

Пусть атомы с массой M_1 лежат на плоскостях, имеющих нечетные номера, а атомы с массой M_2 — на плоскостях с четными номерами, как показано на фиг. 7.6. Предположим, что $M_1 \gg M_2$. Если силовая постоянная между всеми парами соседних плоскостей одинакова и рассматривается взаимодействие близлежащих плоскостей, то для поперечной волны, распространяющейся в двухатомной структуре, имеем

$$M_1 \frac{d^2 q_{2m+1}}{dt^2} = C_T (q_{2m+2} - 2q_{2m+1} + q_{2m}), \quad (7.4)$$

$$M_2 \frac{d^2 q_{2m}}{dt^2} = C_T (q_{2m+1} - 2q_{2m} + q_{2m-1}),$$

где m обозначает номер данной плоскости атомов.

Ищем решение (7.4) отдельно для плоскостей с четными и нечетными номерами в виде бегущих волн:

$$q_{2m+1} = \frac{1}{2} \tilde{q}_1 e^{i[\omega_k t - k(2m+1)a]} + \text{компл. сопр.}, \quad (7.5)$$

$$q_{2m} = \frac{1}{2} \tilde{q}_2 e^{i[\omega_k t - k2ma]} + \text{компл. сопр.}$$

Подстановка (7.5) в уравнение (7.4) дает

$$\begin{pmatrix} 2C_T - \omega_k^2 M_1 & -2C_T \cos ka \\ -2C_T \cos ka & 2C_T - \omega_k^2 M_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{q}_1 \\ \tilde{q}_2 \end{pmatrix} = 0. \quad (7.6)$$

Написанные выше уравнения имеют нетривиальное решение только в том случае, если определитель из коэффициентов при \tilde{q}_1 и \tilde{q}_2 равен нулю. В результате

$$\omega_k = \left\{ C_T \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right) \pm C_T \left[\left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right)^2 - \frac{4 \sin^2 ka}{M_1 M_2} \right]^{1/2} \right\}^{1/2}. \quad (7.7)$$

График полученной зависимости изображен на фиг. 7.7 для $-\pi/2a < k < \pi/2a$. Из графика видно, что в случае двухатом-

ного кристалла в добавление к акустической ветви имеется вторая ветвь, частота которой отлична от нуля при $k = 0$. Природу колебаний, которые соответствуют этой ветви, легко понять из вида решения вблизи $k = 0$. В таком случае выражение (7.7) имеет вид

$$\omega_k = \left[2C_T \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right) \right]^{1/2}. \quad (7.8)$$

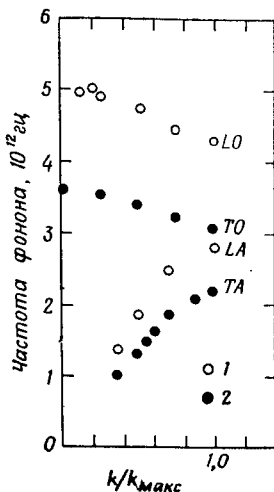
Подстановка полученного выражения в уравнение (7.6) приводит к следующему соотношению для амплитуд колебаний различных плоскостей:

$$\frac{\bar{q}_1}{\bar{q}_2} = - \frac{M_2}{M_1}. \quad (7.9)$$

Таким образом, разные плоскости колеблются навстречу друг другу, причем центр масс остается неподвижным, как показано

Фиг. 7.8. Оптическая и акустическая ветви дисперсионной характеристики для волн, распространяющихся в направлении [111] в бромистом калии (KBr), определенные с помощью неупругого рассеяния нейтронов.

1 — продольные моды; 2 — поперечные моды. Поперечные ветви дважды вырождены. Обозначения LO, TA и т. д. соответствуют продольной оптической, поперечной акустической и т. д. ветвям.



на фиг. 7.6, в. Если два атома несут противоположные заряды, то этот тип движения можно возбудить с помощью электромагнитной волны, так как поле волны вызывает движение такого типа. Этого не будет происходить в случае акустического колебания, при котором оба заряда атомов колеблются вместе, а не навстречу друг другу. Для типичных параметров кристалла частота колебаний, при которых смежные плоскости движутся навстречу друг другу, лежит в инфракрасной области оптического спектра и потому эта ветвь дисперсионной кривой называется оптической ветвью. Оптическое и акустическое волновые движения показаны на фиг. 7.6.

Подобный анализ можно повторить для продольных волн. В этом случае получается ряд дисперсионных кривых, которые различаются только величиной постоянной жесткости C . Таким образом, для двухатомного кристалла существуют шесть ветвей дисперсионной кривой: две поперечные и одна продольная акустические и две поперечные и одна продольная оптические. Дисперсионные кривые для упругих волн, распространяющихся в направлении $[111]$ в кристалле KBr , который имеет такую же двухатомную структуру, что и $NaCl$, показаны на фиг. 7.8.

Метод, использованный для одноатомных и двухатомных решеток, можно обобщить и применить для элементарной ячейки, состоящей из p атомов. В результате найдем, что существуют $3p$ ветвей фоновой дисперсионной характеристики: 3 акустические и $3p - 3$ оптические.

§ 3. КВАНТОВАНИЕ КОЛЕБАНИЙ РЕШЕТКИ

В § 2 было установлено, что колебания кристаллической решетки можно описать с помощью бегущих волн, которые подразделяются на акустические и оптические моды. По аналогии со случаем распространения электромагнитной волны перейдем от классического описания к квантовому с помощью квантования этих мод. Как и в случае электромагнитной волны, при квантовании найдем, что моды ведут себя как набор гармонических осцилляторов. Ввиду существования ряда дискретных равномерно отстоящих друг от друга энергетических уровней возбуждение данного гармонического осциллятора на n -е энергетическое собственное состояние можно описать, если сказать, что в этом типе колебаний имеется n квантов, каждый с энергией $\hbar\omega$, где ω — круговая частота рассматриваемого гармонического осциллятора. Кванты акустических и оптических мод называются фононами. Рассмотрим сначала квантование продольных акустических колебаний одноатомного кристалла, которым посвящен § 2, п. 1. Затем последует квантование поперечных оптических колебаний двухатомного кристалла, рассмотренных в § 2, п. 2. Анализ, проведенный в этих разделах, аналогичен анализу для электромагнитного случая, данному в гл. 6.

1. Периодические граничные условия и нормальные моды

В § 2, п. 1, было показано, что смещение q_m атома, находящегося в плоскости m при колебаниях одноатомного кристалла, можно записать в виде бегущей волны, которая в одномерном случае имеет вид

$$q_m = \frac{1}{2} \tilde{q} e^{i(\omega_k t - kma)} + \text{компл. сопр.} \quad (7.10)$$

Первый шаг, который необходимо сделать при квантовании, требует классификации возможных решений в виде системы нормальных мод, удовлетворяющих условиям ортогональности. Это достигается введением соответствующих граничных условий. Как и для случая электромагнитного излучения в резонаторе, имеется выбор в отношении формы решения для нормальных мод. Из решений вида (7.10) можно образовать стоячие волны, которые удовлетворяют граничным условиям, например, на границах кристалла. Можно также непосредственно использовать решения в виде бегущих волн. В этом случае необходимое условие нормируемости таких функций вводится за счет периодических граничных условий. Для системы, которая включает большое число узлов решетки, результаты, полученные любым из этих методов, существенно не различаются. В дальнейшем мы будем использовать метод бегущей волны с периодическими граничными условиями.

Для применения периодических граничных условий потребуем, чтобы смещение атома в плоскости с номером $m + \mathcal{N}$ было идентично смещению в плоскости m , т. е. потребуем, чтобы

$$q_{m+\mathcal{N}} = q_m. \quad (7.11)$$

Таким образом, имеется \mathcal{N} независимых смещений для \mathcal{N} плоскостей. Предположим, что \mathcal{N} является очень большим числом, соответствующим, например, числу плоскостей кристалла макроскопических размеров.

Для иллюстрации на фиг. 7.9 показаны периодические граничные условия для случая $\mathcal{N} = 8$. Как показано на фиг. 7.9, б, для введения периодических граничных условий кристалл можно представить себе изогнутым в виде кольца. Эта аналогия вновь будет принята во внимание при рассмотрении формы гамльтониана.

Применение периодического граничного условия (7.11) для решения в виде бегущей волны (7.10) приводит к требованию

$$e^{-ik(m+\mathcal{N})a} = e^{-ikma}$$

или

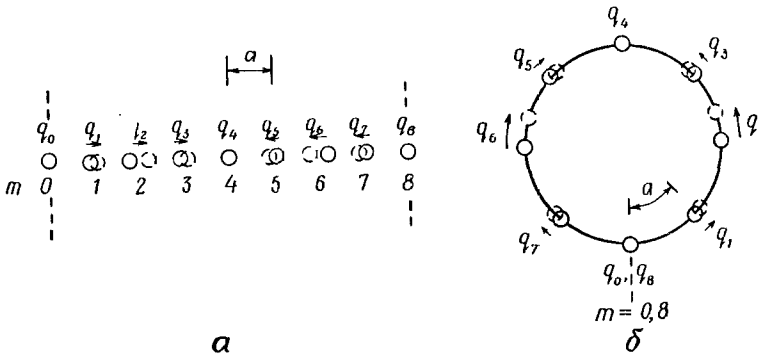
$$e^{-ik\mathcal{N}a} = 1,$$

которое удовлетворяется, если

$$k = \frac{2\pi l}{\mathcal{N}a}, \quad (7.12)$$

где l — любое положительное или отрицательное целое число или нуль. Однако напомним, что при рассмотрении акустических волн в одноатомном кристалле все возможные движения

частиц можно описать, если ограничиться значениями k в пределах $\pm\pi/a$. Следовательно, в (7.12) можно ограничить значения l пределами $\pm\mathcal{N}/2$, где для удобства предполагается, что \mathcal{N} — четное число. Так как движение при $k = -\pi/a$ анало-



Фиг. 7.9. Применение периодических граничных условий для случая продольной акустической моды.

Чтобы применить периодические граничные условия, положим $q_{m+\mathcal{N}} = q_m$. Для показанного случая $\mathcal{N} = 8$.

a — ряд линейных смещений, которые удовлетворяют периодическим граничным условиям; b — эквивалентное представление, при котором полагается, что атомы вынуждены двигаться по кругу таким образом, что периодические граничные условия удовлетворяются автоматически.

гично движению при $k = \pi/a$, то независимые моды описываются значениями k и l , которые определяются из условий

$$k = \frac{2\pi l}{\mathcal{N}a},$$

$$-\frac{\mathcal{N}}{2} + 1 \leq l \leq \frac{\mathcal{N}}{2} \quad l = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \quad (7.13)$$

$$-\frac{\pi}{a} < k \leq \frac{\pi}{a}.$$

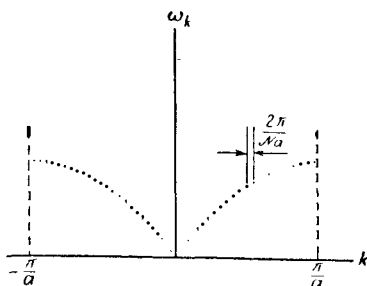
Ограничение разрешенных значений k конечной областью является одним из отличий квантования акустических волн от квантования электромагнитного поля. В последнем случае разрешенные значения k лежат в пределах $\pm\infty$. Это отличие обусловлено невозможностью провести различие между короткими волнами (т. е. волнами, половина длины волны которых меньше, чем расстояние между плоскостями) и длинными волнами (т. е. волнами, половина длины волны которых больше, чем расстояние между плоскостями), когда речь идет о смещении атомов. Следовательно, при рассмотрении колебаний кристаллической решетки волны с более короткой длиной волны не принимаются во внимание.

Из проведенного выше рассмотрения можно заключить, что существует \mathcal{N} независимых типов колебаний, для которых значения k равномерно распределены в k -пространстве, как показано на фиг. 7.10. Видно, что число независимых мод, как и следовало ожидать, равно числу независимых переменных, а именно числу смещений \mathcal{N} плоскостей. Следовательно, дисперсионная кривая является квазинепрерывной, приближаясь к непрерывной при увеличении \mathcal{N} .

Теперь докажем ортогональность колебаний, которые соответствуют приведенным выше дискретным значениям k , т. е.

Фиг. 7.10. Квазинепрерывная дисперсионная характеристика для продольной акустической ветви.

Каждое из разрешенных дискретных значений k ($k = 2\pi l/\mathcal{N}a$, где l — целое число) соответствует одной из множества ортогональных бегущих мод, которые получаются при применении периодических граничных условий. Распределение значений k стремится к непрерывному, когда \mathcal{N} (число плоскостей, для которых применяются периодические граничные условия) стремится к бесконечности.



докажем, что если два решения в виде бегущих волн (7.10) с определенными значениями k перемножить и просуммировать по всем плоскостям решетки от $m = 1$ до $m = \mathcal{N}$, то сумма равна нулю, если значения k не одинаковы.

Для получения требуемого условия ортогональности покажем, что

$$\sum_{m=1}^{\mathcal{N}} e^{i(k-k')ma} = \mathcal{N} \delta_{kk'}. \quad (7.14)$$

Для $k = k'$ это видно сразу. Для $k \neq k'$ из (7.12) имеем

$$\sum_{m=1}^{\mathcal{N}} e^{i(k-k')ma} = \sum_{m=1}^{\mathcal{N}} \exp\left(i \frac{2\pi(l-l')m}{\mathcal{N}}\right).$$

Пусть $l - l' = p$ есть целое число, меньшее \mathcal{N} . Тогда

$$\sum_{m=1}^{\mathcal{N}} e^{i(k-k')ma} = \sum_{m=1}^{\mathcal{N}} \exp\left(i \frac{2\pi p m}{\mathcal{N}}\right) = \sum_{m=0}^{\mathcal{N}-1} \exp\left(i \frac{2\pi p m}{\mathcal{N}}\right).$$

Определяя сумму, члены которой образуют геометрическую прогрессию, получаем

$$\sum_{m=1}^{\mathcal{N}} e^{i(k-k')ma} = \frac{e^{i2\pi p} - 1}{e^{i2\pi p/\mathcal{N}} - 1}.$$

Это выражение равно нулю при $p \neq 0$ ($k \neq k'$).

Это доказывает, что если значения k ограничены значениями, которые требуются для выполнения периодических граничных условий, то решения в виде бегущих волн (7.10) образуют систему ортогональных базисных функций. Разложим произвольные смещения по этим функциям. Следовательно, пусть

$$q_m = \sum_k \left(\frac{\hbar}{2\mathcal{N}M\omega_k} \right)^{1/2} [a_k(0)^* e^{i(\omega_k t - kma)} + \text{компл. сопр.}].$$

Это выражение можно переписать в виде

$$q_m = \sum_k \left(\frac{\hbar}{2\mathcal{N}M\omega_k} \right)^{1/2} [a_k e^{ikma} + a_k^+ e^{-ikma}]. \quad (7.15a)$$

Для рассмотренного здесь классического случая a_k и a_k^+ являются просто зависящими от времени коэффициентами разложения и определяются формулами

$$a_k = a_k(0) e^{-i\omega_k t}, \quad a_k^+ = a_k(0)^* e^{i\omega_k t}. \quad (7.15b)$$

Множитель в степени $1/2$ перед квадратной скобкой является здесь произвольным нормировочным множителем, выраженным через массу M атомов, образующих одноатомный кристалл, и число плоскостей \mathcal{N} , в пределах которых применяются периодические граничные условия. В дальнейшем будет показано, что записанное в этом виде уравнение (7.15a) для q_m справедливо также для квантового случая, если a^+ и a интерпретировать как операторы рождения и уничтожения для акустической волны.

2. Квантование акустических мод одноатомного кристалла

Первый шаг в процедуре квантования состоит в том, что мы перепишем гамильтониан как функцию координат q_m и импульсов p_m . Для последовательности колеблющихся атомов, конфигурация которой показана на фиг. 7.9, в случае продольных колебаний запишем

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_{m=1}^{\mathcal{N}} \left[\frac{p_m^2}{M} + C_L (q_{m+1} - q_m)^2 \right], \quad (7.16)$$

где вследствие периодических граничных условий для члена с $m = \mathcal{N}$ принято $q_{\mathcal{N}+1} \equiv q_1$. Первый член в скобках соответствует кинетической энергии колеблющихся атомов, а второй — потенциальной энергии, связанной с упругими силами, действующими между плоскостями и подчиняющимися закону Гу-

ка. Легко доказать, что при таком выборе гамильтониана уравнения Гамильтона

$$\begin{aligned} \dot{q}_i &= \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial p_i} = \frac{p_i}{M}, \\ \dot{p}_i &= -\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial q_i} = C_L(q_{i+1} - q_i) - C_L(q_i - q_{i-1}) \end{aligned} \quad (7.17)$$

приводят к соответствующему уравнению движения (7.1).

Перепишем далее гамильтониан \mathcal{H} так, чтобы он имел такой же вид, что и гамильтониан гармонических осцилляторов единичной массы, после чего полученные в гл. 6 результаты по квантованию электромагнитного поля можно непосредственно применить для квантования колебаний решетки.

Выразим координаты q_m и импульсы p_m в виде разложения по нормальным бегущим волнам (7.15а):

$$\begin{aligned} q_m &= \sum_k \left(\frac{\hbar}{2\mathcal{N}M\omega_k} \right)^{1/2} [a_k e^{ikma} + a_k^\dagger e^{-ikma}], \\ p_m &= M\dot{q}_m = i \sum_k \left(\frac{\hbar M\omega_k}{2\mathcal{N}^2} \right)^{1/2} [a_k e^{ikma} - a_k^\dagger e^{-ikma}], \end{aligned} \quad (7.18)$$

где использованы следующие соотношения, полученные с помощью (7.15б):

$$\dot{a}_k = -i\omega_k a_k, \quad \dot{a}_k^\dagger = i\omega_k a_k^\dagger.$$

Из (7.18) найдем, что

$$\begin{aligned} \sum_{m=1}^{\mathcal{N}} p_m^2 &= \sum_{m=1}^{\mathcal{N}} \left\{ (-i) \sum_k \left(\frac{\hbar M\omega_k}{2\mathcal{N}^2} \right)^{1/2} [a_k e^{ikma} - a_k^\dagger e^{-ikma}] \times \right. \\ &\quad \left. \times (-i) \sum_{k'} \left(\frac{\hbar M\omega_{k'}}{2\mathcal{N}^2} \right)^{1/2} [a_{k'} e^{ik'ma} - a_{k'}^\dagger e^{-ik'ma}] \right\}. \end{aligned}$$

Используя (7.14), это выражение можно записать в виде

$$\sum_{m=1}^{\mathcal{N}} p_m^2 = - \sum_k \frac{\hbar M\omega_k}{2} [a_k a_{-k} - a_k a_k^\dagger - a_k^\dagger a_k + a_k^\dagger a_{-k}^\dagger]. \quad (7.19)$$

При выводе уравнения (7.19) мы обращали внимание на сохранение порядка коэффициентов a^\dagger и a , хотя для классического случая в этом нет необходимости. Однако желательно, чтобы вывод был применим также и в квантовом случае, когда a^\dagger и a являются некоммутирующими операторами.

С помощью методики, которая аналогична использованной при выводе (7.19), найдем, что

$$\sum_{m=1}^{s'} (q_{m+1} - q_m)^2 = \sum_k \frac{\hbar\omega_k}{2C_L} [a_k a_{-k} + a_k a_k^\dagger + a_k^\dagger a_k + a_k^\dagger a_{-k}^\dagger]. \quad (7.20)$$

При выводе (7.20) необходимо использовать дисперсионное уравнение (7.3), которое связывает ω_k и k .

Подставляя (7.19) и (7.20) в выражение (7.16), получаем

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_k \hbar\omega_k (a_k a_k^\dagger + a_k^\dagger a_k). \quad (7.21)$$

Если a_k и a_k^\dagger выразить через новые переменные Q_k и P_k с помощью соотношений

$$\begin{aligned} a_k &= \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega_k}} (\omega_k Q_k + iP_k), \\ a_k^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega_k}} (\omega_k Q_k - iP_k), \end{aligned} \quad (7.22)$$

то (7.21) приводится к гамильтониану гармонических осцилляторов

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \sum_k (P_k^2 + \omega_k^2 Q_k^2). \quad (7.23)$$

Если считать P_k импульсом, а Q_k координатой, то уравнения Гамильтона, основанные на такой форме гамильтониана, приводят к правильным уравнениям движения (7.17) (см. задачу 7.3).

Основываясь на гамильтониане вида (7.23), приступим к квантованию акустических колебаний, постулируя, что Q_k и P_k являются операторами, удовлетворяющими коммутационным соотношениям:

$$[Q_k, P_{k'}] = i\hbar\delta_{kk'}. \quad (7.24)$$

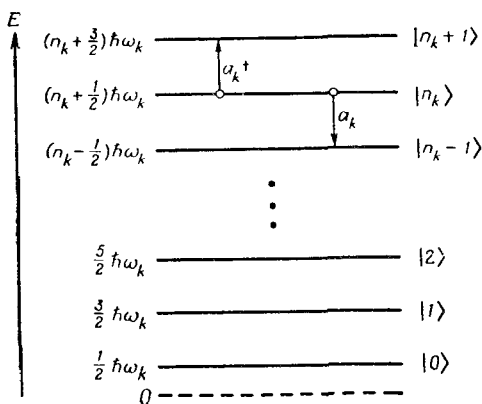
Такая же процедура была проведена в гл. 6 для бегущих электромагнитных волн. Переменные a_k^\dagger и a_k , связанные с Q_k , P_k соотношениями (7.22), интерпретируются в этом случае как операторы рождения и уничтожения и в соответствии с (7.22) и (7.24) удовлетворяют условию

$$[a_k, a_{k'}^\dagger] = \delta_{kk'}.$$

Если использовать коммутационное соотношение для a_k и a_k^\dagger , то гамильтониан (7.21) можно переписать в виде

$$\mathcal{H} = \sum_k \hbar \omega_k \left(a_k^\dagger a_k + \frac{1}{2} \right). \quad (7.25)$$

Легко показать, что операторы q_m и p_m , определяемые формулами (7.18), в квантовомеханическом случае являются эрмитовыми, как и должно быть, так как они соответствуют наблюдаемым.



Фиг. 7.11. Диаграмма энергетических уровней для продольной акустической бегущей моды при данном значении k .

При возбуждении k -й моды в n -е энергетическое состояние энергии, содержащаяся в этой моде, определяется выражением

$$E_{n_k} = \left(n_k + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_k,$$

которое соответствует сумме нулевой энергии $\hbar \omega_k / 2$ и энергии n_k фотонов. Операторы a_k^\dagger и a_k являются соответственно операторами рождения и уничтожения фононов в моде.

Для гамильтониана акустического поля вида (7.25) решение задачи на собственные значения следует из метода, рассмотренного в гл. 6, § 2 для электромагнитного поля.

Каждый член в гамильтониане (7.25), характеризуемый данным значением k , соответствует энергии k -й моды, которая представляется одной из точек на фиг. 7.10. Частота ω_k этой моды определяется из фиг. 7.10 как ордината. Каждой k -й моде соответствует диаграмма энергетических уровней, имеющая вид, показанный на фиг. 7.11. Эта диаграмма изображает решение уравнения на собственные значения

$$\mathcal{H} |n_k\rangle = E_{n_k} |n_k\rangle,$$

которое определяется выражением

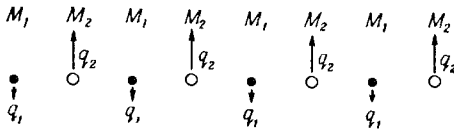
$$E_{nk} = \left(n_k + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_k,$$

где \mathcal{H} — один из членов суммы, стоящей в правой части выражения (7.25). Когда k -я мода возбуждена на n -е собственное состояние, говорят, что в этой моде имеется n_k фононов, каждый из которых обладает энергией $\hbar \omega_k$.

Таким образом, полная энергия продольных акустических колебаний одноатомного кристалла определяется формулой (7.25). Эта энергия состоит из суммы вкладов от отдельных мод, каждая из которых обозначается индексом k и соответствует некоторой точке на дисперсионной характеристике, изображенной на фиг. 7.10. Каждая из отдельных мод в свою очередь имеет собственную диаграмму энергетических уровней типа показанной на фиг. 7.11, которая определяет энергию, т. е. число фононов, в этой отдельной моде.

3. Квантование оптических мод двухатомного кристалла

Из § 2, п. 2 настоящей главы видно, что двухатомный кристалл наряду с акустическими модами обладает также оптическими модами, при которых смежные атомы колеблются на-



Фиг. 7.12. Длинноволновая поперечная оптическая мода в двухатомном кристалле.

Чередующиеся плоскости атомов движутся в фазе, тогда как обе подрешетки колеблются навстречу друг другу.

встречу друг другу. Для длинноволновых колебаний ($\lambda \gg a$) частота поперечных оптических волн определяется выражением (7.8):

$$\Omega = \left(\frac{2C_T}{M} \right)^{1/2}, \quad \frac{1}{M} = \frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}. \quad (7.26)$$

Соответствующие амплитуды смещений чередующихся плоскостей атомов даются формулой (7.9):

$$\frac{\tilde{q}_1}{\tilde{q}_2} = - \frac{M_2}{M_1}.$$

Фиг. 7.12 иллюстрирует длинноволновое поперечное оптическое колебание.

Для анализа эффектов взаимодействия света с оптическими модами достаточно рассмотреть длинноволновое приближение, так как длина волны инфракрасного излучения всегда значительно больше постоянной решетки. Например, инфракрасное поглощение или рамановское рассеяние можно рассчитать, пользуясь длинноволновым приближением. В этом приближении уравнения колебаний двух подрешеток принимают вид

$$M_2 \frac{d^2 q_2}{dt^2} = C_T (q_1 - q_2) - C_T (q_2 - q_1) = -2C_T (q_2 - q_1),$$

$$M_1 \frac{d^2 q_1}{dt^2} = C_T (q_2 - q_1) - C_T (q_1 - q_2) = 2C_T (q_2 - q_1).$$

Если разделить первое уравнение на M_2 , а второе на M_1 и вычесть второе из первого, то получим уравнение для разности переменных $Q = q_1 - q_2$:

$$M \frac{d^2 Q}{dt^2} + \Omega^2 M Q = 0, \quad (7.27)$$

где M и Ω определяются выражениями (7.26). Таким образом, видно, что в длинноволновом приближении оптическая колебательная мода эквивалентна гармоническому осциллятору с эффективной массой M и частотой Ω .

Так как процедура квантования гармонического осциллятора хорошо известна (см. гл. 6, § 2), то мы знаем, что с помощью преобразования

$$Q = \left(\frac{\hbar}{2M\Omega} \right)^{1/2} (a + a^\dagger), \quad P = M\dot{Q} = -i \left(\frac{M\hbar\Omega}{2} \right)^{1/2} (a - a^\dagger) \quad (7.28)$$

гамильтониан гармонического осциллятора

$$\mathcal{H} = \frac{P^2}{2M} + \frac{1}{2} \Omega^2 M Q^2 \quad (7.29)$$

приводится к виду

$$\mathcal{H} = \hbar\Omega \left(a^\dagger a + \frac{1}{2} \right). \quad (7.30)$$

Следовательно, анализ эффектов с участием длинноволновых оптических фононов можно проводить, используя операторы (7.28) и гамильтониан (7.30). Поэтому непосредственно применимы результаты квантовомеханического анализа, полученные в гл. 6, § 2.

§ 4. СОХРАНЕНИЕ ЭНЕРГИИ И ИМПУЛЬСА В ПРОЦЕССАХ С УЧАСТИЕМ ФОНОНОВ

1. Законы сохранения

При взаимодействии излучения с колебательными модами применимы определенные законы сохранения. С классической точки зрения законы сохранения принимают такой вид, что сумма частот $\sum_j \omega_j$ и сумма волновых векторов $\sum_j \mathbf{k}_j$ упругих и электромагнитных волн, получающих энергию, должна быть согласована с соответствующими суммами для волн, теряющих энергию. На квантовом языке условия согласования частот и волновых векторов соответствуют законам сохранения энергии и импульса. В этом разделе мы исследуем законы сохранения, исходя из самых общих соображений. Особый интерес представляют определенные методы геометрического построения, основанные на дисперсионной характеристике, которые полезны при использовании и интерпретации условий сохранения. Хотя рассмотрение выполнено на основе классического метода, оно имеет квантовомеханический аналог, что и оправдывает применение результатов к описанию квантовых процессов. Это обусловлено тем, что законы сохранения энергии и импульса выполняются одинаково хорошо для обоих случаев. Полученные результаты применимы независимо от того, являются ли колебания модами решетки или модами непрерывной среды.

Если электромагнитное поле обменивается энергией с колебаниями среды, то скорость поступления энергии в среду равна

$$\frac{\partial \mathcal{W}}{\partial t} = \int_{\Delta V} dV \mathbf{J} \cdot \mathbf{E} = \int_{\Delta V} dV \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}, \quad (7.31)$$

где ΔV — объем взаимодействия, а \mathbf{J} и \mathbf{P} — те части плотности тока и поляризации, которые обусловлены колебательным движением. При линейном поглощении поляризация непосредственно связана с колебаниями заряженных масс или подрешеток навстречу друг другу. При таких нелинейных процессах, как бриллюэновское и рамановское рассеяние, которые будут рассмотрены ниже, колебания приводят к модуляции диэлектрической проницаемости или поляризуемости среды и тем самым обуславливают появление членов нелинейной поляризации.

В соответствии с (7.31) энергия, которая поступает в среду за время Δt , равна

$$\mathcal{W} = \int_{\Delta t} dt \int_{\Delta V} dV \dot{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{E}. \quad (7.32)$$

Для значительного обмена энергией необходимо, чтобы подынтегральное выражение содержало члены, которые при интегри-

ровании по времени и пространству давали бы конечный вклад. Необходимость удовлетворить этому требованию и приводит к сохранению частоты и волнового вектора.

Чтобы вывести законы сохранения, предположим сначала, что поляризация \mathbf{P} , обусловленная наличием поля \mathbf{E} , является результатом колебаний среды. Далее рассмотрим поляризацию и поле в виде разложения по плоским волнам:

$$\mathbf{P} = \frac{1}{2} \sum_{\omega_P} \tilde{\mathbf{P}}(\omega_P) e^{i(\omega_P t - \mathbf{k}_P \cdot \mathbf{r})} + \text{компл. сопр.}, \quad (7.33)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2} \sum_{\omega_E} \tilde{\mathbf{E}}(\omega_E) e^{i(\omega_E t - \mathbf{k}_E \cdot \mathbf{r})} + \text{компл. сопр.} \quad (7.34)$$

Индекс E относится к электрическому полю, а индекс P — к поляризации.

Если разложения (7.33) и (7.34) подставить в (7.32), то получим

$$\begin{aligned} \mathcal{W}^p &= \frac{1}{4} \sum_{\omega_P, \omega_E} i\omega_P \tilde{\mathbf{P}}(\omega_P) \times \\ &\times \tilde{\mathbf{E}}^*(\omega_E) \int_{\Delta t} dt \int_{\Delta V} dV e^{i[(\omega_P - \omega_E)t - (\mathbf{k}_P - \mathbf{k}_E) \cdot \mathbf{r}]} + \text{компл. сопр.} = \\ &= \frac{1}{2} \sum_{\omega_P, \omega_E} \text{Re} \left\{ i\omega_P \tilde{\mathbf{P}}(\omega_P) \cdot \tilde{\mathbf{E}}^*(\omega_E) \int_{\Delta t} dt e^{i(\omega_P - \omega_E)t} \int_{\Delta V} dV e^{-i[(\mathbf{k}_P - \mathbf{k}_E) \cdot \mathbf{r}]} \right\}, \end{aligned}$$

где Re означает действительную часть. При интегрировании этого выражения по большому числу периодов и большому числу длин волн значительный вклад дадут только члены, которые содержат под знаком интеграла медленно меняющиеся экспоненциальные множители.

Например, при интегрировании по времени имеем

$$I = \int_{-\Delta t/2}^{\Delta t/2} dt e^{i(\omega_P - \omega_E)t} = \frac{2 \sin [(\omega_P - \omega_E) \Delta t/2]}{\omega_P - \omega_E}. \quad (7.35)$$

График этого выражения приведен на фиг. 7.13. Видно, что наибольший вклад имеет место при $\omega_P = \omega_E$, а чтобы интеграл превышал данное конечное значение, надо увеличить время интегрирования Δt . Тогда разница между ω_P и ω_E уменьшается, причем

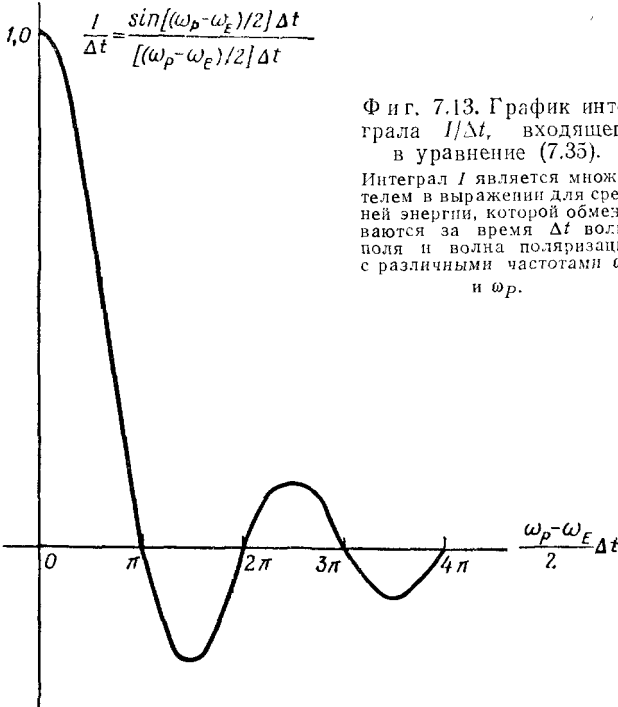
$$\lim_{\Delta t \rightarrow \infty} I = 2\pi \delta(\omega_P - \omega_E),$$

где $\delta(\omega_P - \omega_E)$ — дельта-функция Дирака.

Из сказанного выше можно сделать вывод, что для больших времен $[\Delta t \gg 2\pi/(\omega_P - \omega_E)]$ переданная энергия имеет значительную величину только тогда, когда

$$\omega_P = \omega_E. \quad (7.36)$$

Из интеграла по пространству можно заключить, что при $\Delta x \gg 2\pi/(k_P - k_E)_x$ и при таких же условиях для других координат



Фиг. 7.13. График интеграла $I/\Delta t$, входящего в уравнение (7.35).

Интеграл I является множителем в выражении для средней энергии, которой обмениваются за время Δt волна поля и волна поляризации с различными частотами ω_E и ω_P .

натных направлений заметный обмен энергией между **P** и **E** будет иметь место, если только

$$k_P = k_E. \quad (7.37)$$

Другими словами, обмен энергией происходит только в том случае, когда возникающая за счет колебаний поляризация имеет ту же частоту и волновой вектор, что и поле. С физической точки зрения условие (7.36) означает, что поляризация и поле остаются в фазе во времени, а условие (7.37) означает, что они остаются в фазе в пространстве. Поэтому поле, генерируемое в данный момент времени и в данной точке пространства, складывается в фазе с полем, генерируемым в дру-

гой момент времени и в другой точке пространства. Рассмотрим теперь некоторые частные применения полученных результатов. Из этих применений станет ясно, что выражения (7.36) и (7.37) определяют соответственно законы сохранения энергии и импульса.

2. Законы сохранения для бриллюэновского рассеяния

В качестве первого примера законов сохранения рассмотрим процесс бриллюэновского рассеяния, который будет подробно обсуждаться в § 7. Бриллюэновское рассеяние является нелинейным процессом, при котором падающий на среду свет рассеивается на акустических колебаниях, приобретая сдвиг по частоте, соответствующий акустической моде. Относительная величина частотного смещения мала и равна примерно 10^{-5} . При рассеянии видимого света типичное значение сдвигов составляет несколько гигагерц. При использовании в качестве источника возбуждения мощного лазера может иметь место *вынужденное* бриллюэновское рассеяние. В этом случае интенсивность и ширина спектра сдвинутой по частоте рассеянной световой волны сравнимы с интенсивностью и шириной спектра излучения лазера. Подробное описание вынужденного рассеяния представлено в § 7.

Эффект Бриллюэна возникает в результате модуляции оптического показателя преломления или поляризуемости среды звуковой волной. Так как поляризация пропорциональна произведению поляризуемости и электрического поля, то флуктуации среды приводят к появлению в поляризации членов, которые пульсируют на частотах, соответствующих сумме и разности частоты падающего света и частоты колебаний. Ограничимся рассмотрением разностного члена.

В соответствии с проведенным выше обсуждением описание свойств бриллюэновского рассеяния основывается на рассмотрении члена в поляризации, который пропорционален произведению колебательной координаты и электрического поля. Следовательно, имеем

$$P = bqE, \quad (7.38)$$

где b , q и E — соответственно коэффициент пропорциональности, колебательная координата и электрическое поле. Предположим, что поляризация, колебания и электрическое поле поляризованы в одном направлении. В этом случае векторную запись можно опустить.

Падающая световая волна

$$E_i = \frac{1}{2} \tilde{E}_i e^{i(\omega_i t - k_i \cdot r)} + \text{компл. сопр.},$$

взаимодействуя с упругой волной

$$q = \frac{1}{2} \tilde{q} e^{i(\omega_k t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} + \text{компл. сопр.},$$

дает член в поляризации, изменяющийся с разностной частотой:

$$P = \frac{1}{4} b \tilde{q}^* \tilde{E}_i e^{i[(\omega_i - \omega_k) t - (\mathbf{k}_i - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}]} + \text{компл. сопр.}$$

Чтобы указанная поляризация давала заметный вклад в энергию рассеянной волны E_s , определяемую выражением

$$E_s = \frac{1}{2} \tilde{E}_s e^{i(\omega_s t - \mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r})} + \text{компл. сопр.},$$

должны выполняться законы сохранения (7.36) и (7.37):

$$\omega_s = \omega_i - \omega_k,$$

$$\mathbf{k}_s = \mathbf{k}_i - \mathbf{k},$$

или

$$\hbar \omega_i = \hbar \omega_s + \hbar \omega_k, \quad (7.39)$$

$$\hbar \mathbf{k}_i = \hbar \mathbf{k}_s + \hbar \mathbf{k}. \quad (7.40)$$

Законы сохранения (7.39) и (7.40) соответствуют законам сохранения энергии и импульса. Связь ω с энергией и \mathbf{k} с импульсом определяется соотношениями де Бройля, которые связывают волновые и корпускулярные понятия, присущие дуализму природы. В соответствии с соотношениями де Бройля со свободной частицей, обладающей энергией E и импульсом p , связана волна с частотой ω и длиной волны λ , причем [6]

$$E = \hbar \omega, \quad (7.41)$$

$$p = \frac{h}{\lambda} = \frac{2\pi \hbar}{\lambda} = \hbar k. \quad (7.42)$$

Фиг. 7.14. Бриллюэновское рассеяние.

При уничтожении падающего фотона рождается фотон и рассеянный фотон.

Следовательно, эффект Бриллюэна можно описать как уничтожение падающего фотона, сопровождаемое рождением акустического фотона и рассеянного фотона, причем в этом процессе сохраняются энергия и импульс. Схематически это показано на фиг. 7.14.

Для колебаний решетки волновой вектор \mathbf{k} , который входит в условие (7.40), можно заменить величиной $\mathbf{k} + \mathbf{G}$. Здесь \mathbf{G} — любой вектор из \mathbf{k} -пространства, который связывает вектор \mathbf{k} из области $|\mathbf{k}| < \pi/a^1$ с теми значениями векторов \mathbf{k} из области

¹⁾ Точнее, из первой зоны Бриллюэна. — Прим. перев.

$|\mathbf{k}| > \pi/a$, которые соответствуют тем же самым движениям частиц; здесь a — постоянная решетки. [Вспомните обсуждение уравнения (7.3).] Например, в одномерном случае можно заменить k_x на $k_x + 2\pi n/a$, где n — целое число. Вектор \mathbf{G} называется вектором обратной решетки. Вектор \mathbf{G} можно добавлять во все законы сохранения волнового вектора, применимые для кристаллических решеток. Процессы, для которых $\mathbf{G} \neq 0$, называются процессами «переброса». Они важны, например, при определении теплового сопротивления решетки [7].

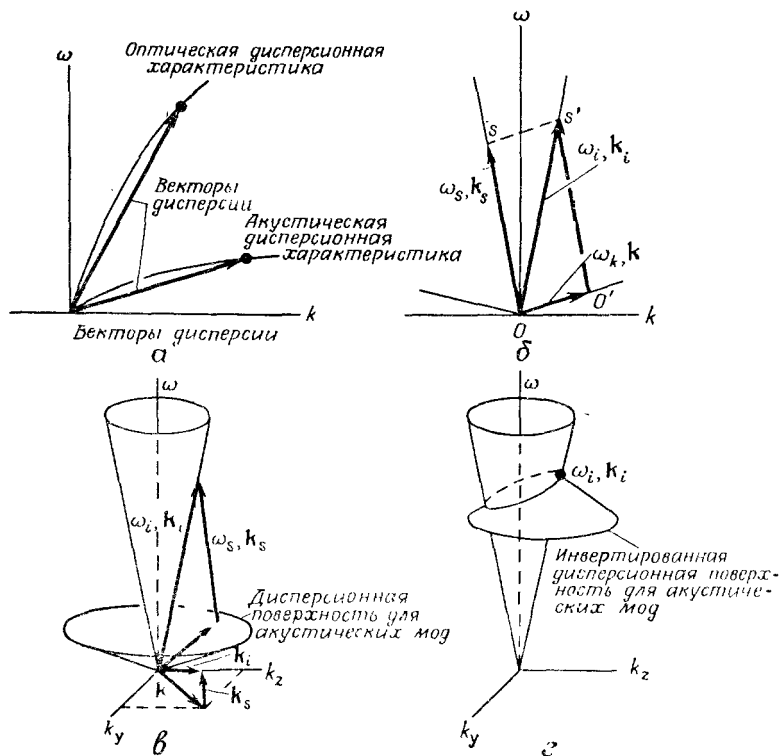
Дальнейшее утверждение связано с обозначением величины $\hbar\mathbf{k}$ как импульса. Можно показать, что фононы, за исключением тех, для которых $\mathbf{k} = 0$, в действительности не несут физического импульса, так как координаты фононов описывают *относительное* движение всех атомов. (См. задачу 7.2.) Однако вследствие законов сохранения волнового вектора величина $\hbar\mathbf{k}$ играет роль импульса и поэтому называется импульсом [7].

Так как ω и \mathbf{k} являются соответственно ординатой и абсциссой на дисперсионной характеристике, то очевидно, что фотон или фонон можно представить вектором на соответствующей дисперсионной характеристике, как показано на фиг. 7.15, а. Вектор, определенный в $\omega\mathbf{k}$ -пространстве и проведенный из начала координат в ту точку дисперсионной кривой, которая соответствует разрешенным при данном рассмотрении значениям ω и \mathbf{k} , назовем дисперсионным вектором. Законы сохранения (7.39) и (7.40) можно определить как требование, чтобы дисперсионные векторы образовывали замкнутую векторную диаграмму, как изображено на фиг. 7.15, б и в.

Фиг. 7.15, б соответствует случаю коллинеарного рассеяния назад падающей световой волны (ω_i, k_i) на акустической моде, которое приводит к появлению рассеянной световой волны (ω_s, k_s). Заметим, что если дисперсионный вектор (ω_s, k_s) перенести параллельно себе так, чтобы он проходил через начало координат, то он, как и должно быть, будет лежать на дисперсионной кривой для световой волны (т. е. векторы 0_s и $0'_s$ имеют одинаковую длину и параллельны).

Чтобы рассмотреть рассеяние под углом, показанное на фиг. 7.14, необходимо заменить одномерную диаграмму на 7.15, б двумерной, изображенной на фиг. 7.15, в. Эти диаграммы соответствуют изотропной среде, в которой дисперсионные характеристики для световой и акустической волн являются поверхностями вращения. Закон сохранения можно также найти путем вычитания акустического дисперсионного вектора из дисперсионного вектора, соответствующего падающему фотону, на оптической дисперсионной кривой. Дисперсионные векторы, соответствующие рассеянному свету, в этом случае выходят из начала координат и заканчиваются на линии пересечения двух

поверхностей, как показано на фиг. 7.15, г. Из этой диаграммы видно, что частота рассеянного света является функцией угла

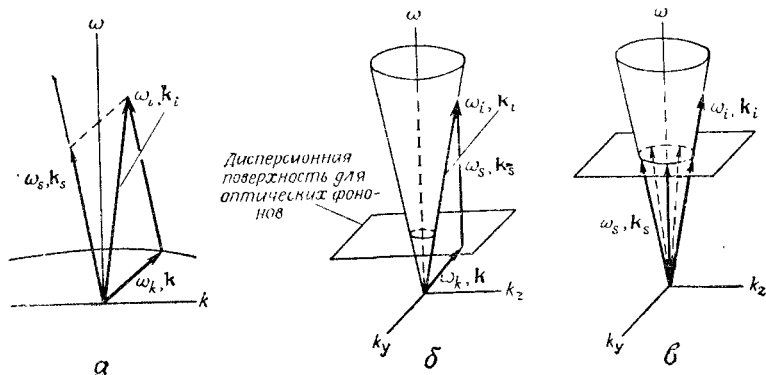


Фиг. 7.15. а — векторы дисперсии; б — генерация рассеянного падающего света, иллюстрирующая законы сохранения энергии и импульса; в — дисперсионная векторная диаграмма для рассеяния в плоскости; проекция вектора дисперсии на вертикальную ось дает частоту волны; проекция на горизонтальную плоскость дает волновой вектор; сохранение волнового вектора означает, что проекция в горизонтальной плоскости представляет собой замкнутую векторную диаграмму; г — в соответствии с условиями сохранения местоположение разрешенных векторов дисперсии для рассеянного света дается пересечением двух поверхностей, получаемых вычитанием поверхности (ω_k, \mathbf{k}) , соответствующей акустической дисперсии, из той точки дисперсионной характеристики для света, которая соответствует входному фотону (ω_i, \mathbf{k}_i) . Как видно, частота рассеянного света зависит от угла в плоскости yz .

между направлением падающего света, который распространяется вдоль оси z , и направлением рассеянного света, распространяющегося в плоскости yz . Зависимость частоты от угла рассеяния рассмотрена в § 7.

3. Рамановское рассеяние

Явление рамановского рассеяния представляет собой второй пример процесса с участием фононов, при котором сохраняются энергия и импульс. Рамановское рассеяние подобно бриллюэновскому рассеянию и отличается главным образом тем, что представляет собой рассеяние света на оптических, а не на акустических колебательных модах. Рассеяние видимого света на оптических модах приводит к смещениям частоты, типичное значение которых имеет порядок нескольких сотен ангстрем.



Фиг. 7.16. Сохранение энергии и импульса для рамановского рассеяния, полученные из дисперсионных диаграмм.

a — рамановское рассеяние назад; *b* — рамановское рассеяние в плоскости; *v* — местоположение разрешенных векторов для рассеянного света, определяемое пересечением двух поверхностей. Как видно, частота рассеянного света не зависит существенно от угла в плоскости *yz*, так как оптическая мода имеет очень малую дисперсию в интересующей нас области.

Если для возбуждения рамановского эффекта используется мощный лазер, то может происходить *вынужденное* рамановское рассеяние — процесс, при котором смещенное по частоте излучение с точки зрения спектрального состава и мощности проявляет свойства лазерного излучения. Вынужденный эффект Рамана, следовательно, дает метод, пригодный для частотного преобразования когерентных оптических сигналов. Подробное рассмотрение вынужденного эффекта Рамана представлено в § 6.

Член нелинейной поляризации, который вызывается рамановским процессом, имеет тот же вид, что и соответствующий член в бриллюэновском рассеянии, и поэтому определяется выражением (7.38). Законы сохранения даются уравнениями (7.39) и (7.40). Соответствующие замкнутые дисперсионные векторные диаграммы показаны на фиг. 7.16. Они аналогичны диаграммам, изображенным на фиг. 7.15, только дисперсионная

характеристика для акустической моды заменена на характеристику оптической колебательной моды. На фиг. 7.16, в поверхность разрешенных значений дисперсионного вектора для рассеянного света получена вычитанием дисперсионного вектора оптической моды из дисперсионного вектора падающего света. Так как дисперсионная характеристика оптической моды довольно плоская в рассматриваемой области, что является типичным случаем, то частота рассеянного света не зависит существенно от угла между падающим и рассеянным светом. В случае сильного взаимодействия оптических мод с электромагнитной волной (т. е. когда мода определяет инфракрасное поглощение, как рассмотрено в § 5) оптические моды обладают дисперсией. В этом случае частота моды и, следовательно, частота рассеянного света является функцией угла.

Метод, который объединяет законы сохранения и дисперсионные диаграммы и который был использован в данном случае для бриллюэновского и рамановского рассеяния, можно применить к процессам рассеяния в общем случае (см. задачу 7.4).

§ 5. ИНФРАКРАСНЫЕ СВОЙСТВА ОПТИЧЕСКИХ ФОНОНОВ

Когда оптические фононы распространяются в двухатомном кристалле, то в зависимости от типа связи может возникать или не возникать разделение зарядов. Кристалл, образованный за счет ионной связи, например NaCl, составлен из положительных и отрицательных ионов. В этом случае при распространении оптического фонона имеет место разделение заряда, так как заряженные подрешетки колеблются навстречу друг другу. С другой стороны, для такого кристалла, как алмаз, который образован за счет ковалентной связи, подрешетки по существу нейтральны, а при их колебаниях навстречу друг другу либо нет никакого пространственного разделения зарядов, либо оно очень мало. Кристалл может иметь связь от чисто ионной до чисто ковалентной. Кристаллы, образованные атомами с почти заполненными оболочками (галогениды щелочных металлов), стремятся быть ионными, в то время как кристаллы, образованные атомами II, III и IV групп периодической таблицы (C, Ge, Si, Te), имеют тенденцию к валентной связи.

В результате разделения зарядов, которое сопровождает распространение оптического фонона в кристаллах с ионной связью, оптические фононы сильно взаимодействуют с электромагнитным полем, имеющим частоту колебаний, обычно лежащую в инфракрасной области. Это взаимодействие приводит к заметному поглощению и отражению в инфракрасной области, исследованием которых мы теперь и займемся. Если оптическая

мода сильно связана с электромагнитным полем, то говорят, что она является *активной в инфракрасном спектре*.

Будем использовать полуклассический подход, при котором поля описываются классическими, а оптические колебания среды — квантовомеханическими уравнениями.

Полный гамильтониан для элементарной ячейки дается выражением

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}', \quad (7.43)$$

где невозмущенная часть гамильтониана \mathcal{H}_0 определяется (7.29):

$$\mathcal{H}_0 = -\frac{1}{2M}(P^2 + M^2\Omega^2Q^2) = \hbar\Omega\left(a^\dagger a + \frac{1}{2}\right), \quad (7.44)$$

а гамильтониан электрического дипольного взаимодействия \mathcal{H}' равен

$$\mathcal{H}' = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} = -ZEQ = -ZE\left(\frac{\hbar}{2M\Omega}\right)^{1/2}(a + a^\dagger). \quad (7.45)$$

Гамильтониан взаимодействия \mathcal{H}' соответствует разделению зарядов Z в результате относительного смещения Q двух подрешеток, причем $Q = q_2 - q_1$. Рассмотрим здесь случай, когда электрическое поле и смещение фонона параллельны.

Уравнение движения для среднего значения амплитуды колебаний $\langle Q \rangle$ найдем уже знакомым читателю методом, используя уравнение (1.51):

$$\langle \ddot{Q} \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{Q} \rangle + \frac{1}{T_2^2} \langle Q \rangle = -\frac{1}{\hbar^2} \langle [[Q, \mathcal{H}], \mathcal{H}'] \rangle. \quad (7.46)$$

Так как \mathcal{H}' коммутирует с Q , то вычисление с помощью (7.44) внутреннего коммутатора, входящего в уравнение (7.46), дает

$$\begin{aligned} [Q, \mathcal{H}] &= [Q, \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'] = [Q, \mathcal{H}_0] + [Q, \mathcal{H}'] = \\ &= [Q, \mathcal{H}_0] = \hbar\Omega\left(\frac{\hbar}{2M\Omega}\right)^{1/2}(a - a^\dagger). \end{aligned}$$

Производя аналогичное вычисление для внешнего коммутатора, получаем

$$[[Q, \mathcal{H}], \mathcal{H}'] = \hbar^2\Omega^2Q - \frac{\hbar^2ZE}{M}.$$

Следовательно, окончательное уравнение движения имеет вид

$$\langle \ddot{Q} \rangle + \Delta\omega_L \langle \dot{Q} \rangle + \Omega^2 \langle Q \rangle = \frac{ZE}{M}, \quad (7.47)$$

где принято, что $\Omega^2 \gg 1/T_2^2$, а $\Delta\omega_L = 2/T_2$ является шириной линии.

Если в единице объема содержится $N_V = \mathcal{N}/V$ идентичных элементарных ячеек, то связанная с фононной волной поляризация определяется выражением

$$P = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^{\mathcal{N}} \langle \mu \rangle_i = N_V \langle \mu \rangle = N_V Z \langle Q \rangle, \quad (7.48)$$

где Z — величина заряда, разделение которого имеет место в элементарной ячейке за счет относительного смещения Q подрешеток.

Уравнения (7.47) и (7.48) описывают поведение среды. Добавим к ним уравнения распространения электромагнитного поля (2.50):

$$\nabla \times (\nabla \times E) + \frac{\eta_\infty^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (7.49)$$

С помощью (7.52) будет показано, что η_∞ является показателем преломления, измеренным на частотах выше частоты рассматриваемого перехода. В уравнении (7.47) электрические поля являются локальными полями, а поляризация P , определяемая (7.48), есть истинная поляризация. Для плотной среды они отличаются от членов, описывающих макроскопическое электрическое поле и поляризационный источник и входящих в волновое уравнение (7.49). Как обсуждалось в гл. 2, § 4, п. 7, различие между локальным и макроскопическим полями, а также между истинной поляризацией и поляризационным источником, возбуждающим поле, появляется за счет влияния близко расположенного поляризуемого вещества на локальное поле, действующее на элементарную ячейку. Учет этого эффекта приводит к появлению поправочных коэффициентов Лоренца.

Если с помощью метода, рассмотренного в гл. 2, § 4, п. 7, определить коэффициенты Лоренца и, учитывая их, переписать уравнения (7.47) и (7.48), то эти уравнения будут иметь тот же вид, только поля и поляризация, как и в уравнении поля (7.49), будут макроскопическими переменными. Введение поправочных коэффициентов Лоренца слегка меняет резонансную частоту Ω и приводит к появлению постоянного множителя перед эффективным зарядом Z . Следовательно, можно рассматривать уравнения (7.47) совместно с (7.49) в том виде, в котором они написаны, но считать, что P и E являются теперь макроскопическими переменными, а поправочный коэффициент Лоренца учтен в Z .

Решения уравнений (7.47) — (7.49) для P , $\langle Q \rangle$ и E ищем в виде бегущих волн, распространяющихся в z -направлении:

$$E = \frac{\tilde{E}}{2} e^{i(\omega t - kz)} + \text{компл. сопр.} \quad (7.50)$$

Уравнения (7.47) — (7.49) имеют два типа решений: поперечные и продольные волны, т. е. решения, для которых P , $\langle Q \rangle$ и E либо перпендикулярны, либо параллельны направлению распространения. Рассмотрим сначала решения в виде поперечных волн. Для таких решений $\nabla \times (\nabla \times E) = k^2 E$ и одновременное решение уравнений (7.47) — (7.49) приводит к условию

$$k^2 = \frac{\omega^2 \kappa(\omega)}{c^2}, \quad (7.51)$$

где относительная комплексная диэлектрическая проницаемость κ определяется выражением

$$\kappa(\omega) = \kappa_\infty + \frac{\Omega^2 \Delta\kappa}{\Omega^2 - \omega^2 + i \Delta\omega_L \omega}. \quad (7.52)$$

Параметр $\Delta\kappa = N_V Z^2 / \Omega^2 M \epsilon_0$ определяет вклад ионных колебаний в диэлектрическую проницаемость при прохождении через частоту перехода и является поэтому мерой силы перехода. Величина $\kappa_\infty = \eta_\infty^2$ является диэлектрической проницаемостью на частотах выше частоты исследуемого перехода, в чем можно убедиться, полагая в (7.52) $\omega \rightarrow \infty$.

В качестве примера рассмотрим кубический кристалл GaP, принадлежащий к точечной группе $\bar{4}3m$. Соответствующие значения параметров таковы:

$$\lambda_t = \frac{2\pi c}{\Omega} = 27,3 \text{ мкм (длина волны поперечных колебаний),}$$

$$\kappa_\infty = 8,457,$$

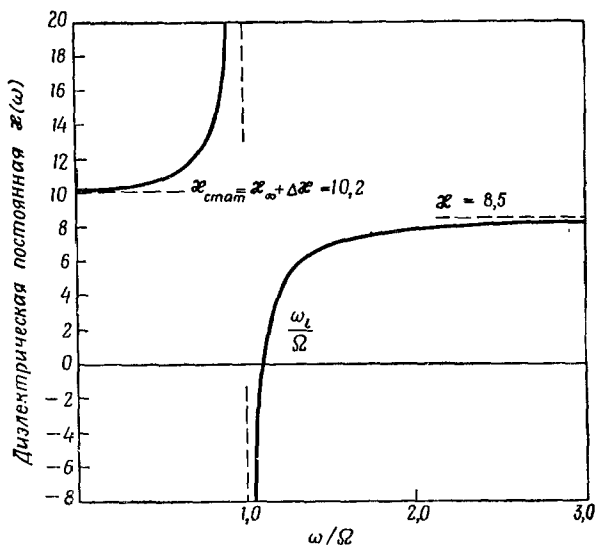
$$\Delta\kappa = 1,725,$$

$$\frac{\Delta\omega_L}{\Omega} = 0,003.$$

Так как величина $\Delta\omega_L/\Omega$ очень мала, то при последующем рассмотрении можно пренебречь влиянием этого члена (т. е. пренебречь влиянием затухания), если особо не указано обратное. Если положить, что величина $\Delta\omega_L/\Omega$ равна нулю, то диэлектрическая проницаемость $\kappa(\omega)$, определяемая выражением (7.52), будет действительной.

График $\kappa(\omega)$ для GaP показан на фиг. 7.17. При $\omega = 0$ диэлектрическая проницаемость имеет статическое значение,

равное $\kappa_{\text{стат}} = \kappa_{\infty} + \Delta\kappa = 10,182$, и резко возрастает при приближении к резонансу. В области правее резонанса диэлектрическая проницаемость возрастает от большого отрицательного значения, проходит через нуль на частоте ω_i , определяемой условием $\omega_i/\Omega = 1,1$, и далее на высоких частотах асимптотически приближается к значению, равному $\kappa_{\infty} = 8,457$. Как будет следовать из решения в виде продольной волны, которое



Фиг. 7.17. Частотная зависимость диэлектрической постоянной $\kappa(\omega)$ для GaP.

получено ниже, частота ω_i является частотой продольной моды, а соответствующая длина волны равна $\lambda_i = 24,9$ мкм. Из фиг. 7.17 видно, что в области $\Omega < \omega < \omega_i$ диэлектрическая проницаемость $\kappa(\omega)$ отрицательна. Это означает, что в указанной области показатель преломления $\eta(\omega) = \sqrt{\kappa(\omega)}$ является мнимым. Коэффициент поверхностного отражения \mathcal{R} , который определяет, какая относительная часть падающей мощности отражается от поверхности с показателем преломления $\eta(\omega)$, дается выражением [8]

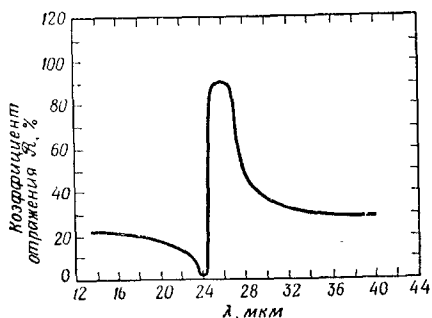
$$\mathcal{R} = \left[\frac{\eta(\omega) - 1}{\eta(\omega) + 1} \right]^2.$$

Следовательно, в области, в которой $\eta(\omega)$ — мнимая величина, коэффициент \mathcal{R} равен единице. Отсюда следует, что в данном частотном диапазоне имеется полоса непрозрачности, где электромагнитное излучение полностью отражается от поверхности.

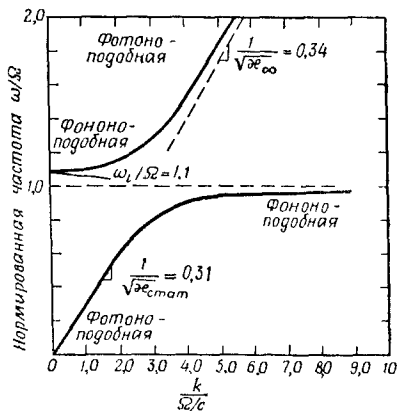
Это явление известно как *остаточное свечение*, или явление отражения *остаточных лучей*¹⁾.

График коэффициентов отражения для GaP представлен на фиг. 7.18. Отклонение максимального значения коэффициента отражения от единицы можно объяснить, если учесть эффекты затухания. Полоса непрозрачности наблюдается в области, лежащей между $\lambda_i = 27,3$ мкм и $\lambda_i = 24,9$ мкм.

Дисперсионная характеристика (ωk -диаграмма) представлена на фиг. 7.19. На частотах, лежащих значительно ниже частоты колебаний, излучение распространяется со скоростью $c/\sqrt{\epsilon_{\text{стат}}}$. В этой области колебания решетки могут следовать



Фиг. 7.18. Коэффициент отражения для кристалла GaP.



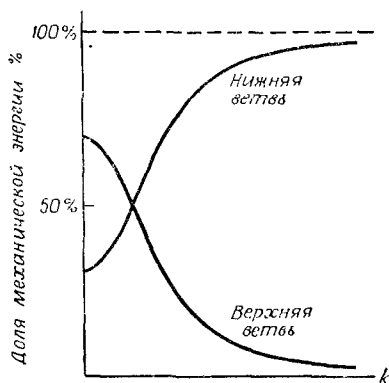
Фиг. 7.19. Дисперсионная характеристика для кристалла GaP.

за медленными изменениями полей, и такое движение дает вклад в диэлектрическую проницаемость. Однако, поскольку частота намного ниже резонансной, механические смещения малы и, следовательно, большая часть энергии заключена в электромагнитной волне. В этой области система со связанной модой может быть названа фотоноподобной.

Когда частота приближается к частоте поперечных колебаний решетки Ω , колебания решетки оказываются сильно связанными с инфракрасным излучением и дисперсионная кривая существенно отклоняется от фотоноподобной характеристики. В этой области большая часть энергии представляет собой механическую энергию, связанную со смещениями решетки. Зависимость от k доли механической энергии, выраженной в процентах, представлена на фиг. 7.20 [1].

¹⁾ Эта терминология связана с тем, что кристаллы такого типа использовались в экспериментах в качестве поверхностей для многократных отражений, в результате которых могут быть получены довольно монохроматические остаточные лучи от широкополосного источника.

В полосе непрозрачности $\Omega < \omega < \omega_1$ связанная мода не распространяется. На высокочастотном краю полосы непрозрачности мода снова становится преимущественно механическим колебанием. Однако вдали от резонанса дисперсионная характеристика системы со связанной модой вновь становится фотоподобной, правда, с уменьшенной диэлектрической проницаемостью вследствие того, что колебания решетки не успевают следовать за быстро изменяющимся полем. Вклады в диэлектрическую проницаемость в этой области обусловлены более высокочастотными резонансами, в частности электронными. Для некоторых кристаллов могут существовать также ионные колебания того же типа, что и рассмотренные, но с более высокими частотами. Если это имеет место, то нужно учитывать также и их вклады. Значения параметров для некоторых распространенных кристаллов, которые обладают единственным ионным колебанием, сведены в табл. 9.



Фиг. 7.20. Доля механической энергии, выраженная в процентах, для поперечных мод [1].

Верхняя и нижняя ветви соответствуют частотам выше и ниже частоты перехода Ω , как показано на фиг. 7.19.

Если это имеет место, то нужно учитывать также и их вклады. Значения параметров для некоторых распространенных кристаллов, которые обладают единственным ионным колебанием, сведены в табл. 9.

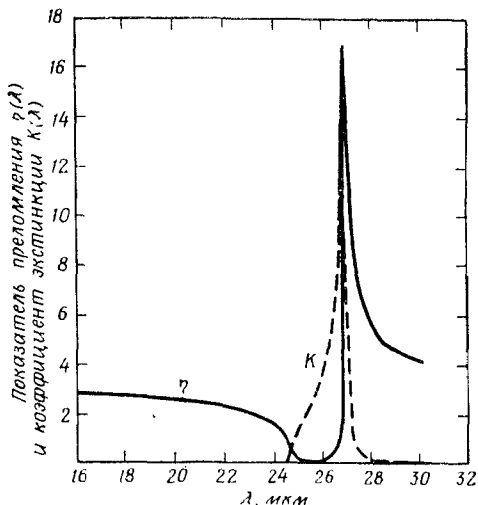
Таблица 9

Параметры кристаллов для оптических мод, активных в инфракрасных спектрах

Кристалл	Структура	Статическая диэлектрическая постоянная $\epsilon_{\text{стат}}$	Оптическая диэлектрическая постоянная ϵ_{∞}	Ω , 10^{13} сек^{-1} (экспериментальное значение)
LiF	NaCl	8,9	1,9	5,8
NaF	NaCl	5,1	1,7	4,5
NaCl	NaCl	5,9	2,25	3,1
NaBr	NaCl	6,4	2,6	2,5
KCl	NaCl	4,85	2,1	2,7
KI	NaCl	5,1	2,7	1,9
RbI	NaCl	5,5	2,6	1,4
CsCl	CsCl	7,2	2,6	1,9
TlCl	CsCl	31,9	5,1	1,2
TlBr	CsCl	29,8	5,4	0,81
AgCl	NaCl	12,3	4,0	1,9
AgBr	NaCl	13,1	4,6	1,5
MgO	NaCl	9,8	2,95	7,5

Описанная выше дисперсионная кривая характеризует систему со связанной модой, являющуюся по своей природе частично электромагнитной, частично механической. Когда связь между излучением и колебаниями решетки стремится к нулю (т. е. $Z \rightarrow 0$), дисперсионная характеристика, показанная на фиг. 7.19, приближается по форме к двум пересекающимся прямым линиям; одна из них горизонтальна и соответствует фоновой дисперсионной характеристике, которая существовала бы в отсутствие связи с излучением, другая диагональна и соответствует дисперсии излучения в отсутствие колебаний. Исходя из такой точки зрения, можно видеть, что дисперсионная характеристика при конечной связи представляет собой дисперсионную характеристику в отсутствие связи, но с расщеплением в области, где частоты и волновые векторы почти одинаковы. Такое поведение типично для системы со связанными модами.

Если учесть затухание, то диэлектрическая проницаемость, определяемая выражением (7.52), имеет как вещественную, так и мнимую части за счет конечной ширины линии $\Delta\omega_L$. При учете затухания отдельные ветви кривых диэлектрической проницаемости и дисперсии соединяются в непрерывную кривую, как показано на фиг. 7.22, в и г. Для дальнейшего рассмотрения эффектов затухания введем комплексный показатель преломления $\sqrt{\kappa(\omega)} = \eta(\omega) - iK(\omega)$, где $\eta(\omega)$ — действительная часть, а величина $K(\omega)$, известная как коэффициент экстинкции, учитывает потери. Из (7.50) и (7.51) видно, что коэффициент экстинкции K связан с коэффициентом поглощения для энергии Γ соотношением $K = \Gamma c/2\omega$. Графики величин η и K для GaP изображены на фиг. 7.21.



Фиг. 7.21. Показатель преломления и коэффициент экстинкции для кристалла GaP

Наряду с решениями в виде поперечных волн (7.47) — (7.49), которые рассмотрены выше, существуют также решения в виде продольных волн. В этом случае P , $\langle Q \rangle$ и E параллельны направлению распространения. Тогда $\nabla \times (\nabla \times E) = 0$ и решение уравнений (7.47) — (7.49) приводит к $\kappa = 0$, где κ

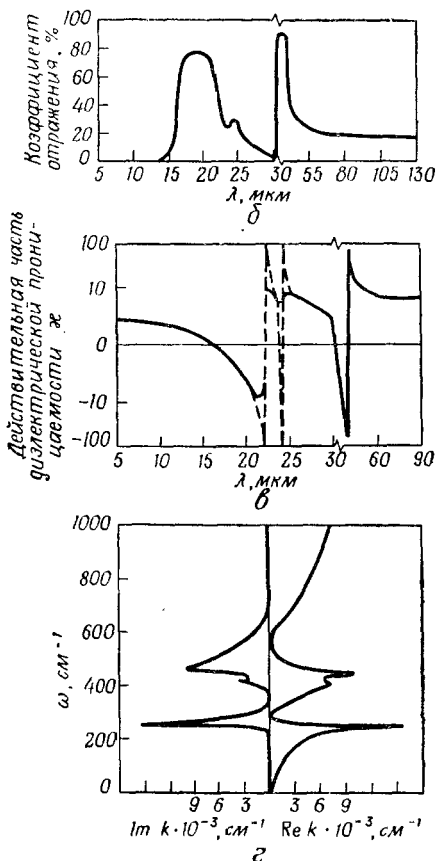
Значения параметров для MgF_2 ($E \perp c$)

Ω , $см^{-1}$	λ_t (мкм)	$\Delta \chi_f$	$(\Delta \omega_L)/\Omega_f$
247	40,6	2,22	0,014
410	24,4	0,19	0,033
450	22,2	1,14	0,058

$$\chi_{стат} = 5,4$$

$$\chi_{\infty} = 1,9$$

а



Фиг. 7.22. Поперечные оптические моды в MgF_2 для поля E , перпендикулярного оси c .

а — значения параметров; б — коэффициент отражения; в — действительная часть диэлектрической постоянной $\chi(\omega)$, найденная из данных по отражению; пунктирная кривая соответствует равному нулю затуханию; г — дисперсионные кривые.

опять определяется выражением (7.52). Если пренебречь членом затухания и разрешить (7.52) относительно ω , то получим выражение для частоты продольной моды ω_l :

$$\frac{\omega_l}{\Omega} = \left(\frac{\kappa_{\text{стат}}}{\kappa_{\infty}} \right)^{1/2}, \quad (7.53)$$

где $\kappa_{\text{стат}} = \kappa_{\infty} + \Delta\kappa$. Выражение (7.53) известно как соотношение Лиддена — Сакса — Теллера. Видно, что частота продольной моды не зависит от волнового вектора \mathbf{k} и, следовательно, соответствующая дисперсионная характеристика является горизонтальной прямой.

Для продольных мод поляризация, смещение и поле P , $\langle Q \rangle$ и E поляризованы параллельно направлению распространения. Следовательно, продольные колебания решетки не связаны с полями светового излучения, которые перпендикулярны направлению распространения.

Из (7.51) видно, что условие $\kappa = 0$ для продольной моды соответствует также точке $k = 0$ для поперечной моды с конечной частотой ω . Таким образом, верхняя ветвь решения для поперечной моды начинается при $\omega = \omega_l$, поэтому ω_l является также верхней граничной частотой полосы непрозрачности, связанной с поперечными модами.

Метод, представленный в этом параграфе, можно расширить и рассмотреть несколько колебательных мод, частоты которых лежат между $\omega = 0$ и частотами электронных резонансов [9]. В этом случае выражение (7.52) обобщается к виду

$$\kappa(\omega) = \kappa_{\infty} + \sum_j \frac{\Omega_j^3 \Delta\kappa_j}{\Omega_j^2 - \omega^2 + i(\Delta\omega_L)_j \omega}.$$

Статическое значение диэлектрической проницаемости $\kappa_{\text{стат}}$ определяется тогда выражением

$$\kappa_{\text{стат}} = \kappa_{\infty} + \sum_j \Delta\kappa_j.$$

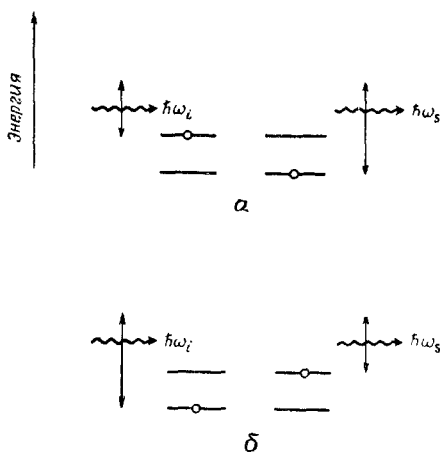
Значения параметров, коэффициент отражения, диэлектрическая проницаемость и дисперсионные кривые для поперечных мод в MgF_2 при условии, что поле E перпендикулярно оси c , показаны на фиг. 7.22.

Прежде чем закончить обсуждение вопроса о поглощении и дисперсионных свойствах оптических фононов, заметим, что результаты описывают также поглощение и дисперсию, связанную с электрическими резонансами. Это было рассмотрено в гл. 3 с точки зрения взаимодействия излучения с электрическим дипольным переходом двухуровневой системы. Анализ гл. 3 привел к уравнению для постоянной распространения

(3.11a), которое имеет ту же форму, что и уравнения (7.51) и (7.52). Следовательно, очевидно, что результаты, основанные на уравнениях (7.51) и (7.52), применимы также и в электронном случае.

§ 6. ЭФФЕКТ РАМАНА

В 1928 г. Раман и Кришнан в ряде опытов по рассеянию света в жидкостях и парах наблюдали, что определенная малая часть интенсивности света ($10^{-6} - 10^{-7}$) испытывает в процессе рассеяния значительное смещение по частоте (порядка нескольких сот ангстрем) [10]. В том же году такие эффекты наблюдались независимо



Фиг. 7.23. Эффект Рамана является процессом нелинейного рассеяния света, в котором падающая световая волна рассеивается на оптической моде среды, давая фотоны на суммарной и разностной частотах.

Рисунок показывает, как фотоны падающего луча преобразуются в рассеянные фотоны со сдвигом частоты, приводя к изменению состояния среды. Длины вертикальных стрелок соответствуют энергиям фотонов.

а — образование суммарной частоты (антистоксово рассеяние); б — образование разностной частоты (стоксово рассеяние).

Ландсбергом и Мандельштамом в опыте с кристаллами [11]. В их экспериментах было обнаружено, что частотные сдвиги соответствуют частотам оптических колебаний рассеивающего вещества. Из этих наблюдений был сделан вывод, что диэлектрическая проницаемость и поляризуемость среды модулируются колебаниями, а совместное действие излучения и оптических колебаний приводит к их смещению и к появлению суммарной и разностной частот. Эти процессы иллюстрируются на фиг. 7.23. Обнаруженное явление стало известно как эффект Рамана и является сейчас основным методом спектроскопии при определении структуры оптических колебаний. Как

метод спектроскопии он служит полезным дополнением к спектроскопии инфракрасного поглощения, когда колебательные моды вследствие условий четности не поглощают инфракрасное излучение, но могут быть активными при рамановском рассеянии.

Интерес к эффекту Рамана резко возрос, когда стали доступными интенсивные лазерные источники. Одна из причин этого интереса заключается в том, что эффект стал теперь бо-

лее легко наблюдаемым и, следовательно, представляет более удобный метод изучения свойств материалов. Другая причина состоит в том, что при вынужденных процессах смещенные спектральные линии сами могут быть похожи по характеристикам на линии лазерного излучения и поэтому действуют как новые источники когерентного оптического излучения. Такой эффект называется *вынужденным* рамановским рассеянием.

Существенные особенности вынужденного эффекта Рамана лучше всего описать при сравнении его с обычным или спонтанным рамановским рассеянием. При спонтанном рамановском рассеянии переизлучаемый на рамановской частоте (частота падающего света минус частота моды) свет испускается во всех направлениях случайно. Так как каждый излучатель действует независимо от других, то отсутствует фазовая когерентность между излучением от различных излучателей. Эффективность рассеяния мала и имеет порядок 10^{-6} рассеянных фотонов на один падающий фотон. Ширина линии выходного излучения соответствует ширине колебательного уровня среды.

При вынужденном рамановском рассеянии выходное излучение испускается не во всех направлениях, а в совершенно определенном направлении. Поэтому источники излучают не независимо, а связаны по фазе и направлению излучения за счет высокой мощности излучения на рамановской частоте. В противоположность спонтанному эффекту, при вынужденном рамановском эффекте излучение, уже существующее на рамановской частоте, влияет на процесс излучения на этой частоте. Высокая интенсивность, которая может достигать интенсивности падающего пучка, получается за счет механизма усиления на рамановской частоте. Так как усиление существенно зависит от частоты, то вынужденное излучение происходит главным образом на той частоте, на которой усиление максимально. В результате ширина спектральной линии выходного излучения мала по сравнению с шириной линии спонтанной эмиссии. Разница между спонтанным и вынужденным излучением рассматривается более подробно в § 6, п. 2.

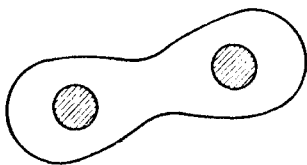
Вынужденный эффект Рамана был открыт в 1962 г. в опыте с рубиновым лазером (6943 Å), работающим в режиме модуляции добротности, когда в излучении неожиданно наблюдалась линия 7670 Å [12]. По интенсивности и направленности излучения было ясно, что эта новая линия появилась за счет вынужденного излучения, хотя длина волны этого излучения не соответствовала какому-либо известному переходу в рубине. Эффект был объяснен как вынужденное рамановское излучение за счет молекулярных колебаний в ячейке Керра с нитробензолом, которая использовалась для модуляции добротности [13, 14]. Вскоре после открытия вынужденное рамановское излучение наблю-

далось в ряде других материалов, включая органические [15] и неорганические [16] жидкости, кристаллы [17] и газы [18]. Одновременно с первой экспериментальной работой была разработана теория для объяснения вынужденного эффекта [12, 20—22].

В то время как эффективности обычного рамановского рассеяния имеют порядок 10^{-6} рассеянных фотонов на падающий фотон, вынужденный эффект дает преобразование лазерного излучения в рамановское с эффективностью порядка 30%, а теоретически эффективность может достигать единицы. Таким образом, вынужденный эффект Рамана дает эффективные методы создания когерентных оптических источников видимого и инфракрасного диапазонов, которые до некоторой степени управляются и требуют использования только лазера — как источника накачки — и кристалла или ячейки, содержащей жидкость или газ — как рассеивающей среды. Наблюдалось более 100 когерентных линий [23, 24], а область полученных частот значительно превышает область, достигнутую только за счет рамановских частотных смещений, так как в последовательных, а также в параметрических процессах генерируемое первоначально рамановское излучение само действует как мощная накачка, приводя к дальнейшим смещениям. Список материалов, в которых наблюдалось вынужденное рамановское рассеяние ко времени написания книги, приведен в приложении 8.

1. Общее рассмотрение. Классический подход

Основные черты рамановского рассеяния можно понять с помощью относительно простого классического описания. Отдельная молекула или элементарная ячейка кристалла, на которых имеет место рассеяние, обычно состоит из двух или более связанных ядер, окруженных электронным облаком, как показано на фиг. 7.24.

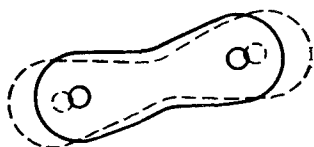


Фиг. 7.24. Неколеблющаяся молекула, состоящая из ядер, окруженных электронным облаком.

Если поле падающего излучения, лежащего в видимой или инфракрасной области спектра, взаимодействует с молекулой или элементарной ячейкой, то индуцируется электрический дипольный момент μ . Если частота излучения лежит значительно выше частот колебательных резонансов и значительно ниже частот электронных резонансов, то в соответствии с (7.47), (7.48) и (2.35) дипольный момент прямо пропорционален электрическому полю:

$$\mu_i = \alpha_{ij} E_j = \alpha_{ij} \tilde{E}_j \cos \omega t, \quad (7.54)$$

где α_{ij} — тензор электронной поляризуемости молекулы. В этом выражении подразумевается суммирование по повторяющимся индексам. Поляризуемость α_{ij} получается при суммировании выражений вида (2.35) при условии, что частота поля значительно ниже частоты перехода. Поляризуемость представляет собой сумму по электронным переходам. При физическом описании говорят, что дипольный момент появляется за счет смещения заряженного электронного облака относительно ядер. При взаимодействии со светом относительно легкое электронное облако следует за падающим полем, а более тяжелые ядра



Фиг. 7.25. Колеблющаяся молекула.

Колебания индуцируются за счет энергии, передаваемой ядрам вследствие движения электронного облака. Частота колебаний ядер соответствует не частоте колебаний электронного облака, возникающих за счет приложенного поля, а частоте молекулярного колебания. Для типичных структур (органические жидкости, например бензол или хлороформ, или кристаллы, например ниобат лития или алмаз) молекулярные колебания лежат в инфракрасной области спектра в диапазоне 3–30 мкм.

в первом приближении остаются неподвижными. Если предположить, что ядра остаются неподвижными, то электронная поляризуемость α_{ij} на любой частоте является просто константой, значение которой определяется молекулой или элементарной ячейкой. Эта поляризуемость ответственна за показатель преломления среды на частотах, лежащих выше резонансных частот ионных колебаний.

Однако предположение о том, что ядра остаются неподвижными, не совсем корректно, так как некоторая часть поглощенной электронами энергии вследствие движения электронного облака передается ядрам. В результате ядра начинают осциллировать относительно положения равновесия, как показано на фиг. 7.25.

При колебании ядер электронная поляризуемость α_{ij} изменяется, так как меняется ядерная конфигурация (фиг. 7.26). Математически это можно описать, разлагая электронную поляризуемость α_{ij} в ряд Тейлора по нормальным колебательным координатам, например по координате $Q = q_2 - q_1$, которая пригодна для двухатомного кристалла, рассмотренного в § 3, п. 3.

Этот метод, предложенный первоначально Плачеком [25], приводит к выражениям

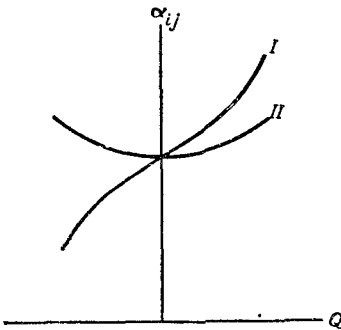
$$\alpha_{ij} = \alpha_{ij}^0 + \left(\frac{\partial \alpha_{ij}}{\partial Q} \right)_0 Q + \dots = \alpha_{ij}^0 + \left(\frac{\partial \alpha_{ij}}{\partial Q} \right)_0 \tilde{Q} \cos \omega_s t + \dots, \quad (7.55)$$

где ω_v — частота колебаний, а $(\partial\alpha_{ij}/\partial Q)_0$ — значение производной, вычисленное для равновесного положения ядер.

Подстановка (7.55) в (7.54) дает

$$\mu_i = \alpha_{ij}^0 \tilde{E}_j \cos \omega t + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \alpha_{ij}}{\partial Q} \right)_0 \tilde{Q} \tilde{E}_j [\cos(\omega_i + \omega_v)t + \cos(\omega_i - \omega_v)t] + \dots \quad (7.56)$$

Из этого выражения видно, что при колебаниях молекул изменения электронной поляризуемости приводят к появлению дипольных моментов, которые обуславливают появление двух линий излучения, одна из которых имеет частоту выше, а другая — ниже частоты возбуждающего излучения.



Фиг. 7.26. Поляризуемость как функция колебательной координаты Q .

Если поляризуемость меняется так, как показано на кривой I, то существует эффект Рамана первого порядка; если поляризуемость меняется, как показано на кривой II, то эффект первого порядка отсутствует.

Обе они смещены на величину, которая соответствует частоте колебаний. Это и есть генерация тех смещенных линий, которые составляют эффект Рамана. Линия излучения более низкой частоты называется стоксовой линией, линия более высокой частоты — антистоксовой. Названия «стоксова» и «антистоксова» обязаны закону Стокса для флуоресценции, согласно которому линии излучения обычно имеют более низкую частоту, чем возбуждающие линии.

Как видно из (7.56), эффект Рамана пропорционален величине $(\partial\alpha_{ij}/\partial Q)_0$. Следовательно, если поляризуемость зависит от колебательной координаты так, как показано на кривой I фиг. 7.26, то эффект Рамана имеет место; если же поляризуемость изменяется так, как показано на кривой II, то эффект Рамана первого порядка исчезает и нужно рассматривать следующие более высокие члены разложения (7.55). Эффект Рамана, следовательно, зависит от изменения поляризуемости как функции смещений. В книге Герцберга [26] приводятся рамановские свойства колебаний для всех 32 точечных групп симметрии, откуда можно определить, имеет ли место эффект Рамана при данной симметрии колебаний для данного типа молекул или кристаллов.

Интенсивности рамановских линий сильно зависят от типа связи и обычно для ковалентной связи они намного выше, чем для ионной. Интенсивность рамановского излучения зависит от того, как сильно изменяется поляризуемость при колебаниях. В случае ковалентной связи валентные электроны принадлежат нескольким атомам, а изменение расстояния между ядрами сильно влияет на поляризуемость. При ионной связи каждый электрон в основном находится под влиянием только одного ядра и поляризуемость слабо изменяется при колебаниях.

Теперь можно получить выражение для того члена гамильтониана, который описывает рамановские процессы. Из (7.54) и (7.55) видно, что дипольный момент, связанный с эффектом Рамана, равен

$$\mu_i = \alpha'_{ij}(Q) E_j, \quad (7.57)$$

где $\alpha'_{ij}(Q)$ определяется выражением

$$\alpha'_{ij}(Q) = \left(\frac{\partial \alpha_{ij}}{\partial Q} \right)_0 Q. \quad (7.58)$$

В присутствии электрического поля член взаимодействия имеет вид потенциальной энергии, запасенной в поляризуемой среде [1, 27]:

$$\mathcal{H}' = -\frac{1}{2} \alpha'_{ij}(Q) E_j E_i. \quad (7.59)$$

2. Квантовомеханическое рассмотрение

В этом разделе мы выведем уравнения движения, которые описывают эффект Рамана. Используем полуклассический подход, описывая поля классически, а среду — квантовомеханически. Как и при исследовании резонансного поглощения и излучения, полуклассический метод позволяет описать только *вынужденное* рамановское рассеяние. Описание спонтанного эффекта Рамана, которое следует из квантования поля, можно получить на основе метода «экстра-фотонов». Согласно изложенному в гл. 6, этот метод состоит в том, что в полученные с помощью полуклассического подхода формулы, описывающие процессы излучения, можно ввести члены, определяющие спонтанную эмиссию, если заменить $n \rightarrow n + 1$, где n — число фотонов в моде, имеющей частоту излучения.

Так как эффект Рамана зависит от оптических колебательных мод, то свойства среды можно описать на основе результатов по квантованию оптической моды, полученных для двухатомного кристалла в § 3, п. 3. Результаты для колебаний двух подрешеток навстречу друг другу в равной мере применимы и к другим гармоническим колебаниям (например, к колебатель-

ным модам молекулы), если подходящим образом определить эффективную массу.

Полный гамильтониан для этой задачи равен $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'$. Невозмущенная часть \mathcal{H}_0 , согласно (7.30), равна

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\Omega \left(a^\dagger a + \frac{1}{2} \right). \quad (7.60)$$

На основании приведенного в § 6, п. 1 рассмотрения член взаимодействия для данной колебательной моды имеет вид

$$\mathcal{H}' = -\frac{1}{2} \alpha' (Q) E^2 = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)_0 Q E^2, \quad (7.61)$$

где, согласно (7.28), оператор Q , соответствующий нормальной колебательной моде, дается выражением

$$Q = \left(\frac{\hbar}{2M\Omega} \right)^{1/2} (a + a^\dagger). \quad (7.62)$$

Рассмотрим для простоты одномерную задачу, когда поля, колебания и индуцированные дипольные моменты поляризованы параллельно, что часто имеет место в условиях эксперимента.

Уравнение движения для среднего значения амплитуды колебаний $\langle Q \rangle$ найдем, используя (1.51):

$$\langle \ddot{Q} \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{Q} \rangle + \frac{1}{T_2^2} \langle Q \rangle = -\frac{1}{\hbar^2} \langle [[Q, \mathcal{H}], \mathcal{H}] \rangle. \quad (7.63)$$

Вычисление с помощью (7.60) — (7.62) внутреннего коммутатора, входящего в (7.63), дает

$$\begin{aligned} [Q, \mathcal{H}] &= [Q, \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'] = [Q, \mathcal{H}_0] + [Q, \mathcal{H}'] = \\ &= [Q, \mathcal{H}_0] = \hbar\Omega \left(\frac{\hbar}{2M\Omega} \right)^{1/2} (a - a^\dagger), \end{aligned}$$

так как \mathcal{H}' коммутирует с Q .

Аналогичное вычисление внешнего коммутатора дает

$$\begin{aligned} [[Q, \mathcal{H}], \mathcal{H}] &= \hbar^2 \Omega^2 Q - \frac{\hbar^2}{2M} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)_0 E^2 (a a^\dagger - a^\dagger a) = \\ &= \hbar^2 \Omega^2 Q - \frac{\hbar^2}{2M} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)_0 E^2, \end{aligned} \quad (7.64)$$

где в правой части (7.64) коммутатор $(a a^\dagger - a^\dagger a)$ исключается вследствие применения коммутационного соотношения $[a, a^\dagger] = 1$. Как видно из дальнейшего, иногда для облегчения физической интерпретации результатов полезно сохранить более длинную форму записи оператора.

Подстановка (7.64) в (7.63) приводит к двум эквивалентным выражениям для $\langle Q \rangle$:

$$\langle \ddot{Q} \rangle + \Delta\omega_L \langle \dot{Q} \rangle + \Omega^2 \langle Q \rangle = \frac{1}{2M} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)_0 E^2 (\langle n_p \rangle + 1) - \frac{1}{2M} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)_0 E^2 \langle n_p \rangle, \quad (7.65a)$$

$$\langle \ddot{Q} \rangle + \Delta\omega_L \langle \dot{Q} \rangle + \Omega^2 \langle Q \rangle = \frac{1}{2M} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)_0 E^2, \quad (7.65b)$$

где $\Delta\omega_L = 2/T_2$ — ширина линии колебаний, Ω — резонансная частота колебаний, и принято, что $\Omega^2 \gg 1/T_2^2$. Величина $\langle n_p \rangle$ является средним значением числа фононов, участвующих в колебаниях. Коэффициенты, выраженные через $\langle n_p \rangle$, появляются в результате применения формулы (6.20) к оператору, стоящему в круглых скобках в (7.64), т. е.

$$\begin{aligned} \langle a^\dagger a \rangle &= \langle n_p \rangle, \\ \langle a a^\dagger \rangle &= \langle a^\dagger a + 1 \rangle = \langle n_p \rangle + 1. \end{aligned}$$

Физический смысл более длинного выражения (7.65a) мы исследуем несколько позже в этом разделе.

Если $N_V = \mathcal{N}/V$ есть число элементарных ячеек или молекул в единице объема, то нелинейную поляризацию, связанную с фононами, найдем из (7.57) и (7.58):

$$P = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^{N_V} \langle \mu \rangle_i = N_V \overline{\langle \mu \rangle} = N_V \overline{\left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q} \right)_0 \langle Q \rangle} E, \quad (7.66)$$

где черта сверху указывает на пространственное усреднение.

Уравнения (7.65) и (7.66) описывают поведение среды в присутствии электромагнитного поля. Чтобы система уравнений была замкнутой, добавим уравнение распространения поля (2.50), в котором пренебрежем потерями:

$$\nabla \times (\nabla \times E) + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (7.67)$$

В уравнениях (7.65) и (7.66) поля являются локальными, а поляризация P , определяемая выражением (7.65), есть микроскопическая поляризация, в то время как в волновом уравнении (7.67) поле и поляризация являются макроскопическими переменными. Как было показано в гл. 2, § 4, п. 7, влияние близлежащей поляризуемой среды на локальное электрическое поле, в котором находится данная молекула или элементарная ячейка, обуславливает появление поправочных коэффициентов Лоренца для локального поля. Учет этого эффекта приводит просто к появлению постоянных множителей перед $(\partial \alpha / \partial Q)_0$ в (7.65) и (7.66), а поля и поляризацию тогда можно рассмат-

ривать как те же самые макроскопические переменные, которые входят в уравнение поля (7.67). Следовательно, уравнения (7.65) — (7.67) совместны, если поправочные коэффициенты Лоренца учтены в коэффициенте $(\partial\alpha/\partial Q)_0$.

Уравнения (7.65) — (7.67) представляют собой самосогласованное приближение, которое описывает эффект Рамана, возникающий при взаимодействии электромагнитного поля с оптической фононной модой. Фононная мода, описываемая уравнением (7.65), ведет себя как гармонический осциллятор с частотой Ω , который возбуждается вблизи резонанса за счет произведения падающего и рассеянного стоковса полей, частоты которых отличаются на частоту колебаний. Поляризация на стоковсой частоте, требуемая в соответствии с (7.67) для генерации стоковса поля, в свою очередь является результатом смещения колебаний с падающим полем в соответствии с уравнением (7.66).

3. Рамановская восприимчивость

Рассмотрим решение уравнений движения (7.65) и (7.67). Предположим, что упругая, падающая и рассеянная стоковса волны распространяются коллинеарно в z -направлении. Допустим, что решение для упругой волны имеет вид

$$\langle Q \rangle = \frac{\tilde{Q}_v}{2} e^{i(\omega_v t - k_v z)} + \text{компл. сопр.} \quad (7.68)$$

Решения для других переменных определим аналогично, например

$$E = \frac{1}{2} \tilde{E}_i e^{i(\omega_i t - k_i z)} + \frac{1}{2} \tilde{E}_s e^{i(\omega_s t - k_s z)} + \text{компл. сопр.},$$

где индексы v , i , s обозначают упругую, падающую и рассеянную стоковсу волны соответственно. Чтобы получить соотношения между амплитудами различных волн, приравняем коэффициенты при подобных экспонентах и предположим, что сохраняются энергия и волновой вектор: $\omega_s = \omega_i - \omega_v$, $k_s = k_i - k_v^*$, как рассмотрено в § 4, п. 3. Вещественная часть уравнения для k является обычным условием сохранения волнового вектора, а мнимая часть показывает, что стоковсо излучение и колебания возрастают или уменьшаются одинаковым образом. Величина волнового вектора падающей волны k_i считается вещественной, так как мы пренебрегаем ослаблением падающего пучка. Из (7.65) и (7.66) найдем, что поляризация на стоковсой частоте имеет вид

$$P_s = \epsilon_0 \chi_R(\omega_v) |E_i|^2 \tilde{E}_s, \quad (7.69)$$

где $\chi_R(\omega_v)$ — рамановская восприимчивость, определяемая выражением

$$\chi_R(\omega_v) = \frac{N_V \overline{(\partial\alpha/\partial Q)_0^2}}{4M\epsilon_0} \frac{1}{\Omega^2 - \omega_v^2 - i(\Delta\omega_L)\omega_v}. \quad (7.70)$$

Следовательно, процесс рамановского рассеяния можно описать с помощью рамановской восприимчивости $\chi_R(\omega_v) = \chi'_R(\omega_v) + i\chi''_R(\omega_v)$, которая имеет лоренцеву форму линии и является чисто мнимой при резонансе. Так как $\chi_R(\omega_v)$ связывает поляризацию с кубическим произведением полей, то рамановская восприимчивость в общем трехмерном случае является тензором четвертого ранга, характеризующим рассеивающую среду.

Уравнение поля (7.67) принимает вид

$$\left(k_s^2 - \frac{\eta_s^2 \omega_s^2}{c^2}\right) \tilde{E}_s = \mu_0 \omega_s^2 \tilde{P}_s;$$

комбинируя его с (7.69), получаем

$$\left(k_s^2 - \frac{\eta_s^2 \omega_s^2}{c^2}\right) \tilde{E}_s = \mu_0 \omega_s^2 \epsilon_0 \chi_R(\omega_v) |\tilde{E}_i|^2 \tilde{E}_s. \quad (7.71)$$

4. Рамановское усиление

В соответствии с (7.71) постоянная распространения стоксовой волны равна

$$k_s^2 = \frac{\omega_s^2 \eta_s^2}{c^2} \left[1 + \frac{\chi_R |\tilde{E}_i|^2}{\eta_s^2} \right], \quad (7.72)$$

где принято $c^2 \mu_0 = 1/\epsilon_0$. Так как второй член в скобках, появляющийся за счет рамановской нелинейности, мал, то можно использовать приближенное выражение для квадратного корня $\sqrt{1+x} \approx 1+x/2$ и получить

$$k_s = k'_s + ik''_s = \frac{\omega_s \eta_s}{c} \left[1 + \frac{\chi'_R |\tilde{E}_i|^2}{2\eta_s^2} \right] + i \frac{\omega_s \chi''_R |\tilde{E}_i|^2}{2c\eta_s}. \quad (7.73)$$

Из экспоненциального вида решений ясно, что мнимый член в k_s приводит к усилению на стоксовой частоте. Коэффициент усиления g_s для мощности стоксовой волны определяется из роста интенсивности стоксовой волны

$$|\tilde{E}_s|^2 e^{2k''_s z} = |\tilde{E}_s|^2 e^{g_s z} \quad (7.74)$$

и равен

$$g_s = \frac{2\pi\chi''_R |\tilde{E}_i|^2}{\lambda_s \eta_s} = \frac{4\pi\chi''_R I_i}{\lambda_s \eta_s \eta_i \epsilon_0 c} n^{-1}. \quad (7.75)$$

где λ_s — длина волны стоксова излучения в вакууме и $I_i = (\eta_i \varepsilon_0 c |\vec{E}_i|^2)/2$ — плотность мощности для падающей волны. Из решения для стоксовой волны с учетом (7.74) следует, что интенсивность $I_s = [(\eta_s \varepsilon_0 c |\vec{E}_s|^2)/2] e^{g_s z}$ удовлетворяет уравнению нарастания

$$\frac{\partial I_s}{\partial z} = g_s I_s, \quad (7.76)$$

где g_s определяется выражением (7.75). Так как нарастание интенсивности стоксовой волны пропорционально самой интенсивности, то эффект является индуцированным, или вынужденным. Это определение согласуется с определением вынужденного процесса, данным в гл. 6, так как интенсивность возрастает со скоростью, пропорциональной самой интенсивности. Различие между вынужденными и спонтанными эффектами в рамановских процессах аналогично различию, имеющему место в однофотонных процессах излучения, рассмотренных в гл. 6. Спонтанный эффект Рамана рассмотрен в § 6, п. 5 настоящей главы.

В качестве примера типичных значений рассмотрим колебания органической молекулы бензола (C_6H_6) с частотой 992 см^{-1} . При использовании в качестве источника накачки рубинового лазера ($\lambda_i = 6943 \text{ \AA}$) можно применять следующие параметры:

$$\begin{aligned} \chi''_R(\omega_\nu = \Omega) &= 8 \cdot 10^{-21} \text{ ед. МКС}^1), \\ \lambda_s &= 7450 \text{ \AA} = 7,45 \cdot 10^{-7} \text{ м}, \\ \eta_i &= \eta_s = 1,49. \end{aligned} \quad (7.77)$$

При мощности накачки $I_i = 400 \text{ Мвт/см}^2$ выражение (7.75) дает для коэффициента усиления величину порядка 1 см^{-1} . Такие усиления не являются редкими даже для лазеров средней мощности при интенсивностях пучков, обычно увеличенных на один или два порядка благодаря явлению самофокусировки, обсужденному в § 8. Такие значения усиления легко превышают обычные оптические потери, и, следовательно, интенсивность стоксова излучения может нарастать до больших значений в ячейке длиной в несколько сантиметров.

Отражение стоксовой волны от зеркал или других поверхностей, например от окон ячейки, при котором эта волна проходит пучок накачки более одного раза, приводит к усилению эффекта. Рассмотрим, например, ячейку длиной L , которая содержит в качестве рассеивающей среды бензол и на концах

¹⁾ Значение χ''_R получено из соотношения (7.93), найденного в гл. 7, § 6, п. 5, которое связывает χ''_R с сечением спонтанного рассеяния.

которой имеются зеркала, образующие оптический резонатор. При однократном прохождении через жидкость, как показывает уравнение (7.76), стоксов сигнал будет возрастать от начального значения $I_s(0)$ до величины, равной при малом усилении $I_s(0)e^{g_s L} \approx I_s(0)(1 + g_s L)$. Если предположим, что относительные потери, например за счет излучения через зеркала при однократном прохождении, равны δ , то пороговое условие нарастания вынужденного излучения можно найти, приравнявая усиление $g_s L$ и потери δ для однократного прохождения:

$$g_s L = \delta.$$

Это условие совместно с (7.75) приводит к следующему выражению для пороговой интенсивности:

$$(I_i)_n = \frac{\lambda_s n_s n_i \epsilon_0 c \delta}{4\pi \chi_R'' L}.$$

Для линии бензола 992 см^{-1} при ячейке длиной 10 см и потерях на одно прохождение 10% найдем, что пороговая интенсивность равна $(I_i)_n = 4 \text{ Вт/см}^2$.

Уравнение (7.76) можно выразить через среднее значение числа стоксовых фотонов в моде $\langle n_s \rangle$. При рассмотрении в гл. 6 квантования поля в виде бегущих волн моды были определены в объеме $V = L^3$, в котором применимы периодические граничные условия. Предположим, что размер L велик по сравнению с длиной волны и мал по сравнению с макроскопическими пространственными изменениями, учтенными в (7.76), т. е. мал по сравнению с расстоянием, на котором интенсивность существенно изменяется за счет паразития. В некоторой точке z число стоксовых фотонов в моде, содержащихся в малом объеме $V = L^3$, равно $\langle n_s \rangle$. Так как они распространяются со скоростью c/η_s , то за $L/(c/\eta_s)$ секунд через площадь L^2 проходит $\langle n_s \rangle$ фотонов, перенося энергию в $\hbar\omega_s \langle n_s \rangle \delta z$. Это означает, что интенсивность равна

$$I_s = \frac{\hbar\omega_s \langle n_s \rangle}{L/(c/\eta_s)} \frac{1}{L^2} = \frac{\hbar\omega_s c \langle n_s \rangle}{\eta_s V} \text{ Вт/м}^2. \quad (7.78)$$

Аналогичное рассмотрение применимо и для падающего пучка. Следовательно, (7.76) можно переписать через средние значения числа фотонов в моде. Тогда получим

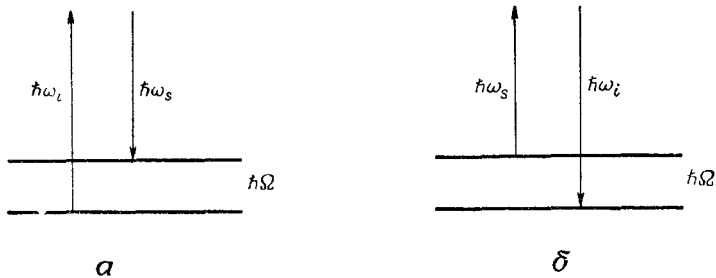
$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s \langle n_i \rangle \langle n_s \rangle, \quad (7.79)$$

где с помощью (7.75) для K_s имеем

$$K_s = \frac{8\pi^2 \hbar c \chi_R''}{\epsilon_0 \eta_i^2 \eta_s \lambda_i \lambda_s V}. \quad (7.80)$$

Важно отметить, что замена интенсивности числом фотонов с помощью подстановки (7.78) не изменяет того факта, что выражение (7.79) выведено полуклассическим методом, при котором поля не квантуются. Следовательно, (7.78) нужно рассматривать просто как замену переменных. К этому мы вернемся позже, при обобщении выражения (7.79) для случая квантованных полей.

Чтобы понять физический смысл выражения (7.79), вернемся к уравнению (7.65), которое является по существу основным. При более длинной форме записи в уравнении (7.65а) появляются коэффициенты, которые являются функциями среднего



Фиг. 7.27. Излучение и поглощение стоксовых фотонов.

а—преобразование фотонов с энергией $\hbar\omega_i$ в стоксовы фотоны с энергией $\hbar\omega_s$, сопровождаемое возбуждением колебательной моды (рождением фонона с энергией $\hbar\Omega$); *б*—преобразование стоксова фотона с энергией $\hbar\omega_s$ в фотон с энергией $\hbar\omega_i$, сопровождаемое девозбуждением моды (поглощением фонона).

значения числа фотонов в моде $\langle n_p \rangle$. Хотя вывод основывался на втором уравнении (7.65б), записанном в более короткой форме, на данном этапе можно воспользоваться первой формой записи (7.65а). Тогда (7.79) принимает вид

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s (\langle n_p \rangle + 1) \langle n_i \rangle \langle n_s \rangle - K_s \langle n_p \rangle \langle n_i \rangle \langle n_s \rangle. \quad (7.81)$$

Первый член в правой части положителен и, следовательно, соответствует росту числа стоксовых фотонов с расстоянием. Для сохранения энергии уничтожение падающего фотона и генерация стоксова фотона должны сопровождаться возбуждением колебаний, что может быть описано как излучение фонона (фиг. 7.27, *а*). Этот процесс и описывается первым членом уравнения (7.81). Как видно из гл. 6, излучение энергии в квантованную моду пропорционально $(\langle n \rangle + 1)$, где $\langle n \rangle$ — число квантов в моде. Это справедливо и для фононного случая, так как процессы, включающие генерацию фононов, пропорциональны $(\langle n_p \rangle + 1)$.

Второй член в правой части (7.81) соответствует уменьшению числа стоксовых фотонов, которое сопровождается уничтожением фононов и приводит к генерации фотона с частотой падающей волны. Поглощение акустических квантов пропорционально величине $\langle n_p \rangle$, которая является характеристикой поглощения энергии для квантованной моды. В результате общего действия этих двух процессов стоксова волна усиливается в соответствии с уравнением (7.79).

Как говорилось после вывода соотношения (7.80), полевые переменные $\langle n_i \rangle$ и $\langle n_s \rangle$, входящие в (7.81), являются результатом подстановки (7.78) в выражение (7.76), полученное полуклассическим методом. Другими словами, сами поля не являются квантованными, и, следовательно, выражение (7.78) представляет собой просто замену переменных. В гл. 6 показано, что при рассмотрении квантования поля результаты, относящиеся к поглощению и испусканию излучения, идентичны результатам, полученным на основе полуклассического метода, с одним исключением. В выражениях, описывающих процессы излучения и выведенных полуклассическим методом, число фотонов $\langle n \rangle$ в моде, имеющей частоту излучения, нужно заменить на $\langle n \rangle + 1$. Добавление единицы соответствует процессу спонтанной эмиссии. Рассмотрение проблемы квантования поля для различных процессов показывает, что такая операция применима в общем случае. Следовательно, чтобы учесть процессы спонтанной эмиссии, в (7.81) необходимо заменить $\langle n \rangle$ на $\langle n \rangle + 1$. Тогда уравнение (7.81) принимает вид

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s (\langle n_p \rangle + 1) \langle n_i \rangle (\langle n_s \rangle + 1) - K_s \langle n_p \rangle \langle n_s \rangle (\langle n_i \rangle + 1). \quad (7.82)$$

Уравнение (7.82) описывает процесс излучения для случая, когда поле, как и среда, квантовано. При этом предполагается, что упругая, падающая и рассеянная волны являются одно-модовыми.

5. Спонтанное рамановское рассеяние

Рассмотрим теперь спонтанное стоксово излучение, при котором падающий фотон рассеивается на колебательной моде и стоксов фотон излучается спонтанно. Измерение спонтанного рассеяния дает информацию, из которой можно определить рамановскую восприимчивость χ_R и коэффициент усиления g_s .

Если принять, что $\langle n_p \rangle$, $\langle n_s \rangle \ll 1$ и $\langle n_i \rangle \gg 1$, то (7.82) упрощается к виду

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s \langle n_i \rangle.$$

Отсюда видно, что для процесса спонтанного стоксова излучения не требуется участия стоксовых фотонов, как это было необходимо при вынужденном излучении, которое описывается уравнением (7.79). Решая написанное выше уравнение, находим, что число стоксовых фотонов в моде, приходящихся на объем V и вызванных только спонтанным излучением, увеличивается с расстоянием l по закону

$$\langle n_s \rangle = K_s \langle n_i \rangle l.$$

Следовательно, число спонтанно генерируемых фотонов пропорционально интенсивности лазерного излучения и длине рассеивающего материала.

Коэффициент K_s , определяемый выражением (7.80), и коэффициент усиления g_s , который дается формулой (7.75), можно определить, если известно χ_R'' . Этот параметр, в свою очередь, можно найти из измерения сечения спонтанного рамановского рассеяния σ_c . Связь между χ_R'' и σ_c определим следующим образом.

Прежде всего вернемся к § 6, п. 3 настоящей главы и определим поляризацию на частоте падающего излучения, а не рассеянного. Она будет определяться выражением

$$\tilde{P}_i = \epsilon_0 \chi_R^* |\tilde{E}_s|^2 \tilde{E}_i.$$

Проделав тот же вывод (который просто означает, что индекс s заменен на i , и наоборот, а χ_R на χ_R^*), найдем, что (7.79) и (7.81) заменяются уравнением

$$\frac{\partial \langle n_i \rangle}{\partial z} = -K_i \langle n_s \rangle \langle n_i \rangle = -K_i (\langle n_p \rangle + 1) \langle n_s \rangle \langle n_i \rangle + K_i \langle n_p \rangle \langle n_s \rangle \langle n_i \rangle, \quad (7.83)$$

где

$$K_i = \frac{8\pi^2 \hbar c \chi_R''}{\epsilon_0 \eta_s^2 \eta_i \lambda_s \lambda_i V}. \quad (7.84)$$

Чтобы учесть эффекты спонтанного излучения, которые можно было бы предсказать при полностью квантовом подходе, опять заменим в выражениях для излучения $\langle n \rangle$ на $\langle n \rangle + 1$. Тогда (7.83) принимает вид

$$\frac{\partial \langle n_i \rangle}{\partial z} = -K_i (\langle n_p \rangle + 1) (\langle n_s \rangle + 1) \langle n_i \rangle + K_i \langle n_p \rangle \langle n_s \rangle (\langle n_i \rangle + 1). \quad (7.85)$$

При генерации спонтанного стоксова излучения, когда $\langle n_p \rangle$, $\langle n_s \rangle \ll 1$ и $\langle n_i \rangle \gg 1$, число фотонов в падающем пучке умень-

шается по закону

$$\frac{\partial \langle n_i \rangle}{\partial z} = -K_i \langle n_i \rangle$$

или

$$\langle n_i \rangle = \langle n_i \rangle_{z=0} e^{-K_i z}. \quad (7.86)$$

Для одномодового случая определим сечение рамановского рассеяния σ_1 для одного рассеивающего центра, если запишем (7.86) в виде

$$\langle n_i \rangle(z) = \langle n_i \rangle(0) e^{-N_V \sigma_1 z}, \quad (7.87)$$

где N_V — число рассеивающих центров в единице объема. Как можно показать, это определение согласуется с представлением о том, что каждый рассеивающий центр имеет эффективную площадь σ_1 , поскольку принимается во внимание его способность удалять падающие фотоны, связанная с рассеянием вперед (см. задачу 3.1). Подобное определение уже встречалось при рассмотрении в гл. 3 сечения поглощения для резонансного перехода. Из уравнений (7.84), (7.86) и (7.87) получим соотношение

$$\sigma_1 = \frac{8\pi^2 \hbar c \chi_R''}{\epsilon_0 \eta_s^2 \eta_i \lambda_s \lambda_i V N_V}, \quad (7.88)$$

которое имеет размерность площади. Это выражение для σ_1 получено для коллинеарного рассеяния вперед в одномодовом случае.

До сих пор рассматривалось спонтанное излучение на стоксовой частоте в одной моде. Это привело к соотношению между σ_1 и χ_R'' . Однако обычно измеряется полное сечение σ_c , которое учитывает спонтанное излучение во всех возможных модах. Следовательно, аналогично случаю однофотонного излучения (гл. 6, § 4, п. 3 и 4) для описания полного процесса спонтанного излучения нужно просуммировать по всем модам, в которых может происходить спонтанное излучение. Из (7.88) видно, что сечение, которое характеризует уменьшение числа падающих фотонов в результате спонтанного излучения в одной моде, пропорционально величине χ_R'' , имеющей лоренцеву форму линии. Следовательно, полное сечение рамановского спонтанного рассеяния во всех модах найдем, суммируя по тем модам, которые лежат в пределах профиля лоренцевой линии.

В гл. 6 было выведено выражение (6.65) для плотности мод, т. е. числа мод (бегущих волн), приходящихся на единицу

телесного угла, и на единицу объема для частотного интервала $d\omega$ для одной поляризации¹⁾:

$$\frac{dp(\omega_s)}{d\xi} d\omega_s = \frac{\omega_s^3 \eta_s^3}{(2\pi c)^3} d\omega_s, \quad (7.89)$$

где $dp(\omega_s)/d\xi$ — число мод в единице телесного угла, единице объема и единице частотного интервала, а $d\xi$ — дифференциал телесного угла. Следовательно, сечение спонтанного рамановского рассеяния, приходящееся на единицу телесного угла, $d\sigma_c/d\xi$ для рассеяния во всех модах внутри малого телесного угла можно найти, комбинируя выражение (7.88) с написанным выше выражением для плотности мод и интегрируя по всем частотам:

$$\frac{d\sigma_c}{d\xi} = \int \sigma_1 \frac{dp}{d\xi} d\omega_s = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma_1 \frac{V}{(2\pi^3)} \frac{\omega_s^3 \eta_s^3}{c^3} d\omega_s, \quad (7.90)$$

где $d\sigma_c/d\xi$ и σ_1 являются функциями угла между падающим и рассеянным пучками. Полное сечение рассеяния найдем, интегрируя по всем телесным углам:

$$\sigma_c = \int_0^{4\pi} \frac{d\sigma_c}{d\xi} d\xi = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} d\theta \frac{d\sigma_c}{d\xi} \sin \theta. \quad (7.91)$$

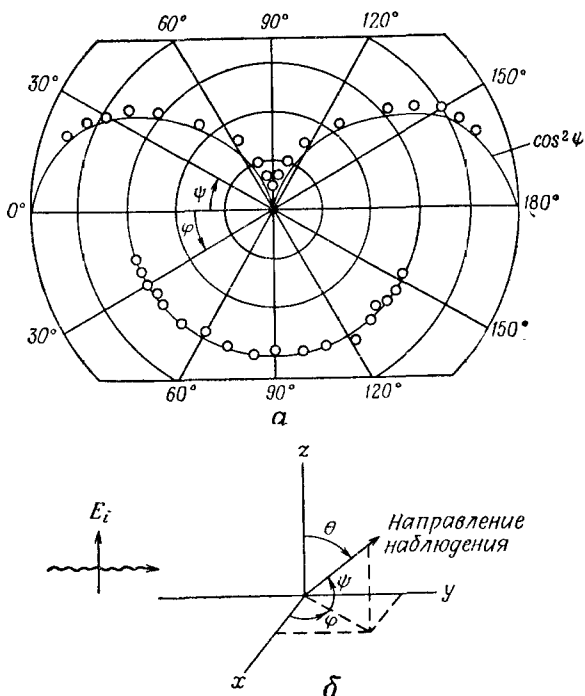
В качестве примера рассмотрим линию 992 см^{-1} жидкого бензола (C_6H_6). Жидкий бензол является изотропным веществом. Для изотропной рассеивающей среды угловая зависимость $d\sigma_c/d\xi$ имеет такой же вид, как и для обычного дипольного излучения. А именно справедливы следующие два условия: а) когда плоскость наблюдения перпендикулярна вектору электрического поля падающей волны, интенсивность рассеянной волны (а следовательно, и сечение рассеяния) не зависит от угла наблюдения φ , как показано на фиг. 7.28; б) когда плоскость наблюдения параллельна вектору электрического поля падающей волны, интенсивность изменяется по закону $\cos^2\varphi$, где φ — угол между направлениями распространения падающей и рассеянной волн, что также показано на фиг. 7.28.

¹⁾ Рамановские линии обычно сильно поляризованы, если возбуждаются поляризованным источником. Следовательно, в расчетах надо учитывать только одну поляризацию [23]. Плотность мод, определенная (7.89), равна половине величины, получающейся из выражения (6.74) для двух поляризаций.

Из приведенного выше обсуждения следует, что в этом случае (7.91) сводится к

$$\begin{aligned} \sigma_c &= 2\pi \left(\frac{d\sigma_c}{d\xi} \right)_{\text{макс}} \int_0^\pi d\theta \cos^2 \psi \sin \theta = \\ &= 2\pi \left(\frac{d\sigma_c}{d\xi} \right)_{\text{макс}} \int_0^\pi d\theta \sin^3 \theta = \frac{2}{3} 4\pi \left(\frac{d\sigma_c}{d\xi} \right)_{\text{макс}}, \quad (7.92) \end{aligned}$$

где $(d\sigma_c/d\xi)_{\text{макс}}$ — максимальное значение $(d\sigma_c/d\xi)$, которое имеет место при $\psi = 0$.



Фиг. 7.28. Угловая зависимость интенсивности рамановского рассеяния для линии 992 см^{-1} бензола [28].

α — кривая в верхней полушарности получена для случая, когда плоскость наблюдения параллельна вектору электрического поля падающей волны; нижняя кривая получена для перпендикулярных направлений; δ — геометрическое построение, показывающее направление наблюдения рассеянной волны. Падающая волна поляризована в направлении оси z и распространяется в y -направлении.

Величина $(d\sigma_c/d\xi)_{\text{макс}}$ находится из выражения (7.90) после подстановки в него максимального значения сечения σ_1 из (7.88), вычисленного для рассеяния вперед. Если форма линии

является лоренцевой, то из (3.22) имеем

$$\chi_R'' = [\chi_R''(\omega_v = \Omega)] \pi(\Delta\omega_L) \frac{g_L(\omega, \Omega)}{2},$$

где

$$\int_{-\infty}^{\infty} g_L(\omega, \Omega) d\omega = 1.$$

Полное сечение, найденное из (7.88), (7.90) и (7.92), равно

$$\sigma_c = \frac{16\pi^3 h (\Delta\omega_L) \eta_s [\chi_R''(\omega_v = \Omega)]}{3e_0 \eta_i \lambda_i \lambda_s^3 N_V}. \quad (7.93)$$

Измеренное с помощью гелий-неонового лазера ($\lambda_i = 6328 \text{ \AA}$), взятого в качестве источника, значение σ_c для линии бензола 992 см^{-1} равно $\sigma_c = 5,6 \cdot 10^{-29} \text{ см}^2$ [28]. Используя это значение, находим, что при $N_V = 6,78 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$, $\Delta\omega_L =$ ширина линии $= 2,5 \text{ см}^{-1}$ и $\lambda_s = 6750 \text{ \AA}$, величина $\chi_R''(\omega_v = \Omega)$ равна $8 \cdot 10^{-21}$ ед. МКС.

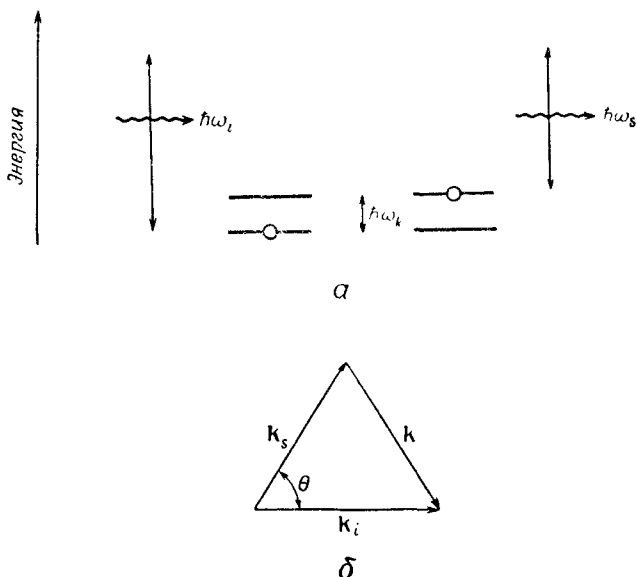
§ 7. ЭФФЕКТ БРИЛЛЮЭНА

Бриллюэновское рассеяние является процессом нелинейного рассеяния, при котором свет рассеивается на акустической колебательной моде, приобретая сдвиг по частоте, соответствующий частоте этой моды. Эффект возникает за счет модуляции показателя преломления среды при распространении в ней звуковой волны. Законы сохранения энергии (частоты) и импульса (волнового вектора) показаны на фиг. 7.29.

Интенсивность рассеянного света, имеющего смещенную частоту ω_s , обычно на много порядков меньше интенсивности падающего пучка. Однако при достаточно большой интенсивности падающего света может иметь место вынужденное бриллюэновское рассеяние и, следовательно, интенсивность рассеянного пучка может приближаться к интенсивности падающего. Замечания, сделанные в § 6 настоящей главы и противопоставляющие спонтанное и вынужденное рамановское рассеяние, применимы и к эффекту Бриллюэна. Вынужденный эффект Бриллюэна получен в твердых телах, жидкостях и газах. В дальнейшем будет рассматриваться одноатомный кристалл, однако этот метод легко распространить на непрерывную среду.

Эффект Бриллюэна аналогичен эффекту Рамана, только роль оптических колебаний играют акустические колебания. В результате такого различия частотные сдвиги значительно меньше и имеют порядок не нескольких сотен ангстрем, а нескольких гигагерц. Кроме того, частотный сдвиг не является

постоянной величиной, как при рамановском рассеянии, а зависит от угла между падающим и рассеянным пучками, причем этот сдвиг максимален при рассеянии света назад. Причина состоит в том, что частота акустической волны, участвующей во взаимодействии, зависит от значения k , как это видно из представленных на фиг. 7.10 и 7.15 дисперсионных характеристик. Значение k в свою очередь зависит от углов, которые определяются из условия сохранения волнового вектора.



Фиг. 7.29. Сохранение энергии (частоты) и импульса (волнового вектора) для бриллюэновского рассеяния.

а — фотоны падающего пучка преобразуются в рассеянные фотоны со сдвигом частоты, приводя к изменению состояния среды, в которой рождается фотон с энергией $\hbar\omega_k$; длины вертикальных стрелок пропорциональны энергиям фотона и фонона; б — сохранение волнового вектора: $k_i = k_s + k$.

Из выражения (7.3) для дисперсионной характеристики одноатомного кристалла для продольной акустической волны при $ka \ll \pi$ имеем

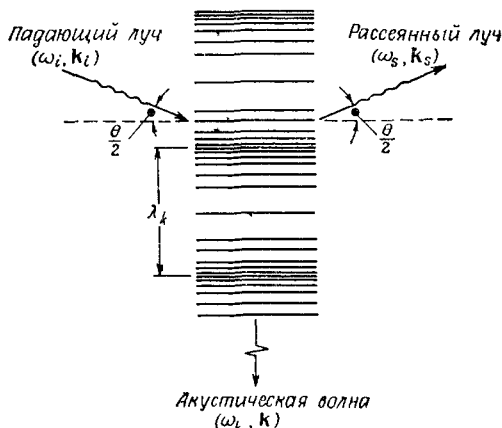
$$\omega_k = 2 \left(\frac{C_L}{M} \right)^{1/2} \left| \sin \frac{ka}{2} \right| \approx \left(\frac{C_L}{M} \right)^{1/2} ka \equiv v_a k, \quad (7.94)$$

где k — волновой вектор акустической волны, а v_a — скорость звука в кристалле. Условие $ka \ll \pi$ выполняется вследствие закона сохранения волновых векторов, как показано на фиг. 7.29, б, поскольку для световых волн $|k_s a|, |k_i a| \ll \pi$. При $\omega_k = \omega_i - \omega_s$

угловую зависимость частотного смещения найдем, подставляя в (7.94) значение k , определенное из геометрического построения фиг. 7.29. Так как $k_i = \omega_i \eta_i / c$ и $k_s \approx k_i$, то

$$\omega_i - \omega_s = \frac{2\omega_i \eta_i v a}{c} \sin \frac{\theta}{2}, \quad (7.95)$$

где θ — угол между падающим и рассеянным световыми пучками. Как упоминалось выше, максимальный частотный сдвиг имеет место при рассеянии назад, т. е. при $\theta = \pi$. Угловую зависимость частотного сдвига можно определить графически из дисперсионных векторных диаграмм, показанных на фиг. 7.15.



Фиг. 7.30. Бриллюэновское рассеяние, рассматриваемое как дифракция на движущейся решетке, создаваемой звуковой волной.

При другом выводе соотношения (7.95), который имеет особое значение с точки зрения физики, можно рассматривать рассеяние света на движущейся дифракционной решетке, образованной звуковой волной, как показано на фиг. 7.30. Условие брэгговского отражения первого порядка¹⁾ определяется соотношением

$$2\lambda_h \sin \frac{\theta}{2} = \lambda_i,$$

где λ_i — длина волны в среде для падающего пучка, а λ_h — длина акустической волны или постоянная решетки. Так как свет отражается от движущегося объекта, то за счет эффекта

¹⁾ Условие брэгговского отражения от последовательности плоскостей означает, что отраженные от смежных плоскостей лучи складываются. Условие брэгговского отражения n -го порядка соответствует тому, что разность хода между интерферирующими волнами составляет n длин волн.

Допплера частота смещается в соответствии с выраженным

$$\frac{\omega_s}{\omega_i} = 1 - \frac{2v_a}{c/\eta_i} \sin \frac{\theta}{2},$$

которое совпадает с (7.95).

1. Гамильтониан

Анализ эффекта Бриллюэна аналогичен анализу эффекта Рамана, данному в предыдущем параграфе, только в этом случае флуктуации поляризуемости или показателя преломления обусловлены не оптическими, а акустическими колебаниями. Акустические волны могут быть либо поперечными, либо продольными. Рассмотрим случай, когда падающая и рассеянные волны поперечны и поляризованы в одном направлении, а акустическая волна продольна. Средой является одноатомный кристалл, рассмотренный в § 2, п. 1 и в § 3, п. 1 настоящей главы.

Как указывалось выше, основные положения используемого метода и многие выражения, выведенные в этом параграфе для эффекта Бриллюэна, очень близки к полученным для эффекта Рамана. Поэтому вначале обсудим основные различия. В эффекте Рамана имеет место рассеяние на оптической моде, т. е. на колебаниях отдельной молекулы или элементарной ячейки, которое не зависит существенно от колебаний близлежащих соседей. Это подтверждается тем фактом, что дисперсионная характеристика для оптической моды является горизонтальной в интересующей нас области и в этом случае групповая скорость $v_g = d\omega/dk$ равна нулю. Это означает, что энергия не распространяется вследствие отсутствия связи между соседями. В результате анализ эффекта Рамана можно проводить с помощью переменных Q , a^+ и a , связанных с колебаниями отдельной молекулы или элементарной ячейки, так как каждая молекула или элементарная ячейка колеблется независимо от соседей.

С другой стороны, в случае эффекта Бриллюэна, в котором участвуют не оптические, а акустические моды, необходимо рассматривать взаимодействие между соседями. Акустическая мода является по существу коллективным явлением, в котором участвуют сильно связанные соседи. Групповая скорость $v_g = d\omega/dk$ для акустической моды конечна, что указывает на возможность распространения энергии акустической волны за счет межмолекулярной связи. Поэтому при анализе эффекта Бриллюэна в кристалле появляются суммы по узлам решетки, и переменные акустической моды q , a_q^+ и a_q определяются через множество точек решетки.

Электронная поляризуемость α_m в m -м узле решетки, обусловленная распространением акустической волны

$$q_m = \frac{1}{2} \tilde{q} e^{i(\omega_k t - kma)} + \text{компл. сопр.},$$

в первом приближении изменяется следующим образом:

$$\alpha_m = \alpha_m^0 + \sum_l \left(\frac{\partial \alpha_m}{\partial (q_{l+1} - q_l)} \right)_0 (q_{l+1} - q_l), \quad (7.96)$$

где q_m — смещение атома из положения равновесия в m -м узле решетки. Индекс 0 у производной указывает на то, что она определяется в положении равновесия решетки. Изменение поляризуемости выражено в виде функции относительных смещений соседних атомов, и предполагается, что на поляризуемость в m -м узле решетки до некоторой степени влияют относительные смещения всех атомов решетки. Так как индуцированный дипольный момент определяется произведением поляризуемости и электрического поля, то часть дипольного момента в m -м узле, которая связана с изменением поляризуемости, дается выражением

$$\mu_m = \alpha'_m E_m,$$

где

$$\alpha'_m = \sum_l \left(\frac{\partial \alpha_m}{\partial (q_{l+1} - q_l)} \right)_0 (q_{l+1} - q_l). \quad (7.97)$$

Поляризуемость в m -м узле, определяемая соотношением (7.97), выражена в виде суммы вкладов, которые вызваны относительными смещениями атомов в узлах, обозначенных индексом l . В приложении 9 показано, что соотношение (7.97) можно переписать в виде

$$\alpha'_m = C_b (q_{m+1} - q_m), \quad (7.98)$$

где

$$C_b = \sum_l \left(\frac{\partial \alpha_0}{\partial (q_{l+1} - q_l)} \right)_0 e^{-ikla}.$$

Таким образом, поляризуемость в m -м узле решетки можно выразить только через относительное смещение атома в этом узле. Полученный результат значительно упрощает анализ.

Энергия взаимодействия для m -го узла при наличии электрического поля имеет вид (7.59) и характеризует потенциальную энергию, запасенную в поляризуемой среде:

$$\mathcal{H}'_m = -\frac{1}{2} \alpha'_m E_m^2 = -\frac{1}{2} C_b (q_{m+1} - q_m) E_m^2. \quad (7.99)$$

2. Квантовомеханическое описание

В этом разделе будут выведены уравнения движения, которые описывают эффект Бриллюэна. Как и при анализе эффекта Рамана, задача излагается полуклассическим методом, т. е. поля описываются классически, тогда как среда, в данном случае система акустических мод, описывается квантовомеханически. Как подробно показано в § 6, п. 2, в связи с эффектом Рамана полуклассическое рассмотрение полей пригодно только для описания *вынужденного* эффекта Бриллюэна; спонтанный эффект учитывается путем введения «экстра-фотонов», как рассмотрено в § 6, п. 2, настоящей главы.

При распространении акустической моды с волновым числом k в одноатомном кристалле невозмущенная часть гамильтониана дается выражением (7.25)

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_k \left(a_k^\dagger a_k + \frac{1}{2} \right), \quad (7.100)$$

где ω_k — частота акустической моды, зависящая от волнового числа k .

Исходя из (7.99), для данной задачи член взаимодействия записываем в виде

$$\mathcal{H}' = -\frac{1}{2} C_b \sum_{l=1}^{N^3} (q_{l+1} - q_l) E_l^2, \quad (7.101)$$

где оператор q_l , соответствующий акустической моде, определяется выражением (7.18):

$$q_l = \left(\frac{\hbar}{2N^3 M \omega_k} \right)^{1/2} [a_k e^{ikla} + a_k^\dagger e^{-ikla}]. \quad (7.102)$$

Сумма по всем N^3 значениям индекса l в выражении (7.101) охватывает все точки решетки внутри объема, в котором определены периодические граничные условия, рассмотренные в § 3, п. 1.

Уравнение движения для среднего значения амплитуды $\langle q_m \rangle$ акустических колебаний в данном m -м узле решетки найдем, используя уравнение (1.51):

$$\langle \ddot{q}_m \rangle + \frac{2}{T_2} \langle \dot{q}_m \rangle + \frac{1}{T_2^2} \langle q_m \rangle = -\frac{1}{\hbar^2} \langle [[q_m, \mathcal{H}], \mathcal{H}'] \rangle. \quad (7.103)$$

Вычисление с помощью выражений (7.100) и (7.102) внутреннего коммутатора, входящего в уравнение (7.103), дает

$$\begin{aligned} [q_m, \mathcal{H}] &= [q_m, \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}'] = [q_m, \mathcal{H}_0] + [q_m, \mathcal{H}'] = \\ &= [q_m, \mathcal{H}_0] = \hbar\omega_k \left(\frac{\hbar}{2N^3 M \omega_k} \right)^{1/2} (a_k e^{ikma} - a_k^\dagger e^{-ikma}), \end{aligned}$$

так как \mathcal{H}' коммутирует с q_m . Аналогичное вычисление внешнего коммутатора приводит к выражению

$$\begin{aligned} [[q_m, \mathcal{H}'], \mathcal{H}] &= \hbar^2 \omega_k^2 q_m - \frac{C_b \hbar^2}{4 \mathcal{N}^2 M} \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} \{ E_l^2 [(e^{-ika} - 1) e^{ik(m-l)a} + \\ &\quad + (e^{ika} - 1) e^{-ik(m-l)a}] (a_k a_k^+ - a_k^+ a_k) \} = \\ &= \hbar^2 \omega_k^2 q_m - \frac{C_b \hbar^2}{4 \mathcal{N}^2 M} \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} \{ E_l^2 [(e^{-ika} - 1) e^{ik(m-l)a} + (e^{ika} - 1) e^{-ik(m-l)a}] \}. \end{aligned}$$

Для удобства физического описания, которое будет рассмотрено ниже в этом разделе, иногда будем предпочитать форму записи, содержащую оператор $(a_k a_k^+ - a_k^+ a_k)$, который в написанном выше уравнении можно опустить, учитывая коммутационное соотношение $[a_k, a_k^+] = 1$.

При подстановке полученных выше выражений уравнение движения (7.103) принимает вид

$$\begin{aligned} \langle \ddot{q}_m \rangle + \Delta \omega_L \langle \dot{q}_m \rangle + \omega_k^2 \langle q_m \rangle &= \\ &= \frac{C_b}{4 \mathcal{N}^2 M} \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} \{ E_l^2 [(e^{-ika} - 1) e^{ik(m-l)a} + (e^{ika} - 1) e^{-ik(m-l)a}] \} (\langle n_k \rangle + 1) - \\ &- \frac{C_b}{4 \mathcal{N}^2 M} \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} \{ E_l^2 [(e^{-ika} - 1) e^{ik(m-l)a} + (e^{ika} - 1) e^{-ik(m-l)a}] \} \langle n_k \rangle, \end{aligned} \quad (7.104a)$$

$$\begin{aligned} \langle \ddot{q}_m \rangle + \Delta \omega_L \langle \dot{q}_m \rangle + \omega_k^2 \langle q_m \rangle &= \\ &= \frac{C_b}{4 \mathcal{N}^2 M} \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} \{ E_l^2 [(e^{-ika} - 1) e^{ik(m-l)a} + (e^{ika} - 1) e^{-ik(m-l)a}] \}, \end{aligned} \quad (7.104b)$$

где $\Delta \omega_L = 2/T_2$ и принято, что $\omega_k^2 \gg 1/T_2^2$. Коэффициенты, которые появляются при более длинной записи уравнения (7.104a), являются функциями среднего значения числа фононов в k -й моде $\langle n_k \rangle = \langle a_k^+ a_k \rangle$. Более длинная форма записи является более удобной для описания имеющих место физических процессов, в то время как короткая форма уравнения (7.104b) более подходит для математических вычислений.

Если в единице объема содержится N_V элементарных ячеек, то с помощью (7.98) нелинейную поляризацию в m -м узле решетки можно записать в виде

$$\begin{aligned} P_m &= \frac{\langle \mu_m \rangle}{\text{объем элементарной ячейки}} = N_V \langle \mu_m \rangle = \\ &= N_V \langle a'_m \rangle E_m = N_V C_b (\langle q_{m+1} \rangle - \langle q_m \rangle) E_m. \end{aligned} \quad (7.105)$$

Уравнения (7.104) и (7.105) описывают поведение среды при наличии поля. Добавим к ним волновое уравнение (2.50) для распространения поля в случае, когда потерями можно пренебречь:

$$\nabla \times (\nabla \times E) + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}. \quad (7.106)$$

Как обсуждалось в предыдущем разделе в связи с эффектом Рамана, поправочные множители для локального поля, которое нужно включить в уравнения (7.104) и (7.105), чтобы они были совместны с уравнением для макроскопического поля (7.106), можно учесть в S_b . Следовательно, уравнения (7.104)—(7.106) можно использовать в том виде, в каком они записаны, и получить самосогласованное приближение для задачи бриллюэновского рассеяния. Акустическая мода, описываемая уравнением (7.104), ведет себя как гармонический осциллятор с частотой ω_k , который возбуждается вблизи резонанса за счет произведения падающего и рассеянного стоксова полей, частоты которых различаются на частоту акустической моды. Стоксова поляризация, которая требуется в (7.106) для генерации стоксова поля, в свою очередь возникает при смешении акустической моды и падающего поля, как указано в уравнении (7.105).

Уравнения (7.104)—(7.106) для эффекта Бриллюэна по существу аналогичны по виду уравнениям (7.65)—(7.67) для эффекта Рамана. Главное различие состоит в том, что в возбуждающем члене уравнения колебаний (7.104) для эффекта Бриллюэна появилась сумма по всем точкам решетки, тогда как в уравнении колебаний (7.65) для эффекта Рамана имеется единственный член. Однако, как будет показано при решении, сумма сводится к единственному члену и в результате оказывается, что решения основных уравнений для эффектов Рамана и Бриллюэна идентичны.

Решения уравнений (7.104)—(7.106) найдем, предполагая, что они имеют вид

$$\begin{aligned} \langle q_m \rangle &= \frac{\tilde{q}}{2} e^{i(\omega_v t - k m a)} + \text{компл. сопр.}, \\ E_m &= \frac{\tilde{E}_i}{2} e^{i(\omega_i t - k_i \cdot r_m)} + \frac{\tilde{E}_s}{2} e^{i(\omega_s t - k_s \cdot r_m)} + \text{компл. сопр.}, \\ P_m &= \frac{\tilde{P}_s}{2} e^{i(\omega_s t - k_s \cdot r_m)} + \text{компл. сопр.}, \end{aligned} \quad (7.107)$$

где индексы v , i и s обозначают соответственно акустическую, падающую и рассеянную стоксову волны; m относится к узлу решетки и r_m — расстояние от фиксированного начала координат до m -го узла решетки. Волновые векторы могут быть

комплексными, что позволяет учитывать процесс нарастания, но величина k_i принимается вещественной, т. е. мы пренебрегаем ослаблением падающего пучка. Предполагается также, что выполняется условие $\omega_s = \omega_i - \omega_v$, которое определяет сохранение энергии, как рассмотрено в § 4, п. 2.

Для решения (7.104) нужно после подстановки (7.107) вычислить сумму, стоящую в правой части. Она принимает вид

$$\begin{aligned} S &= \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} \left\{ [(e^{-ika} - 1) e^{ik(m-l)a} + (e^{-ika} - 1) e^{-ik(m-l)a}] e^{-i(k_i - k_s^*) \cdot r_l} \right\} = \\ &= (e^{-ika} - 1) e^{ikma} \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} e^{-ikla} e^{-i(k_i - k_s^*) \cdot r_l} + \\ &\quad + (e^{ika} - 1) e^{-ikma} \sum_{l=1}^{\mathcal{N}} e^{ikla} e^{-i(k_i - k_s^*) \cdot r_l}. \end{aligned}$$

Используя правило суммирования для решетки (7.14),

$$\sum_{l=1}^{\mathcal{N}} e^{i(k-k')la} = \mathcal{N} \delta_{kk'}$$

упростим написанную выше сумму:

$$S = \mathcal{N} (e^{ika} - 1) e^{-ikma} \quad \text{для} \quad (\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s^*) \cdot \mathbf{r}_l = kla,$$

$$S = 0 \quad \text{в остальных случаях.}$$

Так как \mathbf{k} является волновым вектором акустической волны, то видно, что S отличается от нуля только тогда, когда выполняется условие сохранения волнового вектора.

Из решения уравнений (7.104)—(7.106), которое получается, если приравнять коэффициенты при экспонентах одинаковой частоты, найдем, что поляризация и поле на стоксовой частоте даются выражениями, по форме аналогичными выражениям, полученным для эффекта Рамана:

$$\begin{aligned} \tilde{P}_s &= \epsilon_0 \chi_B(\omega_v) |\tilde{E}_i|^2 \tilde{E}_s, \\ \left(k_s^2 - \frac{\eta_s^2 \omega_s^2}{c^2} \right) \tilde{E}_s &= \mu_0 \omega_s^2 \epsilon_0 \chi_B(\omega_v) |\tilde{E}_i|^2 \tilde{E}_s. \end{aligned}$$

Здесь бриллюэновская восприимчивость χ_B определяется выражением

$$\chi_B(\omega_v) = \frac{N_V C_b^2}{\epsilon_0 8M} \frac{k^2 a^2}{\omega_k^2 - \omega_v^2 - i(\lambda \omega_L) \omega_v}. \quad (7.108)$$

При выводе написанного выше соотношения полагалось $\sin^2(ka/2) \approx k^2 a^2/4$, что справедливо для волновых векторов, участвующих в бриллюэновском рассеянии, так как ka мало. По-

скольку $\chi_B(\omega_e)$ связывает поляризацию с произведением трех полей, то бриллюэновская восприимчивость для общего трехмерного случая является тензором четвертого ранга, описывающим свойства рассеивающей среды.

Бриллюэновскую восприимчивость можно выразить через измеряемые параметры, связанные с явлением фотоупругости. При фотоупругом эффекте изменение показателя преломления за счет напряжения выражается формулой [29]

$$\Delta B_{ij} = \rho_{ijrs} \times (\text{напряжение})_{rs}, \quad (7.109)$$

где ρ_{ijrs} — фотоупругие коэффициенты, B_{ij} — тензор относительной диэлектрической непроницаемости на оптических частотах, определяемый соотношением $B_{ij} = \epsilon_0 \partial E_i / \partial D_j$. В рассматриваемом случае электрические поля падающей и рассеянной волн являются поперечными по отношению к направлению распространения и поляризованы в одном направлении, а акустическая волна продольна. Позже в этом разделе будет рассмотрен конкретный пример возбуждения продольной акустической волны вдоль оси x кварца. При этом будет предполагаться, что падающая и рассеянная волны поляризованы вдоль оси y и распространяются вдоль оси x . Следовательно, при дальнейшем обсуждении можно рассматривать только соответствующий коэффициент ρ_{yyxx} .

Поэтому имеем

$$\begin{aligned} \rho_{yyxx} \times (\text{напряжение})_{xx} &= \Delta B_{yy} = \Delta \left(\frac{\epsilon_0}{\epsilon_{yy}} \right) = \\ &= \Delta \left(\frac{1}{\chi_{yy}} \right) = - \frac{\Delta \chi_{yy}}{\chi_{yy}^2}, \end{aligned} \quad (7.110)$$

где использован тот факт, что если поле направлено вдоль главной оси, то $D_i = \epsilon_{ii} E_i$ и $B_{ii} = \epsilon_0 / \epsilon_{ii}$. Имеем также общее соотношение

$$D_y = \epsilon_{yy} E_y + P_y = (\epsilon_{yy} + \Delta \epsilon_{yy}) E_y,$$

из которого получим

$$P_y = \Delta \epsilon_{yy} E_y = \epsilon_0 \Delta \chi_{yy} E_y.$$

Так как P_y определяется (7.105), то найдем, что величина $\Delta \chi_{yy}$, входящая в написанное выше выражение, равна

$$\Delta \chi_{yy} = \frac{N_V C_b a}{\epsilon_0} \frac{\langle q_{m+1} \rangle - \langle q_m \rangle}{a} = \frac{N_V C_b a}{\epsilon_0} \times (\text{напряжение})_{xx}.$$

Следовательно, из (7.110) и приведенного выше выражения получаем соотношение

$$C_b = - \frac{\chi_{yy}^2 p_{yuyx} \varepsilon_0}{N_V a}.$$

Подстановка этого соотношения в (7.108) дает

$$\chi_B = \frac{\chi_{yy}^4 \varepsilon_0}{8\rho_m} \frac{k^2 p_{yuyx}^2}{\omega_i^2 - \omega_o^2 - i(\Delta\omega_L)\omega_o}, \quad (7.111)$$

где $\rho_m = N_V M$ — плотность, χ_{yy} — относительная диэлектрическая проницаемость, k — величина волнового вектора акустической волны и p_{yuyx} — соответствующий фотоупругий коэффициент.

Используя метод, примененный в § 6, п. 4 для анализа эффекта Рамана, найдем, что интенсивность стоксовой волны удовлетворяет уравнению нарастания

$$\frac{\partial I_s}{\partial z} = g_s I_s, \quad (7.112)$$

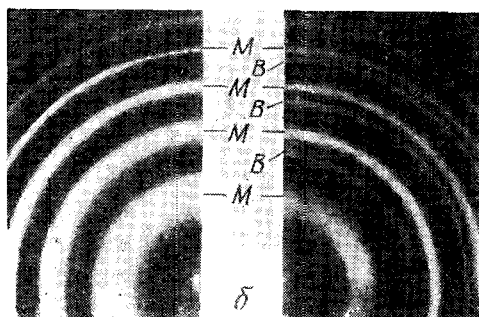
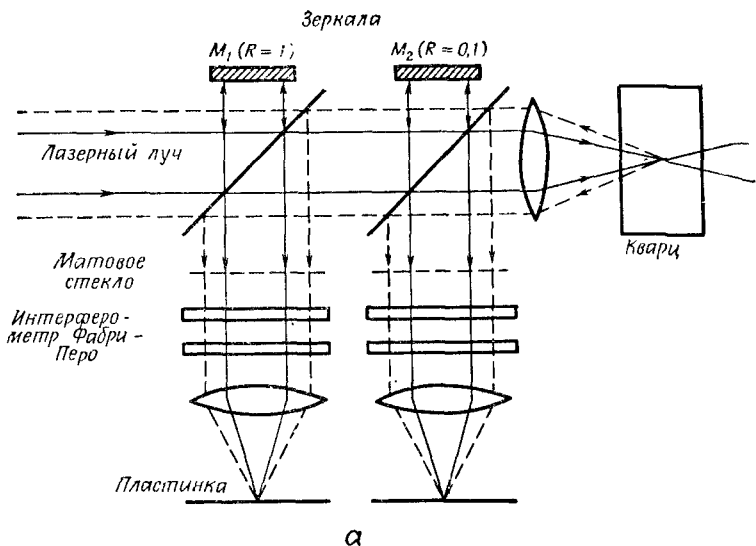
где коэффициент усиления по мощности определяется выражением

$$g_s = \frac{2\pi\chi_B'' |\tilde{E}_i|^2}{\lambda_s \eta_s} = \frac{4\pi\chi_B'' I_i}{\lambda_s \eta_s \eta_i \varepsilon_0 c}. \quad (7.113)$$

В этом выражении χ_B'' — мнимая часть бриллюэновской восприимчивости $\chi_B = \chi_B' + i\chi_B''$; λ_s — длина волны стоксова излучения в вакууме и $I_i = \eta_i \varepsilon_0 c |\tilde{E}_i|^2 / 2$ — интенсивность падающей волны.

Так как нарастание интенсивности стоксовой волны определяется самой стоксовой интенсивностью, то описанный эффект является индуцированным и называется вынужденным эффектом Бриллюэна.

Одним из первых материалов, в котором наблюдалось [30] вынужденное бриллюэновское рассеяние, был α -кварц, являющийся одноосным тригональным кристаллом, принадлежащим к точечной группе 32. Схема экспериментальной установки и полученные результаты представлены на фиг. 7.31. В качестве падающего пучка использовалось излучение импульсного рубинового лазера с модулированной добротностью, имеющего мощность 50 Мвт и длительность импульса 30 нсек. Один из экспериментов состоит в том, что падающая волна, распространяющаяся вдоль оси x кристалла как обыкновенная волна (т. е. волна, поляризованная перпендикулярно оси z), приводит к возбуждению продольной акустической волны (направленной также



Фиг. 7.31. Наблюдение вынужденного бриллюэновского рассеяния в обратном направлении [30].

а — экспериментальная установка. Малая часть лазерного лучка отклоняется делителями к зеркалам M_1 и M_2 , которые отражают его вниз. Вынужденное бриллюэновское излучение, распространяющееся в обратном направлении, отклоняется вниз теми же делителями. Интерферометр Фабри — Перо преобразует разность частот в разность углов, что позволяет, таким образом, пространственно разделить на плече лазерную и бриллюэновскую волны; б — интерферограмма Фабри — Перо лазерного излучения (окружности, обозначенные через L) и бриллюэновского рассеянного излучения (окружности, обозначенные через B). Левая интерферограмма получена от зеркала M_1 , а правая — от зеркала M_2 . При меньшем коэффициенте отражения зеркала M_2 интенсивности бриллюэновского и лазерного излучений будут выравниваться.

вдоль оси x) и рассеянной в обратном направлении стоксовой волны, имеющей ту же поляризацию, что и падающая волна. В этом случае [31] можно использовать следующие константы:

$$\begin{aligned} \chi_{yy} &= \eta_{yy}^2 = (1,54)^2 = 2,37 \text{ (диэлектрическая проницаемость),} \\ \rho_{yuyx} &= 0,098 \text{ (фотоупругий коэффициент),} \\ \rho_m &= 2,65 \text{ г/см}^3 \text{ (плотность),} \\ \Gamma_a &= 325 \text{ см}^{-1} \text{ (постоянная акустического затухания} \\ &\quad \text{для упругого смещения [32]),} \\ C_{11} &= 8,5 \cdot 10^{11} \text{ эрг/см}^3 \text{ (коэффициент жесткости),} \\ v_a &= \left(\frac{C_{11}}{\rho_m}\right)^{1/2} = 5,66 \cdot 10^5 \text{ см/сек (скорость звука),} \\ \Delta\omega_L &= \Gamma_a v_a = 1,84 \cdot 10^8 \text{ рад/сек (акустическая ширина линии).} \end{aligned}$$

При рассеянии в обратном направлении выражение (7.95) дает бриллюэновское смещение частоты, равное 25,1 Гц, или $0,84 \text{ см}^{-1}$, которое близко к измеренному значению $0,85 \text{ см}^{-1}$ [30]. Из (7.94) имеем $k = \omega_R/v_a$, что с помощью приведенного выше списка констант позволяет найти бриллюэновскую восприимчивость, определяемую выражение (7.111). При резонансе, когда $\omega_R = \omega_L$, уравнение (7.111) дает $\chi_B = i\chi_B'' = i \cdot 3,3 \cdot 10^{-21}$ ед. МКС. Бриллюэновский коэффициент усиления, найденный для этого случая из (7.113), равен $g_s = 10^{-9} \cdot I_i$, где g_s выражается в обратных сантиметрах, а интенсивность падающего излучения I_i — в ваттах на квадратный сантиметр. Следовательно, при мощности падающего излучения 1 Гвт/см^2 коэффициент усиления равен 1 см^{-1} , что достаточно для компенсации типичных оптических потерь ($< 0,1 \text{ см}^{-1}$) и тем самым обусловливается нарастание вынужденного бриллюэновского излучения.

Уравнения, описывающие бриллюэновское рассеяние, идентичны приведенным в предыдущем разделе уравнениям для эффекта Рамана. Необходимо только заменить χ_R на χ_B , чтобы рамановские уравнения, начиная с (7.78), можно было использовать для эффекта Бриллюэна. Описание эффекта Бриллюэна на языке фотонов и фононов получается при подстановке выражения (7.78) в уравнение (7.112). Для фотонных переменных $\langle n_i \rangle$ и $\langle n_s \rangle$, которые являются средними значениями числа фотонов соответственно падающей и рассеянной волн, имеем

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s \langle n_s \rangle \langle n_i \rangle; \quad (7.114)$$

здесь K_s определяется выражением (7.80), где χ_R'' заменено на χ_B'' . Согласно обсуждению, проведенному после уравнения (7.80), написанное выше соотношение, хотя и выражено через

фотонные переменные, выведено полуклассическим методом, в котором поля не квантуются. Например, замена I_s на $\langle n_s \rangle$ является просто заменой переменной.

Уравнение (7.114), полученное на основе короткой формы записи (7.104б), можно переписать, используя более длинную форму (7.104а), в которой фигурирует число фононов $\langle n_k \rangle$ в акустической моде:

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s (\langle n_k \rangle + 1) \langle n_s \rangle \langle n_i \rangle - K_s \langle n_k \rangle \langle n_s \rangle \langle n_i \rangle. \quad (7.115)$$

Уравнения (7.114) и (7.115) описывают процесс индуцированного, или вынужденного, стоксова излучения, так как в этом процессе требуются участие стоксовых фотонов. Как и при анализе эффекта Рамана, описание спонтанного эффекта Бриллюэна можно получить путем замены $\langle n \rangle \rightarrow \langle n \rangle + 1$ для процессов излучения, которая преобразует полученные на основе классических полей уравнения к виду, получающемуся при квантовании полей. В этом случае обобщенное уравнение имеет вид

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s (\langle n_k \rangle + 1) (\langle n_s \rangle + 1) \langle n_i \rangle - K_s \langle n_k \rangle \langle n_s \rangle (\langle n_i \rangle + 1). \quad (7.115а)$$

Уравнение (7.115а) для эффекта Бриллюэна по форме идентично уравнению (7.81) для эффекта Рамана. Как было видно из рассмотрения эффекта Рамана, первый член в правой части приведенного выше уравнения соответствует процессу, показанному на фиг. 7.27, а, в котором падающий фотон преобразуется в рассеянный стоксов фотон с излучением фонона; второй член соответствует одновременному исчезновению стоксова фотона и фонона с появлением фотона с частотой падающей волны ω_i , как показано на фиг. 7.27, б. Таким образом, получено описание эффекта Бриллюэна на чисто квантовом языке, т. е. на языке фотонов и фононов.

Для спонтанного бриллюэновского рассеяния $n_s \ll 1$ и $n_k \ll 1$ и выражение (7.115а) принимает вид

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial z} = K_s \langle n_i \rangle.$$

Следовательно, как и в эффекте Рамана, спонтанное излучение пропорционально интенсивности падающего излучения и длине взаимодействия.

Эффект Бриллюэна представляет научный интерес, поскольку он дает информацию об акустических и фотоупругих свойствах вещества, и находит практическое применение в таких устройствах, как преобразователи частоты для оптических гетеродинных систем и систем отклонения светового пучка при оптическом сканировании.

3. Самофокусировка

Важной переменной, входящей в выражения для усиления в эффектах Рамана и Бриллюэна, является мощность, приходящая на единицу площади световых пучков. В экспериментальных исследованиях было найдено, что эффективные коэффициенты усиления η часто на один или два порядка превосходят ожидаемые значения. Такие результаты показывают, что эффективные интенсивности могут быть больше ожидаемых [33—52].

Эффекты аномального усиления возникают в результате явления, известного под названием самофокусировки или самоканализации. Это явление обусловлено тем, что показатель преломления η в областях высокой оптической интенсивности выше, чем в областях низкой интенсивности вследствие нелинейных эффектов [37, 38]. Увеличение показателя преломления в областях высокой интенсивности создает линзовые эффекты, которые приводят к формированию интенсивных нитей с диаметром 2—100 мкм. В результате эффективная интенсивность света много больше той, которую следовало бы ожидать в отсутствие самофокусировки.

Увеличение эффективной интенсивности приводит к понижению порогов для данной плотности падающей мощности, например для вынужденного рамановского излучения. Действительно, в самофокусирующихся жидкостях пороги зависят не столько от величины эффективного сечения рамановского рассеяния, сколько от самофокусирующих свойств жидкости [44].

Явление самофокусировки в изотропной среде может быть описано через зависимость показателя преломления от интенсивности, имеющую вид

$$\eta = \eta_0 + \eta_2 E^2. \quad (7.116)$$

Коэффициент нелинейности η_2 может быть обусловлен эффектом Керра для переменного поля, при котором происходит переориентация молекул, имеющих анизотропные поляризуемости; электрострикционным эффектом, при котором возникают изменения макроскопической плотности среды, под действием поля; нелинейностями электронной поляризуемости [50]. Для жидкостей первые два эффекта могут быть сравнимы, в то время как третий может быть значительно меньше. В случае твердых тел, в которых молекулярная переориентация заморожена, преобладают электрострикционные эффекты.

Постоянные времени эффекта Керра и электрострикционного эффекта для нелинейных диэлектрических свойств намного больше периода оптических колебаний. Поэтому в (7.116) дол-

жна быть сохранена только постоянная компонента $\eta_2 E^2$. При

$$E = \frac{1}{2} \tilde{E} e^{i(\omega t - kz)} + \text{компл. сопр.}$$

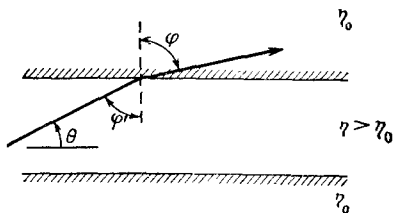
выражение (7.116) примет вид

$$\eta = \eta_0 + \frac{\eta_2}{2} |\tilde{E}|^2 = \eta_0 + \Delta\eta. \quad (7.117)$$

В дальнейшем всегда будем полагать, что поправочный член $\Delta\eta$ зависящий от интенсивности поля, весьма мал по сравнению с невозмущенным коэффициентом преломления η_0 .

Фиг. 7.32. Самоканализация в области высокого показателя преломления.

Из закона $\eta_0 \sin \varphi = \eta \sin \varphi'$ (Снеллиуса) канализация происходит за счет полного внутреннего отражения на границе пучка при $\varphi = \pi/2$ или $\eta_0 = \eta \sin [(\pi/2) - \theta] = \eta \cos \theta$.



Основные черты явления самофокусировки можно понять из картины, показанной на фиг. 7.32. Половина угла дифракционной расходимости пучка приближенно равна

$$\theta \approx \frac{1,22\lambda}{2\eta_0 D}, \quad (7.118)$$

где θ измеряется между точками поперечного распределения интенсивности, соответствующими максимальной и половинной мощностям, а D — начальный диаметр пучка. Луч, распространяющийся под этим углом, будет самоканализоваться вследствие полного внутреннего отражения на границе пучка, если коэффициент преломления η в пучке превосходит коэффициент преломления η_0 вне пучка на критическую величину. Согласно закону Снеллиуса, для луча будет образовываться канал при

$$\eta_1 = \eta \cos \theta \approx \eta \left(1 - \frac{\theta^2}{2}\right)$$

или при

$$\theta \approx \left(\frac{2\lambda\eta}{\eta_0}\right)^{1/2}, \quad (7.119)$$

где $\Delta\eta = \eta - \eta_0$. Приравнивая (7.118) и (7.119), для требуемой разности показателей преломления имеем

$$\Delta\eta = \left(\frac{1,22\lambda}{D}\right)^2 \frac{1}{8\eta_0}. \quad (7.120)$$

Согласно (7.117), разность показателей преломления зависит от поля как $\Delta\eta = \eta_2 |\tilde{E}|^2 / 2$. Поэтому критическое поле для образо-

вания канала можно найти с помощью выражения (7.120), из которого следует, что канал образуется, когда мощность, переносимая пучком, $P = (\eta_0 \epsilon_0 c |\tilde{E}|^2/2) (\pi D^2/4)$, достигает критического значения

$$P_{\text{кр}} = \frac{\pi (1,22\lambda)^2 \epsilon_0 c}{32\eta_2}. \quad (7.121)$$

Детальный машинный расчет, основанный на решении волнового уравнения, дает почти такой же результат [45]:

$$P_{\text{кр}} = \frac{5,763\lambda^2 \epsilon_0 c}{4\pi^2 \eta_2}. \quad (7.122)$$

Особый интерес в написанных выше выражениях представляет тот факт, что пучок, имеющий дифракционную расходимость, самоканализуется независимо от его сечения или интенсивности только при условии, что полная мощность, переносимая пучком, достигает критической величины. Поэтому пучок может самоканализоваться при любом произвольном диаметре, и образование канала будет иметь место при критическом уровне мощности независимо от диаметра пучка. Если сечение пучка, несущего критическую мощность, например, удвоить (а это означает, что интенсивность и, следовательно, нелинейность уменьшаются в 2 раза), то пучок продолжает оставаться самоканализованным, поскольку для самоканализации требуется также в 2 раза меньшее изменение показателя преломления.

Если величина мощности превосходит критическую величину, пучок лучей будет отражаться назад к оси. Это приводит к понятию расстояния фокусировки z_f , которое представляет собой расстояние, проходимое пучком до того, как он достигает фокуса вследствие эффектов самофокусировки. Чтобы изучить это понятие, полезно рассмотреть заданное распределение интенсивности по сечению пучка. Для примера рассмотрим пучок с гауссовым распределением интенсивности. Для гауссова пучка квадрат электрического поля имеет следующее поперечное распределение:

$$|\tilde{E}|^2(r) = |\tilde{E}_m|^2 e^{-2r^2/a^2}, \quad (7.123)$$

где \tilde{E}_m — величина электрического поля в центре пучка, a — радиус пучка, т. е. расстояние, на котором интенсивность падает до $e^{-2} = 0,135$ от своего значения на оси. Полная мощность P , переносимая пучком, дается выражением

$$P = \frac{\eta_0 \epsilon_0 c}{2} 2\pi \int |\tilde{E}|^2 r dr = \left(\frac{\pi a^2}{2}\right) \left(\frac{\eta_0 \epsilon_0 c}{2}\right) |\tilde{E}_m|^2. \quad (7.124)$$

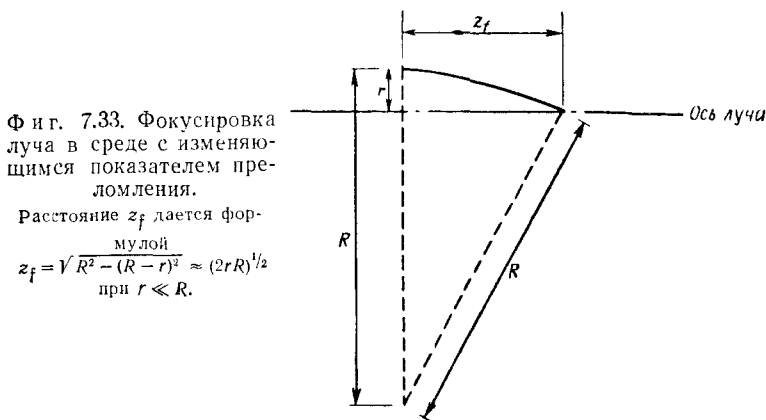
Радиус кривизны R луча в среде с изменяющимся показателем преломления определяется выражением [53] (см. задачу 7.9)

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{\eta(r)} \frac{\partial \eta(r)}{\partial r} \approx \frac{1}{\eta_0} \frac{\partial \eta(r)}{\partial r}. \quad (7.125)$$

Поскольку показатель преломления связан с полем выражением (7.117), то

$$\eta = \eta_0 + \frac{\eta_2}{2} |\tilde{E}_m|^2 e^{-2r^2/a^2} \approx \eta_0 + \frac{\eta_2}{2} |\tilde{E}_m|^2 \left(1 - \frac{4r^2}{a^2}\right), \quad (7.126)$$

где второе выражение — это два члена в разложении $|\tilde{E}|^2$ в ряд Тейлора по переменной r^2 , которое справедливо в интере-



Фиг. 7.33. Фокусировка луча в среде с изменяющимся показателем преломления.

Расстояние z_f дается фор-

мулой

$$z_f = \sqrt{R^2 - (R-r)^2} \approx (2rR)^{1/2}$$
 при $r \ll R$.

сующей нас области высокой интенсивности в центральной части пучка. Подстановка (7.126) в (7.125) дает выражение для радиуса кривизны луча через радиус r :

$$R = \frac{a^2 \eta_0}{4 \eta_2 E_m^2 r}. \quad (7.127)$$

Из фиг. 7.33 видно, что если бы параллельный оси луч с радиусом r стал двигаться по кругу с начальным радиусом кривизны R , он пересек бы ось на расстоянии

$$z_f \approx \sqrt{2rR}. \quad (7.128)$$

Это расстояние и примем за определение расстояния фокусировки z_f . Тогда, комбинируя (7.127) и (7.128), получаем выражение

$$z_f = \frac{a}{2} \left(\frac{2\eta_0}{\eta_2} \right)^{1/2} \frac{1}{|\tilde{E}_m|}. \quad (7.129)$$

При выводе этого выражения мы исходили из предположения о первоначальной параллельности лучей. Однако гауссов пучок не является параллельным, а стремится разойтись вследствие дифракции. Тенденция к расходимости противодействует явлению самофокусировки. Когда два этих эффекта точно уравновешивают друг друга, имеет место самоканализация без расходимости пучка. В этом случае пучок не фокусируется в точку. Поэтому введем поправку в (7.129), так что для мощностей выше критического значения для самоканализации общее расстояние фокусировки после поправки на дифракционную расходимость примет вид

$$z_{\text{общ}} = \frac{a}{2} \left(\frac{2\eta_0}{\eta_2} \right)^{1/2} \frac{l}{|\tilde{E}| - |\tilde{E}_m|_{\text{кр}}}, \quad (7.130)$$

где $|\tilde{E}_m|_{\text{кр}}$ определяется из выражений (7.122) и (7.124). Когда $|\tilde{E}_m| = |\tilde{E}_m|_{\text{кр}}$, то $z_{\text{общ}} = \infty$, что и требуется для самоканализации без расходимости пучка.

В качестве численного примера рассмотрим самофокусировку в жидком сероуглероде (CS_2), для которого $(\eta_2)_{\text{СГСЕ}} \approx \approx 10^{-11}$ [$(\eta_2)_{\text{МКС}} = (0,11 \cdot 10^{-8})$ ($\eta_2)_{\text{СГСЕ}} = 1,1 \cdot 10^{-20}$]. Критическая мощность для самоканализации пучка излучения рубинового лазера ($\lambda = 6943 \text{ \AA}$), согласно (7.122), равна $P_{\text{кр}} \sim 17 \text{ квт}$. Для пучка мощностью 1 Мвт с диаметром 2 мм общая длина самофокусировки, согласно (7.130), равна $z_{\text{общ}} \approx 60 \text{ см}$.

Явление самофокусировки наблюдалось экспериментально как непосредственно, так и косвенно на основе определения порогов для вынужденного эффекта Рамана. В последнем случае порог для вынужденного рамановского излучения в сильно самофокусирующей жидкости достигается тогда, когда мощность лазера накачки достаточна, чтобы самофокусировка произошла внутри рамановской ячейки. Тогда могут сформироваться нити высокой интенсивности, внутри которых имеет место вынужденное рамановское излучение. Чтобы это показать, перепишем (7.130) в виде

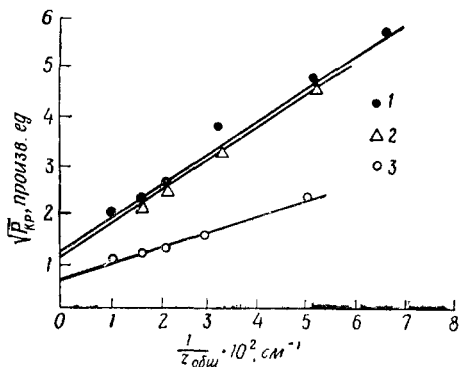
$$P^{1/2} = P_{\text{кр}}^{1/2} + \frac{A}{z_{\text{общ}}}, \quad (7.131)$$

где, согласно (7.124) и (7.130),

$$A = a \left(\frac{\pi \epsilon_0 c \eta_0^2}{8 \eta_2} \right)^{1/2}.$$

Следовательно, графики зависимости $P^{1/2}$ от $1/z_{\text{общ}}$ для различных материалов будут представлять собой прямые линии, а критическая мощность для самоканализации может быть получена из

пересечений прямых с вертикалью. Наглядное подтверждение этих рассмотрений представлено на фиг. 7.34. В экспериментальной установке величина $z_{\text{общ}}$ задается произвольно выбором длины ячейки, и $P^{1/2}$ есть та мощность, которая требуется



Фиг. 7.34. Согласно теории самофокусировки, пороговая мощность, необходимая для образования нитей в столбе жидкости длиной $z_{\text{общ}}$, дается выражением (7.131), где $z_{\text{общ}}$ — расстояние от передней плоскости до плоскости, в которой за счет эффектов самофокусировки фокусируется световой пучок. Таким образом, если порог для вынужденного рамановского излучения соответствует порогу для образования нити, то график зависимости квадрата корня из пороговой мощности лазера для вынужденного излучения от $z_{\text{общ}}$ должен давать прямые линии, что и получается в эксперименте [44].

1 — бензол; 2 — толуол; 3 — нитробензол.

для возникновения нити и, следовательно, для начала вынужденного рамановского излучения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Born M., Huang K., Dynamical Theory of Crystal Lattices, London, 1954. (См. перевод: М. Борн, Хуан Кунь, Динамическая теория кристаллических решеток, ИЛ, 1958.)
2. Smith R. A., Wave Mechanics of Crystalline Solids, London, 1961.
3. Kittel C., Quantum Theory of Solids, New York, 1963. (См. перевод: Ч. Киттель, Квантовая теория твердых тел, изд-во «Наука», 1967.)
4. Walker C. B., X-Ray Study of Lattice Vibrations in Aluminum, Phys. Rev., **103**, 547 (1956).
5. Woods A. D. B., Brockhouse B. N., Cowley R. A., Cochran W., Lattice Dynamics of Alkali Halide Crystals-II. Experimental Studies of KB_2 and NaI , Phys. Rev., **131**, 1025 (1963).
6. Messiah A., Quantum Mechanics, vol 1, Amsterdam, 1961.
7. Kittel C., Introduction to Solid-State Physics, 3rd ed., New York, 1966. (См. перевод: Ч. Киттель, Введение в физику твердого тела, 2-е изд., Физматгиз, 1963.)
8. Jenkins F. A., White H. E., Fundamentals of Optics, 3rd ed., New York, 1957.
9. Barker A. S., Jr., Transverse and Longitudinal Optic Mode Study in MgF_2 and ZnF_2 , Phys. Rev., **136**, A1290 (1964).

10. Raman C. V., Krishnan R. S., A New Type of Secondary Radiation, *Nature*, **121**, 501 (1928).
11. Ландсберг Г., Мандельштам Л., *Zuschriften — Eine neue Erscheinung bei der Lichtstreuung in Krystallen*, Naturwissenschaften, **16**, 557 (1928).
12. Woodbury E. J., Ng W. K., Ruby Laser Operation in the Near IR, *Proc. IRE (Corr.)*, **50**, 2367 (1962).
13. Eckhardt G., Hellwarth R. W., McClung F. J., Schwarz S. E., Weiner D., Stimulated Raman Scattering from Organic Liquids, *Phys. Rev. Letters*, **9**, 455 (1962).
14. Woodbury E. J., Raman Laser Action in Organic Liquids, в *Quantum Electronics Proceedings of the Third International Congress* (eds. P. Grivet, N. Bloembergen), vol. 2, New York, 1964, p. 1576.
15. Geller M., Bortfeld D. P., Sooy W. R., New Woodbury-Raman Laser Materials, *Appl. Phys. Letters*, **3**, 36 (1963).
16. Stoicheff B. P., Characteristics of Stimulated Raman Radiation Generated by Coherent Light, *Phys. Letters*, **7**, 186 (1963).
17. Eckhardt G., Bortfeld D. P., Geller M., Stimulated Emission of Stokes and Anti-Stokes Raman Lines from Diamond, Calcite, and α -Sulfur Single Crystals, *Appl. Phys. Letters*, **3**, 137 (1963).
18. Minck R. W., Terhune R. W., Rado W. G., Laser-Stimulated Raman Effect and Resonant Four-Photon Interactions in Gases H₂, D₂ and CH₄, *Appl. Phys. Letters*, **3**, 181 (1963).
19. Hellwarth R. W., Theory of Stimulated Raman Scattering, *Phys. Rev.*, **130**, 1850 (1963).
20. Hellwarth R. W., Analysis of Stimulated Raman Scattering of a Giant Laser Pulse, *Appl. Optics*, **2**, 847 (1963).
21. Zeiger H. J., Tannenwald P. E., The Raman Maser в *Quantum Electronics Proceedings of the Third International Congress* (eds. P. Grivet, N. Bloembergen), vol. 2, New York, 1964, p. 1588.
22. Garmire E., Pandarese F., Townes C. H., Coherently Driven Molecular Vibrations and Light Modulation, *Phys. Rev. Letters*, **11**, 160 (1963).
23. Eckhardt G., Selection of Raman Laser Materials, *IEEE Journ. Quant. Elect.*, **QE-2**, 1 (1966).
24. Martin M. D., Thomas E. L., Infrared Difference Frequency Generation, *IEEE Journ. Quant. Electr.*, **QE-2**, 196 (1966).
25. Placzek G., *Marx Handbuch Der Radiologie* (ed E. Marx), 2nd ed., Akademische Verlagsgesellschaft, vol. 6, Leipzig, 1934, Pt. II, p. 205.
26. Herzberg G., *Infrared and Raman Spectra of Polyatomic Molecules*, vol. 2, New York, 1945, p. 109. (См. перевод: Герцберг Г., Колебательные и вращательные спектры многоатомных молекул, ИЛ, 1949.)
27. Stratton J. A., *Electromagnetic Theory*, New York, 1941, p. 206. (См. перевод: Дж. Страттон, Теория электромагнетизма, Гостехиздат, 1948.)
28. Damen T. C., Leite R. C. C., Porto S. P. S., Angular Dependence of the Raman Scattering from Benzene Excited by the He-Ne CW Laser, *Phys. Rev. Letters*, **14**, 9 (1965).
29. Nye J. F., *Physical Properties of Crystals*, Oxford, 1957. (См. перевод: Дж. Най, Физические свойства кристаллов, изд-во «Мир», 1967.)
30. Chiao R. Y., Townes C. H., Stoicheff B. P., Stimulated Brillouin Scattering and Generation of Intense Hypersonic Waves, *Phys. Rev. Letters*, **12**, 592 (1964).
31. American Institute of Physics Handbook (ed. D. E. Gray), New York, 1965.
32. Kroll N. M., Excitation of Hypersonic Vibrations by Means of Photoelastic Coupling of High-Intensity Light Waves to Elastic Waves, *Journ. Appl. Phys.*, **36**, 34 (1965).
33. McClung F. J., Wagner W. G., Weiner D., Mode-Structure Independence of Stimulated Raman-Scattering Conversion Efficiencies, *Phys. Rev. Letters*, **15**, 96 (1965).

34. *Weiner D., Schwarz S. E., McClung F. J.*, Comparison of Observed and Predicted Stimulated Raman Scattering Conversion Efficiencies, *Journ. Appl. Phys.*, **36**, 2395 (1965).
35. *Bret G., Mayer G.*, Forward Emission of Raman Radiation in Various Liquids, Proc. of the Int'l Conf. on the Phys. of Quant. Elect. (eds. P. I. Kelley, B. Lax, P. E. Tannenwald), New York, 1966.
36. *Huuchecorne G., Mayer G.*, Effets de l'anisotropie moleculaire sur la propagation d'une lumiere intense, *Compt. Rend.*, **261**, 4014 (1965).
37. *Chiao R. Y., Garmire E., Townes C. H.*, Self-Trapping of Optical Beams, *Phys. Rev. Letters*, **13**, 479 (1964).
38. *Kelley P. L.*, Self-Focusing of Optical Beams, *Phys. Rev. Letters*, **15**, 1005 (1965).
39. *Аскарьян Г. А.*, Воздействие градиента поля интенсивного электромагнитного луча на электроны и атомы, *ЖЭТФ*, **42**, № 6, 1567 (1962).
40. *Таланов В. И.*, Распространение коротких электромагнитных импульсов в активной среде, *Изв. вузов, «Радиофизика»*, **7**, № 3, 491 (1964).
41. *Пилпеецкий Н. Ф., Рустамов А. Р.*, Наблюдение самофокусировки света в жидкостях, *Письма в редакцию ЖЭТФ*, **2**, № 2, 88 (1965).
42. *Shen Y. R., Shaham Y. I.*, Beam Deterioration and Stimulated Raman Effect, *Phys. Rev. Letters*, **15**, 1008 (1965).
43. *Lallemant P., Bloembergen N.*, Self-Focusing of Laser Beams and Stimulated Raman Gain in Liquids, *Phys. Rev. Letters*, **15**, 1010 (1965).
44. *Wang C. C.*, Length-Dependent Threshold for Stimulated Raman Effect and Self-Focusing of Laser Beams in Liquids, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 344 (1966).
45. *Garmire E., Chiao R. Y., Townes C. H.*, Dynamics and Characteristics of the Self-Trapping of Intense Light Beams, *Phys. Rev. Letters*, **16**, 347 (1966).
46. *Bloembergen N., Lallemant P.*, The Influence of Self-Focusing on the Stimulated Brillouin, Raman and Rayleigh Effects, *IEEE Journ. Quantum. Elect.*, **QE-2**, 246 (1966).
47. *Close D. H., Giuliano C. R., Hellwarth R. W., Hess L. D., McClung F. J., Wagner W. G.*, The Self-Focusing of Light of Different Polarizations, *IEEE Journ. Quant. Elect.*, **QE-2**, 553 (1966).
48. *Javan A., Kelley P. L.*, Possibility of Self-Focusing due to Intensity Dependent Anomalous Dispersion, *IEEE Journ. Quant. Elect.*, **QE-2**, 470 (1966).
49. *Chiao R. Y., Johnson M. A., Krinsky S., Smith H. A., Townes C. H., Garmire E.*, A New Class of Trapped Light Filaments, *IEEE Journ. Quant. Elect.*, **QE-2**, 467 (1966).
50. *Wang C. C.*, Nonlinear Susceptibility Constants and Focusing of Optical Beams in Liquids, *Phys. Rev.*, **152**, 149 (1966).
51. *Hellwarth R. W.*, Effect of Molecular Redistribution on the Nonlinear Refractive Index of Liquids, *Phys. Rev.*, **152**, 156 (1966).
52. *Brewer R. G., Townes C. H.*, Standing Waves in Self-Trapped Light Filaments, *Phys. Rev. Letters*, **18**, 196 (1967).
53. *Born M., Wolf E.*, Principles of Optics, 3rd ed., New York, 1965, p. 122. (См. перевод: М. Борн, Э. Вольф, Основы оптики, изд-во «Наука», 1970).

Задачи

7.1. Показать, что в пределе длинноволновых колебаний ($k \rightarrow 0$) разностное уравнение (7.1) можно заменить дифферен-

циальным уравнением вида

$$\rho_l \frac{\partial^2 q}{\partial t^2} = C \frac{\partial^2 q}{\partial x^2},$$

которое представляет собой уравнение распространения акустических волн вдоль однородной линии с линейной плотностью ρ_l и коэффициентом упругости C .

7.2. Рассмотреть случай акустической моды, удовлетворяющей периодическим граничным условиям, которые обсуждались в гл. 7, § 3, п. 1. Суммируя по вкладам от всех атомов, показать, что акустические моды, для которых $\mathbf{k} \neq 0$, не несут физического импульса. Чему физически соответствует мода с $\mathbf{k} = 0$?

7.3. Показать, что гамильтониан (7.23) приводит к уравнениям движения (7.17) непосредственно с помощью уравнений Гамильтона.

7.4. Энергия электрона дается релятивистским выражением

$$\mathcal{W}^e = \sqrt{p^2 c^2 + m_0^2 c^4},$$

где p — импульс электрона, m_0 — масса покоя и c — скорость света.

а) Построить дисперсионную диаграмму $\mathcal{W}^e p$ для электрона и ее асимптоты.

б) При комптоновском рассеянии падающий фотон рассеивается на электроне со смещением частоты. Разности энергий и импульсов падающего и рассеянного фотонов передаются электрону. Вспоминая, что энергия и импульс фотона связаны соотношением $\mathcal{W}^p = pc$, построить дисперсионные векторные диаграммы сохранения для: 1) рассеяния назад на покоящемся электроне, 2) рассеяния назад на электроне, движущемся противоположно падающему фотону.

7.5. В кристалле LiNbO_3 имеется оптическая мода, активная в поглощении в инфракрасной области с $1/\lambda = 628 \text{ см}^{-1}$ и $\Delta x = 2,55$, а высокочастотная диэлектрическая проницаемость кристалла $\epsilon_\infty = 4,6$.

а) Построить дисперсионную характеристику (ωk -диаграмму) для области

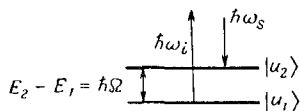
$$500 \text{ см}^{-1} < \frac{1}{\lambda} < 610 \text{ см}^{-1}.$$

б) Пусть проводится эксперимент по рамановскому рассеянию, в котором пучок от гелий-неонового лазера ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$) рассеивается этой модой. Тогда сохранение волнового вектора приводит к появлению стоксовой компоненты, частота которой зависит от угла между стоксовым и лазерным пучками. Определить угловую зависимость частоты стоксовой компоненты.

7.6. Было показано, что для достижения порога вынужденного стоксова излучения в резонаторе коэффициент усиления за один проход должен превышать потери за один проход δ .

а) Обсудить, можно ли спизить порог путем увеличения длины L рамановской среды, когда потери δ обусловлены 1) фиксированными потерями зеркал, 2) потерями на поглощение в рамановской среде.

б) Вычислить порог для вынужденного стоксова рассеяния пучка рубинового лазера ($\lambda = 6943 \text{ \AA}$) на оптической моде с $1/\lambda = 628 \text{ см}^{-1}$ в кристалле LiNbO_3 (ниобат лития). Считать потери за проход равными 1,1% ($\delta = 0,011$) и длину кристалла равной 0,55 см. Взять $\eta_s = E_2 - E_1 = \hbar\Omega$, $\eta_i = 2,2$ и $\chi_R''(\omega_\nu = \Omega) = 3,6 \cdot 10^{-20}$ ед. МКС.



Фиг. 7.35. Диаграмма энергетических уровней для рамановского рассеяния от двухуровневой электронной системы.

7.7. Рамановское рассеяние возможно не только на колебательных модах, но и на электронных состояниях. В этом случае исчезает падающий фотон и возникает стоксов фотон, а разность энергий поглощается электроном, как показано на фиг. 7.35 Гамильтониан такой системы дается выражением

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}',$$

где

$$\mathcal{H}_0 = \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_2 \end{pmatrix}$$

и

$$\mathcal{H}' = - \left(\frac{1}{2} \right) \alpha' E^2 = - \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \alpha'_{12} \\ (\alpha'_{12})^* & 0 \end{pmatrix} E^2.$$

По-прежнему нелинейный дипольный момент, связанный с рамановским эффектом, равен $\mu = \alpha' E$.

а) Показать, что уравнение движения для среднего значения поляризуемости $\langle \alpha' \rangle$ дается выражением

$$\langle \ddot{\alpha}' \rangle + \Delta\omega_L \langle \dot{\alpha}' \rangle + \Omega^2 \langle \alpha' \rangle = \frac{\Omega}{\hbar} |\alpha'_{12}|^2 (\rho_{11} - \rho_{22}) E^2.$$

б) Показать, что если в единице объема содержится N_V атомов, то рамановская восприимчивость дается выражением

$$\chi_R(\omega_\nu) = \frac{\Omega (N_1 - N_2) |\overline{\alpha'_{12}}|^2}{2\hbar\epsilon_0} \frac{1}{\Omega^2 - \omega_\nu^2 - i\omega_\nu(\Delta\omega_L)},$$

где $N_1 - N_2 = \overline{N_V(\rho_{44} - \rho_{22})}$ — разность населенностей в единице объема, а черта сверху обозначает пространственное усреднение.

7.8. Дисперсионное соотношение для длинноволновой акустической волны имеет вид $\omega_k = v_a k$, где v_a — скорость звука в данной среде. С помощью геометрического построения фиг. 7.29 для сохранения волнового вектора определить бриллюэновский частотный сдвиг, даваемый выражением (7.95).

7.9. Показать, что радиус кривизны R луча в среде с переменным показателем преломления $\eta(r)$ дается выражением

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{\eta(r)} \frac{\partial \eta(r)}{\partial r}.$$

(Указание. Рассмотреть предельный случай закона Снеллиуса.)

§ 1. ВВЕДЕНИЕ

В этой главе рассмотрено взаимодействие электронов и электромагнитных полей в кристаллических средах. Когда атомы образуют периодическую структуру, такую, как кристалл, дискретные энергетические уровни изолированного атома расширяются в энергетические зоны. Существование непрерывного распределения энергетических уровней означает, что для вычисления вероятности перехода или для вычисления проводимости следует производить интегрирование по энергетическим интервалам, в противоположность ранее проведенному анализу, когда вероятность перехода определялась суммированием вкладов, обусловленных отдельными энергетическими уровнями.

В § 2 обсуждается поведение электрона в кристалле в отсутствие внешнего поля. В первой части параграфа будет рассматриваться идеальный кристалл, в котором отсутствуют примеси и колебания решетки, во второй части исследуется отражение и захват электронов примесями. После усвоения основ, изложенных в § 2, читатель сможет изучать взаимодействие излучения и электронов в кристаллах. Влияние постоянного или низкочастотного поля обсуждается в § 3, межзонные переходы под действием инфракрасных или оптических сигналов рассмотрены в § 4. Фотопроводимость, т. е. та часть проводимости, которая обусловлена поглощением света, изучается в § 5. Полупроводниковый инжекционный лазер анализируется в § 6.

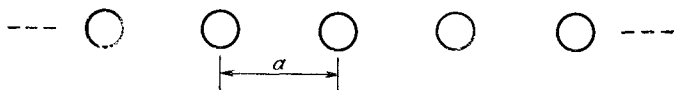
§ 2. ЭЛЕКТРОНЫ В КРИСТАЛЛАХ В ОТСУТСТВИЕ ВНЕШНЕГО ПОЛЯ

В этом параграфе будет изучаться поведение электронов в кристаллических средах в отсутствие внешнего поля. Вначале рассмотрим идеальный кристалл без примесей. Содержание параграфа будет включать зонную теорию, зоны Бриллюэна, блоховские функции, импульсы и брэгговское отражение. Затем будут обсуждаться несовершенные кристаллы с точки зрения отражения и захвата электронов примесями.

Этот материал обеспечивает основу для последующих разделов, в которых к кристаллу будут приложены внешние поля.

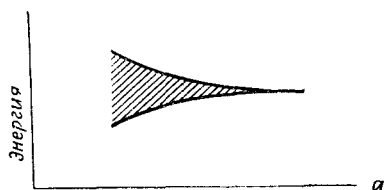
1. Энергетические зоны

Если рассмотреть неограниченную одномерную цепочку идентичных атомов, как показано на фиг. 8.1, то для больших межатомных расстояний волновая функция электрона, локализованного вблизи данного атома, будет приблизительно такой же, как и для электрона вблизи изолированного атома. В этом



Фиг. 8.1. Бесконечная одномерная цепочка идентичных атомов, разделенных расстоянием a .

случае собственные значения энергии дискретны, причем имеется небольшое уширение линии, обусловленное механизмами релаксации. Однако при сближении атомов энергетические уровни для электрона уширяются в энергетические полосы даже в отсутствие процессов релаксации. Этот переход от энергетического уровня к энергетической полосе иллюстрируется



Фиг. 8.2. Зависимость энергии электрона, находящегося вблизи атома от межатомного расстояния. Электрон может иметь любое значение энергии, лежащее внутри заштрихованной области.

фиг. 8.2, где энергия изображена как функция межатомного расстояния.

Определим возможные значения энергии электрона вблизи атома в случае, когда влияние атомов-соседей только начинает сказываться. Гамильтониан при этом имеет вид

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}', \quad (8.1)$$

где \mathcal{H}_0 — гамильтониан для данного изолированного атома и \mathcal{H}' — член, описывающий возмущение со стороны других атомов.

Можно получить приближенные собственные значения энергии, сделав разумный выбор собственной функции $\psi(x)$ и вычисляя энергию из волнового уравнения. Разумно выбрать такую функцию $\psi(x)$, для которой выполняется условие

$$\psi(x + la) \approx \psi(x), \quad (8.2)$$

где $\psi(x)$ — собственная функция изолированного атома, l — целое число, a — межатомное расстояние и $x = 0$ соответствует положению одного из атомов. Следовательно, $\psi(x)$ выбирается таким образом, чтобы в каждой атомной ячейке собственная

функция приблизительно совпадала с собственной функцией изолированного атома.

Когда атомы достаточно удалены друг от друга, т. е. в случае слабого взаимодействия, атомная волновая функция $\varphi(x)$ очень мала в тех точках, где находятся соседние атомы и таким образом выполняется условие $|\varphi(0)| \gg |\varphi(\pm a)|$. Следовательно, функция, удовлетворяющая условию (8.2), имеет вид

$$\psi(x) = \sum_l c(x_l) \varphi(x - x_l), \quad (8.3)$$

где $x_l \equiv la$. В каждой атомной ячейке функция $\psi(x)$, выражаемая уравнением (8.3), приблизительно равна атомной волновой функции, поскольку атомные функции слабо перекрываются.

Используя дираковские обозначения, можно записать (8.3) в виде

$$|\psi\rangle = \sum_l c(l) |l\rangle \quad (8.4)$$

с условием нормировки

$$\langle l | l \rangle = 1. \quad (8.5)$$

Кет-вектор $|l\rangle$ представляет собой атомную волновую функцию в l -й ячейке решетки.

В связи с малым перекрытием между волновыми функциями, связанными со смежными атомами, имеем

$$\langle m | l \rangle \ll 1 \quad \text{для} \quad m \neq l. \quad (8.6)$$

Волновое уравнение запишется в виде

$$(\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}') |\psi\rangle = E |\psi\rangle, \quad (8.7)$$

где E — собственное значение, которое необходимо определить. Учитывая выражение (8.4) и соотношение

$$\mathcal{H}_0 |l\rangle = E_0 |l\rangle, \quad (8.8)$$

где E_0 — собственное значение энергии для изолированного атома, находим, что

$$\sum_l (E_0 + \mathcal{H}') c(l) |l\rangle = E \sum_l c(l) |l\rangle. \quad (8.9)$$

Умножая обе части уравнения (8.9) на бра-вектор $\langle m |$ и используя условие (8.6) $\langle m | l \rangle \approx \delta_{ml}$, получаем

$$c(m) E_0 + \sum_l c(l) \mathcal{H}'_{ml} = c(m) E. \quad (8.10)$$

Для равноотстоящих друг от друга атомов не существует разницы между $\mathcal{H}'_{m, m+1}$ и $\mathcal{H}'_{m, m-1}$, так что $\mathcal{H}'_{m, m+1} = \mathcal{H}'_{m, m-1}$.

Наибольшее влияние друг на друга оказывают только ближай-
шие соседи, и поэтому разумно включить в суммирование
в (8.10) только члены с $l = m$, $l = m + 1$ и $l = m - 1$. Тогда
(8.10) примет вид

$$c(m)[E_0 + \mathcal{H}'_{mm}] + [c(m-1) + c(m+1)]\mathcal{H}'_{m,m+1} = c(m)E. \quad (8.11)$$

Уравнение (8.11) — линейное, однородное разностное урав-
нение с постоянными коэффициентами. Решим его относительно
 $c(m)$, выбирая решения в виде

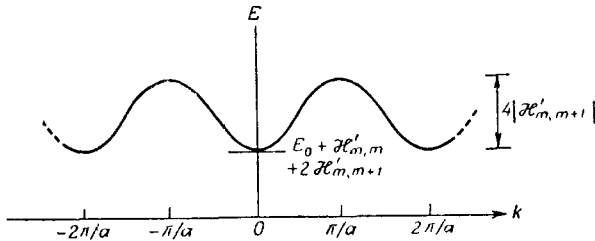
$$c(m) = e^{ikma}, \quad (8.12)$$

где k — постоянная. Подставляя (8.12) в (8.11), для случая
слабого взаимодействия между ближайшими соседями полу-
чаем связь между E и k в виде

$$E = E_0 + \mathcal{H}'_{mm} + 2\mathcal{H}'_{m,m+1} \cos ka. \quad (8.13)$$

Если известно E , можно определить k , и наоборот.

Для $\mathcal{H}'_{m,m+1} < 0$ график зависимости E от k приведен на
фиг. 8.3. Если $\mathcal{H}'_{m,m+1} > 0$, то максимум энергетической зоны



Фиг. 8.3. Зависимость собственного значения энергии E от k для электрона
в одномерной цепочке атомов.

лежит при $k = 0$, а минимум — при $k = \pi/a$. Заметим, что если
атомы удаляются друг от друга, то \mathcal{H}'_{mm} и $\mathcal{H}'_{m,m+1}$ стремятся
к нулю так, что $E \rightarrow E_0$.

Верхние и нижние предельные значения энергии в зоне до-
стигаются при

$$k = \frac{n\pi}{a}, \quad (8.14)$$

где n — целое число. В § 2, п. 3 будет показано, что условие
(8.14) соответствует брэгговскому отражению, которое обсуж-
далось ранее на стр. 280 в связи с бриллюэновским рассеянием.
Для трехмерной решетки атомов, оси которой расположены

вдоль декартовых осей, величины \mathbf{k} , дающие предельные значения энергии в полосе, удовлетворяют условию

$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{d} = \pi d^2, \quad (8.15)$$

где

$$\mathbf{k} = \mathbf{1}_x k_x + \mathbf{1}_y k_y + \mathbf{1}_z k_z, \\ d^2 = \mathbf{d} \cdot \mathbf{d}$$

и

$$\mathbf{d} = \mathbf{1}_x \frac{n_x}{a} + \mathbf{1}_y \frac{n_y}{b} + \mathbf{1}_z \frac{n_z}{c}.$$

Постоянные a, b, c — межатомные расстояния соответственно вдоль направлений x, y, z ; n_x, n_y, n_z — целые числа, $\mathbf{1}_x, \mathbf{1}_y, \mathbf{1}_z$ — единичные векторы вдоль направлений x, y, z соответственно.

На фиг. 8.3 показана одна энергетическая зона, обусловленная уширением одного энергетического уровня E_0 . Если рассматривать дополнительные атомные собственные значения энергии, то они также будут давать свои энергетические зоны, которые будут тем шире, чем больше значение E . Причина такого уширения заключается в том, что атомные волновые функции для больших собственных значений энергии сильнее размазаны в пространстве. Это вызывает более сильное перекрытие между смежными атомными волновыми функциями при фиксированном расстоянии между атомами, что приводит к возрастанию значения $|\mathcal{H}'_{m, m+1}|$. Зависимость $E(k)$ для нескольких энергетических зон приведена на фиг. 8.4.

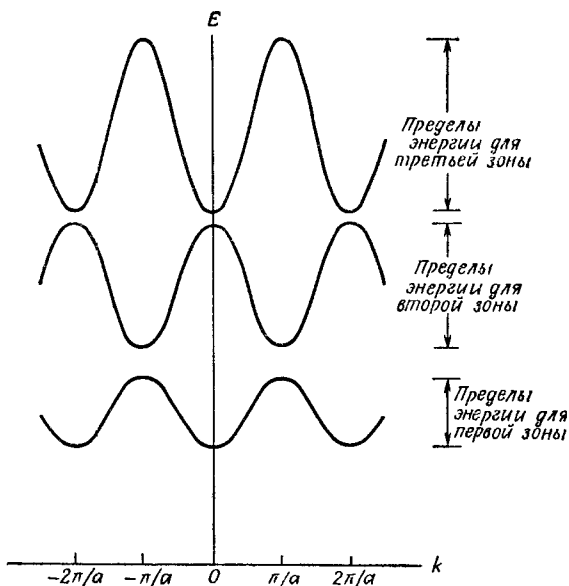
Сделанные ранее допущения (такие, как слабое взаимодействие между ближайшими соседями и допущения, связанные с соображениями симметрии) приводят к тому, что кривая $E(k)$ симметрична относительно $k = 0$; в общем же случае, когда эти допущения снимаются, кривые энергетических зон могут быть несимметричны относительно $k = 0$.

Уравнение (8.15) определяет поверхности в \mathbf{k} -пространстве, и эти поверхности соответствуют границам энергетической зоны. Объемы, заключенные внутри таких поверхностей, называются зонами Бриллюэна.

Для двумерного случая, когда $n_z = 0$ и $b = a$, соотношение (8.15) приводится к виду

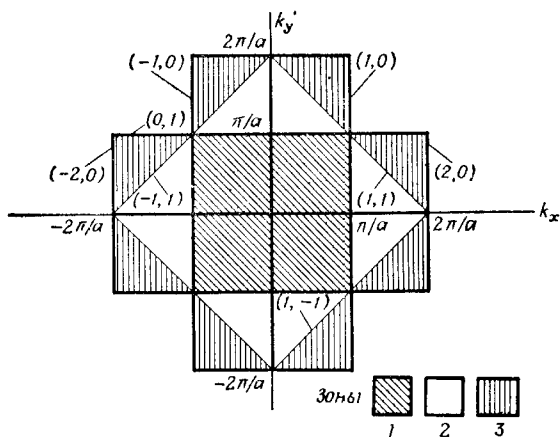
$$k_x n_x + k_y n_y = \frac{\pi}{a} (n_x^2 + n_y^2). \quad (8.16)$$

Каждый набор значений n_x и n_y определяет линию на плоскости $k_x - k_y$, которая соответствует краю зоны; площади, заключенные между линиями, — это двумерные зоны Бриллюэна. Первые три зоны Бриллюэна для двумерной решетки изображены на фиг. 8.5.



Фиг. 8.4. Энергетическая зонная диаграмма.

Каждому значению k соответствует множество значений E , относящихся к различным энергетическим зонам.



Фиг. 8.5. Двумерные зоны Бриллюэна.

Числа в скобках, стоящие у линий, дают значение n_x и n_y для каждой линии, т. е. линия, для которой $n_x = 1$, $n_y = 0$, обозначается $(1, 0)$. Эта диаграмма показывает линии в k -пространстве, для которых имеет место брэгговское отражение.

2. Функции Блоха

Подставляя выражение (8.12) для $c(l)$ в (8.3), получаем выражение для собственных функций

$$\psi(x) = \sum_l e^{il'a} \varphi(x - la). \quad (8.17)$$

Функция $\psi(x)$ удовлетворяет разностному уравнению

$$\psi(x + a) = e^{ika} \psi(x), \quad (8.18)$$

что можно видеть, переписывая выражение для $\psi(x + a)$ в виде (8.17). Уравнение (8.18) можно написать непосредственно из соображений симметрии, поскольку для бесконечной цепочки идентичных атомов вероятность $\psi\psi^*$ нахождения электрона в точке x должна быть равна вероятности нахождения электрона в точке $x + a$. Поэтому разностное уравнение (8.18) справедливо для любой периодической структуры с периодом a . Общее решение уравнения (8.18) имеет вид

$$\psi(k, x) = e^{ikx} u(k, x), \quad (8.19)$$

где

$$u(k, x + na) = u(k, x) \quad (8.20)$$

и n — целое число. Функция $u(k, x)$ обладает той же симметрией, что и кристалл, и трансляция на любое целое число периодов решетки не меняет величины функции. Функции в форме (8.19) называются функциями Блоха. В трехмерном случае функция Блоха имеет вид

$$\psi(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u(\mathbf{k}, \mathbf{r}), \quad (8.21)$$

где \mathbf{r} — вектор в пространстве координат, и функция $u(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ обладает трансляционной симметрией кристалла.

Для каждого значения \mathbf{k} уравнение (8.21) не определяет однозначно собственную функцию вследствие мультиплетности собственных значений, обусловленной различными энергетическими зонами, как показано на фиг. 8.4. Поэтому необходимо указать зону, с которой связана собственная функция

$$\psi_B(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_B(\mathbf{k}, \mathbf{r}), \quad (8.22)$$

где индекс B обозначает энергетическую зону.

Желательно, чтобы набор собственных функций был ортонормированным. Этому условию можно удовлетворить, накладывая периодические граничные условия, так что в одномерном случае требуем

$$\psi_B(k, x + Ga) = \psi_B(k, x), \quad (8.23)$$

где G — целое число, намного большее единицы. Налагаемое условие означает, что собственная функция совпадает сама

с собой при трансляции на большое число периодов решетки. (Применимость периодических граничных условий более детально обсуждается в гл. 7, § 3, п. 1.) Из (8.22) и (8.23) имеем

$$\psi_B(k, x + Ga) = e^{ik(x+Ga)} u_B(k, x + Ga) = e^{ikx} u_B(k, x).$$

Поскольку $u_B(k, x + Ga) = u_B(k, x)$, необходимо, чтобы

$$kGa = 2n\pi, \quad (8.24)$$

где n — целое число.

Используя периодические граничные условия, можно доказать с помощью волнового уравнения, что собственные функции, соответствующие различным собственным значениям, ортогональны:

$$\int_0^{Ga} \psi_{B'}^*(k', x) \psi_B(k, x) dx = 0 \quad \text{для } B' \neq B \text{ или } k' \neq k.$$

Постоянный множитель в $u_B(k, x)$ выберем таким образом, чтобы при $B' = B$ и $k' = k$ интеграл был нормирован к единице.

В трехмерном случае периодическое граничное условие означает, что собственная функция совпадает сама с собой при трансляции на большое целое число единичных ячеек. Единичная ячейка — это объем, воспроизводящий кристалл при трансляциях по различным направлениям. Тогда условие ортогональности имеет вид

$$\int_F \psi_{B'}^*(k', \mathbf{r}) \psi_B(k, \mathbf{r}) dV = \delta_{B'B} \delta_{k'k}, \quad (8.25)$$

где интегрирование производится по объему F , называемому основным доменом и включающему много единичных ячеек. В дираковских обозначениях можно переписать $\psi_B(k, \mathbf{r})$ в виде $|\mathbf{k}, B\rangle$, так что условие ортогональности примет вид

$$\langle k', B' | k, B \rangle = \delta_{B'B} \delta_{k'k}.$$

Поскольку размеры объема F выбраны произвольно, они не имеют физического смысла, так что любое выражение для измеряемой величины не будет содержать размеров объема F .

Периодические граничные условия приводят к тому, что k может принимать дискретные значения, но при выборе достаточно большого числа G расстояния между различными значениями k становится малым и k -пространство может рассматриваться как непрерывное. Тогда уравнение (8.25) принимает вид

$$\int \psi_{B'}^*(k', \mathbf{r}) \psi_B(k, \mathbf{r}) dV = \delta_{B'B} \delta(k' - k), \quad (8.26)$$

где $\delta(k' - k)$ — дельта-функция Дирака.

3. Импульс

Для электрона в свободном пространстве, когда

$$\mathcal{H} = \frac{p^2}{2m}, \quad (8.27)$$

собственные функции гамильтониана \mathcal{H} имеют вид

$$\psi(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}. \quad (8.28)$$

Среднее значение $\langle \mathbf{p} \rangle$ для электрона в данном энергетическом состоянии будет

$$\langle \mathbf{p} \rangle = \langle \mathbf{k} | -i\hbar \nabla | \mathbf{k} \rangle = \hbar \mathbf{k}. \quad (8.29)$$

Таким образом, импульс свободного электрона пропорционален волновому вектору \mathbf{k} .

Если свободный электрон падает на кристалл с волновым вектором \mathbf{k} , соответствующим краю зоны, происходит брэгговское отражение. Случай нормального падения иллюстрируется на фиг. 8.6. Волна, падающая на кристалл, полностью отражается, когда расстояние, проходимое волной, отраженной от внутреннего атомного слоя, соответствует приходу отраженной волны в фазе с волной, отраженной от поверхности. Из фиг. 8.6 видно, что условие брэгговского отражения есть

$$2a = n\lambda, \quad (8.30)$$

где n — целое число. Поскольку для электрона $\lambda = h/p$, в одномерном случае из (8.29) получим

$$2a = n \left(\frac{2\pi}{k} \right). \quad (8.31)$$

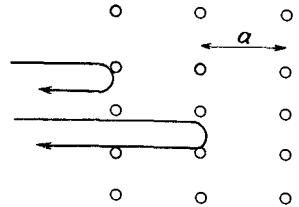
Выражение (8.31) дает такое же значение k , что и выражение (8.14), так что падающий электрон с величиной волнового вектора \mathbf{k} , соответствующей краю зоны, испытывает отражение от кристалла.

Определим теперь импульс электрона в данном энергетическом состоянии внутри кристалла. Если подействовать на волновое уравнение оператором $\nabla_{\mathbf{k}}$, где

$$\nabla_{\mathbf{k}} \equiv \mathbf{1}_x \frac{\partial}{\partial k_x} + \mathbf{1}_y \frac{\partial}{\partial k_y} + \mathbf{1}_z \frac{\partial}{\partial k_z}$$

и $\mathbf{1}_i$ — единичный вектор в направлении i , то, поскольку \mathcal{H} не зависит от волнового вектора, получим

$$\mathcal{H} \nabla_{\mathbf{k}} | \mathbf{k}, B \rangle = E(\mathbf{k}, B) \nabla_{\mathbf{k}} | \mathbf{k}, B \rangle + | \mathbf{k}, B \rangle \nabla_{\mathbf{k}} E(\mathbf{k}, B). \quad (8.32)$$



Фиг. 8.6. Брэгговское отражение для случая нормального падения.

Волна отражается от внутреннего слоя в фазе с волной, отраженной от поверхности.

Скалярное произведение уравнения (8.32) и $\langle \mathbf{k}, B |$ дает

$$\langle \mathbf{k}, B | (\mathcal{H} - E) \nabla_{\mathbf{k}} | \mathbf{k}, B \rangle = \nabla_{\mathbf{k}} E, \quad (8.33)$$

где член $E(\mathbf{k}, B)$ записан как E и член $E \nabla_{\mathbf{k}} | \mathbf{k}, B \rangle$ из правой части уравнения (8.32) перенесен в левую часть уравнения (8.33).

Чтобы вычислить левую часть уравнения (8.33), вернемся к координатному представлению собственной функции. Легко видеть, что для блоховской функции

$$\nabla_{\mathbf{k}} \psi_B(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = i\mathbf{r} \psi_B(\mathbf{k}, \mathbf{r}) + e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \nabla_{\mathbf{k}} u_B(\mathbf{k}, \mathbf{r}). \quad (8.34)$$

Следовательно, можно записать левую часть уравнения (8.33) в виде

$$\begin{aligned} \langle \mathbf{k}, B | (\mathcal{H} - E) \nabla_{\mathbf{k}} | \mathbf{k}, B \rangle &= \int_F dV \psi_B^* (\mathcal{H} - E) i\mathbf{r} \psi_B + \\ &+ \int_F dV \psi_B^* (\mathcal{H} - E) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \nabla_{\mathbf{k}} u_B. \end{aligned} \quad (8.35)$$

Поскольку $(\mathcal{H} - E)$ — эрмитов оператор, и функции в подынтегральном выражении во втором члене справа удовлетворяют периодическим граничным условиям, можно записать

$$\int_F dV \psi_B^* (\mathcal{H} - E) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \nabla_{\mathbf{k}} u_B = \int_F dV ((\mathcal{H} - E) \psi_B)^* e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \nabla_{\mathbf{k}} u_B = 0. \quad (8.36)$$

Хотя $(\mathcal{H} - E)$ — эрмитов оператор, его нельзя переносить влево, если функции не удовлетворяют периодическим граничным условиям (см. задачу 1.9). Поскольку $i\mathbf{r} \psi_B$ не удовлетворяет условиям периодичности, прием, использованный в (8.36), нельзя применить для вычисления первого члена в правой части уравнения (8.35). Чтобы получить эквивалентное выражение для этого члена, заметим, что

$$\mathcal{H} i\mathbf{r} \psi_B = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + \mathcal{V} \right) i\mathbf{r} \psi_B. \quad (8.37)$$

С учетом векторного тождества

$$\nabla^2 (\mathbf{r} \psi_B) = \mathbf{r} \nabla^2 \psi_B + 2 \nabla \psi_B$$

(8.37) примет вид

$$\mathcal{H} i\mathbf{r} \psi_B = i\mathbf{r} \mathcal{H} \psi_B + \frac{\hbar}{m} (-i\hbar \nabla) \psi_B. \quad (8.38)$$

Следовательно, из (8.38) имеем

$$\int_F dV \psi_B^* (\mathcal{H} - E) i \mathbf{r} \psi_B = \int_F dV \psi_B^* i \mathbf{r} (\mathcal{H} - E) \psi_B + \int_F dV \psi_B^* \frac{\hbar}{m} (-i \hbar \nabla) \psi_B. \quad (8.39)$$

Первый член в правой части уравнения (8.39) обращается в нуль, так как удовлетворяется волновое уравнение $(\mathcal{H} - E) \psi_B = 0$. Подстановка (8.39) в (8.35) дает

$$\langle \mathbf{k}, B | (\mathcal{H} - E) \nabla_{\mathbf{k}} | \mathbf{k}, B \rangle = \frac{\hbar}{m} \langle \mathbf{k}, B | \mathbf{p} | \mathbf{k}, B \rangle, \quad (8.40)$$

где использовано тождество

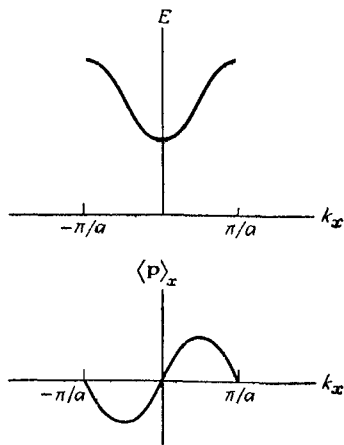
$$\int_F dV \psi_B^* \frac{\hbar}{m} (-i \hbar \nabla) \psi_B = \frac{\hbar}{m} \langle \mathbf{k}, B | \mathbf{p} | \mathbf{k}, B \rangle.$$

Из (8.33) теперь имеем

$$\langle \mathbf{k}, B | \mathbf{p} | \mathbf{k}, B \rangle = \frac{m}{\hbar} \nabla_{\mathbf{k}} E. \quad (8.41)$$

Уравнение (8.41) представляет собой выражение для импульса электрона в данном энергетическом состоянии через градиент собственного значения в \mathbf{k} -пространстве. Фиг. 8.7 иллюстрирует зависимость $\langle \mathbf{p} \rangle$ от \mathbf{k} в одномерном случае.

Импульс электрона может быть положительным или отрицательным в зависимости от знака наклона энергетических кривых. На границах энергетической зоны импульс электрона равен нулю.



Фиг. 8.7. Зависимость энергии и $\langle \mathbf{p} \rangle_x$ от k_x .

4. Рассеяние на примесях¹⁾

До сих пор рассматривалось поведение электрона в идеальном кристалле, в котором расстояния между идентичными атомами равны. Однако невозможно приготовить кристаллы, совершенно свободные от примесей; минимальная концентрация

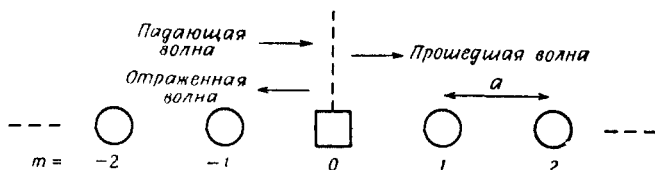
¹⁾ Материал, изложенный в гл. 8, § 2, п. 4 и 5, основан на Фейнмановских лекциях по физике (Р. Фейнман, Р. Лейтон, М. Сэндс, Фейнмановские лекции по физике, т. 9, изд-во «Мир», 1967, гл. 11).

примесей составляет примерно 10^{14} см^{-3} . Кроме того, в кристалле всегда имеются тепловые колебания решетки, которые нарушают равенство расстояний между атомами. Эти причины приводят к тому, что электроны рассеиваются или захватываются примесями.

При столкновении электрона с примесью возможны два результата:

1. Энергия электрона остается неизменной, но меняется импульс. Это условие рассеяния для случая, когда энергия электрона остается в пределах энергетической зоны, а электрон свободно движется в кристалле.

2. Энергия электрона может стать меньше энергии в энергетической зоне, и электрон, не способный более двигаться через решетку, захватывается атомом примеси. Здесь будет рассмотрено рассеяние, а в п. 5 мы исследуем захват электрона.



Фиг. 8.8. Атом примеси, локализованный в положении $m=0$, а также падающая, отраженная и проходящая волны, распространяющиеся, как показано на рисунке.

Рассмотрим одномерную цепочку с примесью, локализованной в положении $m=0$, как показано на фиг. 8.8. Наличие примеси можно учесть, полагая, что в m -м узле собственное значение для изолированного атома не будет таким же, как для всех других атомов, т. е.

$$\mathcal{H}_0 |m\rangle = E_0 |m\rangle \quad \text{для } m \neq 0$$

и

$$\mathcal{H}_0 |m\rangle = (E_0 + \Delta) |m\rangle \quad \text{для } m = 0,$$

где \mathcal{H}_0 — оператор Гамильтона для изолированного атома и Δ — разность между собственным значением изолированного примесного атома и собственным значением для всех других атомов. Для \mathcal{H}' будем считать, что все атомы идентичны, и примем $\mathcal{H}'_{mm} = \mathcal{H}'_{00}$ и $\mathcal{H}'_{m, m+1} = \mathcal{H}'_{01}$. Наличие примеси вызовет также изменение матричных элементов оператора \mathcal{H}' в окрестности примеси, но основные черты процесса рассеяния можно определить, допуская только изменение в E_0 .

Если выражение (8.11) запишем для $m=0$, то получим

$$c(0) [E_0 + \Delta + \mathcal{H}'_{00}] + [c(-1) + c(1)] \mathcal{H}'_{01} = c(0) E. \quad (8.42)$$

В случае рассеяния электрона на примеси необходимо наряду с падающей волной учитывать отраженную и проходящую волны. Пусть

$$\begin{aligned} c(m) &= e^{ikma} + Ve^{-ikma} & \text{для } m \leq 0, \\ c(m) &= Ce^{ikma} & \text{для } m \geq 0, \end{aligned} \quad (8.43)$$

где e^{ikma} — падающая волна, Ve^{-ikma} — отраженная волна и Ce^{ikma} — проходящая волна. Соотношение для коэффициентов c (8.11) удовлетворяется вместе с энергетическим соотношением (8.13) для всех случаев, кроме случая $m = 0$, когда справедливо уравнение (8.42). Если же подставить (8.13) и (8.43) в (8.42), то уравнение (8.42) для $m = 0$ также справедливо при следующем выражении для B :

$$B = \frac{-\Lambda}{\Delta + 2i\mathcal{H}'_{01} \sin ka}. \quad (8.44)$$

При выводе выражения (8.44) было учтено, что коэффициенты $c(m)$ непрерывны при $m = 0$. Тогда получаем соотношение

$$C = 1 + B.$$

Вероятность отражения электрона есть $|B|^2$, вероятность прохождения электрона равна $|C|^2$. Поскольку электрон либо отражается, либо проходит, необходимо, чтобы выполнялось условие

$$|B|^2 + |C|^2 = 1, \quad (8.45)$$

которому удовлетворяет выражение (8.44) совместно с соотношением $C = 1 + B$.

Как и следовало ожидать, отраженная волна стремится к нулю при $\Delta \rightarrow 0$. Для данного Δ при $ka \rightarrow n\pi$ амплитуда отраженной волны приближается к единице. Это значение k соответствует краю зоны, и тот факт, что имеет место полное отражение даже для бесконечно малого нарушения однородности, согласуется с нашим предыдущим обсуждением брэгговского отражения.

5. Захват

Примесь может улавливать электрон, так что он остается локализованным на примеси. В этом случае можно ожидать, что $|\psi|^2$ будет иметь вид, показанный на фиг. 8.9. Вероятность нахождения электрона в интервале dx уменьшается по мере возрастания расстояния от примеси таким образом, что вся картина остается симметричной относительно узла, в котором находится атом примеси.

Для анализа этой проблемы заменим

$$k \rightarrow i\gamma,$$

что приводит к затуханию, а не к распространению волн, как в случае вещественных значений γ . Таким образом, допустим

$$\begin{aligned} c(m) &= e^{\gamma ma} & \text{для } m \leq 0, \\ c(m) &= e^{-\gamma ma} & \text{для } m \geq 0. \end{aligned} \quad (8.46)$$

Все уравнения (8.11) для $c(m)$ удовлетворяются при выполнении энергетического соотношения (8.13), за исключением уравнения (8.42) для $m = 0$. Для затухающих волн (8.13) принимает вид

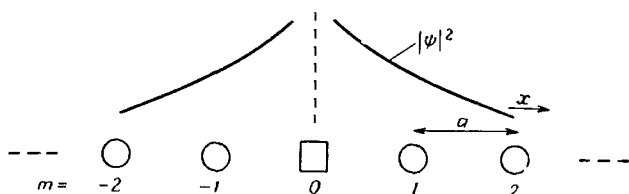
$$E = E_0 + \mathcal{H}'_{00} + 2\mathcal{H}'_{01} \operatorname{ch} \gamma a, \quad (8.47)$$

где косинус заменен гиперболическим косинусом. Если подставить (8.46) и (8.47) в (8.42), то при

$$\gamma = \frac{1}{a} \operatorname{arsh} \left(\frac{\Delta}{2\mathcal{H}'_{01}} \right) \quad (8.48)$$

уравнение для $m = 0$ также удовлетворяется.

Для $\mathcal{H}'_{01} < 0$ необходимо, чтобы Δ было отрицательным, тогда γ будет положительным и $c(m)$ уменьшается по мере



Фиг. 8.9. Зависимость $|\psi|^2$ для захваченного электрона от расстояния до атома примеси.

удаления от узла $m = 0$. Таким образом, чтобы получить захват из энергетической зоны, которая имеет минимум при $k = 0$, собственное значение энергии изолированного атома примеси должно быть меньше собственного значения для изолированного нормального или собственного атома. И наоборот, чтобы получить захват из энергетической зоны с максимумом при $k = 0$, энергия примесного атома должна быть больше, чем энергия собственного атома.

Подстановка (8.48) в (8.47) дает выражение для энергии захваченного электрона

$$E = E_0 + \mathcal{H}'_{00} \pm [4(\mathcal{H}'_{01})^2 + \Delta^2]^{1/2}, \quad (8.49)$$

где знак минус берется в том случае, когда при $k = 0$ имеется минимум энергии, и знак плюс — когда при $k = 0$ имеется максимум энергии. Фиг. 8.3 иллюстрирует случай, когда $\mathcal{H}'_{01} < 0$ и поэтому в (8.49) берется знак минус. Если $\Delta = 0$, то величина E , определяемая выражением (8.49), равна величине E при $k = 0$ на фиг. 8.3. Поэтому для конечного значения Δ энергия электрона, захваченного примесью, лежит ниже минимальной энергии энергетической зоны для идеального кристалла, когда $k = 0$ соответствует минимуму энергии.

§ 3. ВНУТРИЗОННЫЕ ЭФФЕКТЫ

После изучения подготовительного материала, который был представлен в § 2, читатель готов теперь к исследованию взаимодействия между излучением и электронами в кристаллах. Вначале рассмотрим отклик электрона в кристалле на сигнал, энергия фотона которого меньше энергии, требуемой для того, чтобы поднять электрон из одной энергетической зоны в другую путем однофотонного поглощения. Для полупроводников этому условию удовлетворяют сигналы, лежащие в диапазоне от постоянного поля до далекой инфракрасной области. Если выбрать наш основной домен таким образом, что он будет включать несколько сотен единичных ячеек, свойства этого основного домена почти не будут отличаться от свойств бесконечно протяженного кристалла. Одна длина волны для сигналов, которые здесь рассматриваются, включает по крайней мере несколько тысяч единичных ячеек, так что в пределах основного домена поле приблизительно постоянно и можно использовать дипольное приближение.

Поскольку энергия фотона недостаточна, чтобы вызвать межзональные переходы, то главный эффект заключается в изменении энергетического состояния электрона внутри одной энергетической зоны. Если все энергетические состояния внутри зоны заполнены, никакое изменение состояний внутри зоны невозможно вследствие «принципа запрета», который запрещает более чем одному электрону занимать данное состояние. Поэтому внутризонное поглощение, которое заключается в поглощении излучения и возбуждении электронов внутри зоны, может иметь место только для частично заполненной энергетической зоны. В полупроводниках в этом взаимодействии участвуют в основном электроны со дна зоны проводимости, известные под названием свободных носителей. Поэтому внутризонное поглощение также называется поглощением на свободных носителях.

В данном параграфе вначале будет рассмотрено движение электрона в идеальном кристалле: как в \mathbf{k} -пространстве, так и в координатном пространстве. Кроме того, будет введена

эффективная масса, проанализировано движение электрона, включая рассеяние, и получено выражение для электронного тока. Затем будут определены свойства дырок и оценен ток, создаваемый движением дырок.

1. Внутризонное движение в идеальном кристалле

Мы покажем, что под действием приложенного поля электрон движется в \mathbf{k} -пространстве согласно уравнению

$$\dot{\mathbf{k}}(t) = \frac{1}{\hbar} \mathbf{f}, \quad (8.50)$$

где $\mathbf{k}(t)$ — значение \mathbf{k} для электрона в момент времени t и \mathbf{f} — сила, действующая на частицу со стороны поля. Уравнение (8.50) может быть получено из уравнения движения для диагонального элемента оператора плотности.

В данном случае мы имеем дело с непрерывным набором базисных функций (поскольку \mathbf{k} непрерывно), так что любое состояние системы можно представить в виде

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \int d^3k \sum_B c_B(\mathbf{k}, t) \psi_B(\mathbf{k}, \mathbf{r}),$$

где $\psi_B(\mathbf{k}, \mathbf{r})$ определяется выражением (8.22), d^3k представляет собой элемент объема в \mathbf{k} -пространстве $dk_x dk_y dk_z$, а \sum_B — сумма по различным энергетическим зонам. По непосредственной аналогии с системой, обладающей дискретными уровнями, вероятность того, что электрон находится в энергетической зоне B и в объеме \mathbf{k} -пространства d^3k , равна $|c_B(\mathbf{k}, t)|^2 d^3k$. (Мы полагаем, что читатель к этому моменту перечитал гл. 1, § 4, п. 4, где рассматривается оператор плотности для непрерывного набора собственных состояний.) Матричные элементы оператора плотности определяются следующим образом:

$$\rho_{B'B}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) = \langle \mathbf{k}', B' | \rho(t) | \mathbf{k}, B \rangle$$

и в соответствии с (1.37) диагональные элементы имеют вид

$$\rho_{BB}(\mathbf{k}, t) = |c_B(\mathbf{k}, t)|^2,$$

где

$$\rho_{BB}(\mathbf{k}, \mathbf{k}, t) \equiv \rho_{BB}(\mathbf{k}, t).$$

Уравнение движения для диагонального элемента дается выражением (1.36) и для идеального кристалла (т. е. кристалла, в котором нет столкновений) следует брать $T_1 \rightarrow \infty$. Таким об-

разом, используя интегральную форму коммутатора (1.39), имеем

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{BB}(\mathbf{k}, t)}{\partial t} = [\mathcal{H}', \rho]_{\mathbf{k}B, \mathbf{k}B} = \sum_{B'} \int d^3k' [\mathcal{H}'_{\mathbf{k}B, \mathbf{k}'B'} \rho_{B'B}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) - \text{компл. сопр.}]. \quad (8.51)$$

При переходе от (1.39) к (8.51) было введено суммирование по различным энергетическим зонам, поскольку каждому значению \mathbf{k} может соответствовать много энергетических зон. Для внутризонного движения рассматриваем переходы только внутри зоны: таким образом, в этом случае $B' = B$.

Гамильтониан взаимодействия \mathcal{H}' с точностью до аддитивной постоянной есть ($e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$). Допустим, что длины волны излучения значительно больше максимального пробега электрона, и \mathbf{r} измеряется в любой фиксированной системе координат в кристалле. Символ \mathbf{E} используется для обозначения электрического поля, чтобы избежать путаницы с собственным значением энергии E . С этим значением \mathcal{H}' уравнение (8.51) приобретает вид

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{BB}(\mathbf{k}, t)}{\partial t} = e\mathbf{E} \cdot \int d^3k' \int dV [\rho_{BB}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) \psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \mathbf{r} \psi_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) - \text{компл. сопр.}]. \quad (8.52)$$

Исходя из (8.22), можно написать

$$\mathbf{r} \psi_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) = \mathbf{r} e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} u_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) = -i \nabla_{\mathbf{k}'} \psi_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) + i e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} \nabla_{\mathbf{k}'} u_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}). \quad (8.53)$$

Подстановка (8.53) в (8.52) дает

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{BB}(\mathbf{k})}{\partial t} = \left[-ie\mathbf{E} \cdot \int \int d^3k' dV \rho_{BB}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) \psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \nabla_{\mathbf{k}'} \psi_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) - \text{компл. сопр.} \right] + \left[ie\mathbf{E} \cdot \int \int d^3k' dV \rho_{BB}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) \psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} \nabla_{\mathbf{k}'} u_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) - \text{компл. сопр.} \right]. \quad (8.54)$$

В приложении II показано, что вторая скобка в правой части (8.54) равна нулю, а первая скобка приводится к виду

[$i e \mathcal{E} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{BB}(\mathbf{k}, t)$]. Таким образом, получаем

$$\frac{\partial \rho_{BB}(\mathbf{k}, t)}{\partial t} = \frac{e}{\hbar} \mathcal{E} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{BB}(\mathbf{k}, t). \quad (8.55)$$

Общее решение (8.55) есть

$$\rho_{BB}(\mathbf{k}, t) = \rho_{BB} \left(\mathbf{k} + \frac{e}{\hbar} \int_0^t \mathcal{E} dt \right), \quad (8.56)$$

в чем можно убедиться подстановкой (8.56) в (8.55). Если распределение электронов в \mathbf{k} -пространстве характеризуется в отсутствие поля функцией $\rho(\mathbf{k})$, то при наличии поля это распределение имеет вид

$$\rho \left(\mathbf{k} - \frac{1}{\hbar} \int_0^t \mathbf{f} dt \right),$$

где $\mathbf{f} = -e\mathcal{E}$ — сила, действующая на электрон.

При изменении времени на Δt необходимо, чтобы изменение \mathbf{k} определялось выражением

$$\Delta \mathbf{k} = \frac{1}{\hbar} \mathbf{f} \Delta t,$$

с тем чтобы сохранить ту же самую вероятность для локализации электрона в данном элементе объема в \mathbf{k} -пространстве. Таким образом, можно сказать, что под действием силы \mathbf{f} электроны движутся в \mathbf{k} -пространстве со скоростью

$$\dot{\mathbf{k}}(t) = \frac{1}{\hbar} \mathbf{f},$$

что согласуется с (8.50).

2. Эффективная масса

Из (8.41) среднее значение канонического импульса для частицы в данном энергетическом состоянии есть

$$\langle \mathbf{p} \rangle = \frac{m}{\hbar} \nabla_{\mathbf{k}} E.$$

Для дипольного приближения канонический импульс равен импульсу частицы (см. гл. 2, § 2, п. 2), так что

$$\langle \mathbf{v} \rangle = \frac{1}{\hbar} \nabla_{\mathbf{k}} E, \quad (8.57)$$

где $\langle \mathbf{v} \rangle$ — скорость частицы. Продифференцировав обе части (8.57) по времени, получим

$$\langle \dot{\mathbf{v}} \rangle = \frac{1}{\hbar} (\dot{\mathbf{k}} \cdot \nabla_{\mathbf{k}}) \nabla_{\mathbf{k}} E \quad (8.58)$$

и из (8.50)

$$\langle \dot{\mathbf{v}} \rangle = \frac{1}{\hbar^2} (\mathbf{f} \cdot \nabla_{\mathbf{k}}) \nabla_{\mathbf{k}} E, \quad (8.59)$$

где

$$\mathbf{f} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} = \hat{f}_x \frac{\partial}{\partial k_x} + \hat{f}_y \frac{\partial}{\partial k_y} + \hat{f}_z \frac{\partial}{\partial k_z}. \quad (8.60)$$

Если записать выражение для α -компоненты $\langle \dot{\mathbf{v}} \rangle$ согласно (8.59), то получим

$$\langle \dot{\mathbf{v}} \rangle_{\alpha} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k_{\alpha} \partial k_{\beta}} \hat{f}_{\beta}, \quad (8.61)$$

где каждый из индексов α и β относится к координатам x , y или z и в правой части (8.61) имеется суммирование по повторяющимся индексам. Например, $\langle \dot{\mathbf{v}} \rangle_x$ есть

$$\langle \dot{\mathbf{v}} \rangle_x = \frac{1}{\hbar^2} \left[\frac{\partial^2 E}{\partial k_x^2} \hat{f}_x + \frac{\partial^2 E}{\partial k_x \partial k_y} \hat{f}_y + \frac{\partial^2 E}{\partial k_x \partial k_z} \hat{f}_z \right].$$

Уравнение (8.61) можно переписать в виде произведения матриц

$$\begin{bmatrix} \langle \dot{\mathbf{v}} \rangle_x \\ \langle \dot{\mathbf{v}} \rangle_y \\ \langle \dot{\mathbf{v}} \rangle_z \end{bmatrix} = \frac{1}{\hbar^2} \begin{bmatrix} \frac{\partial^2 E}{\partial k_x^2} & \frac{\partial^2 E}{\partial k_x \partial k_y} & \frac{\partial^2 E}{\partial k_x \partial k_z} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial k_y \partial k_x} & \frac{\partial^2 E}{\partial k_y^2} & \frac{\partial^2 E}{\partial k_y \partial k_z} \\ \frac{\partial^2 E}{\partial k_z \partial k_x} & \frac{\partial^2 E}{\partial k_z \partial k_y} & \frac{\partial^2 E}{\partial k_z^2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{f}_x \\ \hat{f}_y \\ \hat{f}_z \end{bmatrix}, \quad (8.62)$$

или сокращенно

$$\langle \dot{\mathbf{v}} \rangle = \frac{1}{m^*} \mathbf{f}, \quad (8.63)$$

где $\langle \mathbf{v} \rangle$ и \mathbf{f} — векторы, а $1/m^*$ — тензор второго ранга.

Величина m^* известна как эффективная масса электрона в кристалле, поскольку уравнение (8.63) аналогично выражению для второго закона Ньютона. Элементы тензора эффективной массы равны

$$\frac{1}{m_{\alpha\beta}^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k_{\alpha} \partial k_{\beta}}. \quad (8.64)$$

Заметим, что $1/m^*$ — симметричный тензор вследствие того, что в (8.64) можно менять порядок дифференцирования. Тензор эффективной массы имеет те же свойства симметрии, что и тензор восприимчивости, который обсуждался в гл. 3, § 3. Симметричный тензор второго ранга всегда можно диагонализировать путем вращения осей координат, и направления, для которых

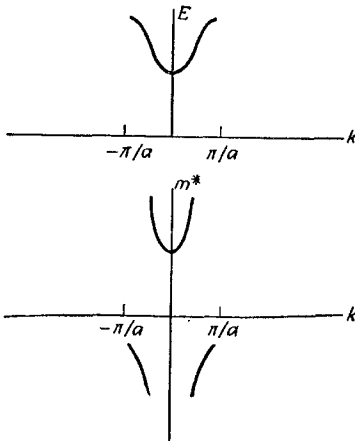
матрица диагональна, называются главными осями. Как видно из табл. 4, для всех кристаллографических классов, кроме двух, главные оси направлены вдоль осей симметрии кристалла. Вдоль направления главных осей выражение (8.61) будет иметь вид

$$\langle \dot{v} \rangle = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k^2} f \quad (8.65)$$

и эффективная масса есть

$$m^* = \frac{\hbar^2}{\partial^2 E / \partial k^2}, \quad (8.66)$$

где $\langle v \rangle$, f , k — компоненты соответствующих векторов, параллельные главной оси. В общем случае величина m^* имеет различные значения вдоль каждой из трех главных осей.



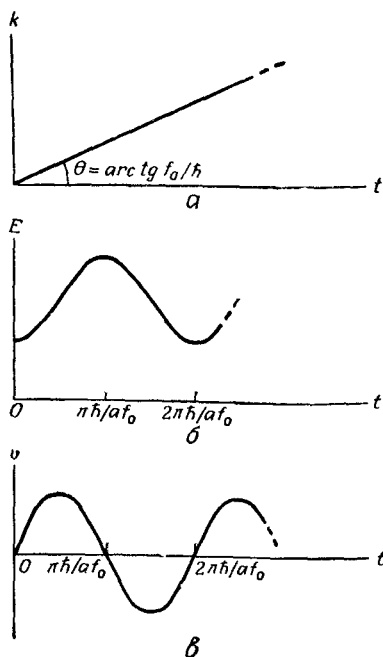
Фиг. 8.10. Поведение эффективной массы как функции k вдоль главной оси. Вблизи дна энергетической зоны эффективная масса положительна, вблизи потолка зоны эффективная масса отрицательна. В точке перегиба энергетической кривой эффективная масса бесконечна.

Фиг. 8.10 иллюстрирует поведение эффективной массы m^* как функции k . Вблизи потолка энергетической зоны эффективная масса отрицательна; это означает, что если свободный электрон движется в данном направлении под действием приложенного поля, то электрон в кристалле движется в противоположном направлении. В этом случае импульс, передаваемый электрону решеткой, больше импульса, обусловленного внешним полем, и имеет противоположное направление. Как было показано в § 2, п. 3 данной главы, когда достигается верхняя граница зоны, имеет место брэгговское отражение. Поэтому незначительное увеличение энергии электрона под действием внешнего поля могло бы уменьшить вероятность проникновения его через решетку вследствие синфазного отражения от кристаллических слоев. Другими словами, малое увеличение энергии электрона может вызвать резонансный отклик кристалла, который

передает большую величину импульса электрону в направлении, противоположном направлению импульса, создаваемого полем. Вот почему эффективная масса отрицательна вблизи верхнего края зоны.

Определим теперь временную зависимость энергии волнового числа k и скорости электрона в кристалле, обусловленную действием постоянной силы f_0 , приложенной вдоль главной оси. Допустим, что в момент времени $t = 0$ величина k также равна нулю. Из (8.50) видно, что k возрастает линейно со временем, как изображено на фиг. 8.11, а. Поскольку энергия электрона есть периодическая функция волнового числа k , она также будет периодической функцией времени, как показано на фиг. 8.11, б. Из (8.57) видно, что скорость электрона пропорциональна производной от энергии по k , и таким образом, скорость пропорциональна производной от энергии по времени, как показано на фиг. 8.11, в. Поскольку скорость электрона является периодической функцией времени, положение электрона также является периодической функцией времени, т. е. электрон колеблется.

При изображении результатов, иллюстрируемых фиг. 8.11, мы пренебрегали эффектами столкновений, и в следующем разделе мы рассмотрим движение электрона и в k -пространстве, и в координатном пространстве с учетом столкновений.



Фиг. 8.11. Поведение электрона при наложении постоянного поля без учета столкновений.

3. Движение электрона с учетом столкновений

Как было показано в § 2, п. 4, примесь может вызвать отражение падающего электрона, и на фиг. 8.12, а представлена схема движения электрона в кристалле с учетом столкновений в отсутствие приложенного поля. В присутствии поля существует дрейф в направлении поля (фиг. 8.12, б). Для данного электрона время между столкновениями меняется, и, таким образом,

дрейфовую скорость следует определять из средней скорости, приобретаемой между столкновениями.

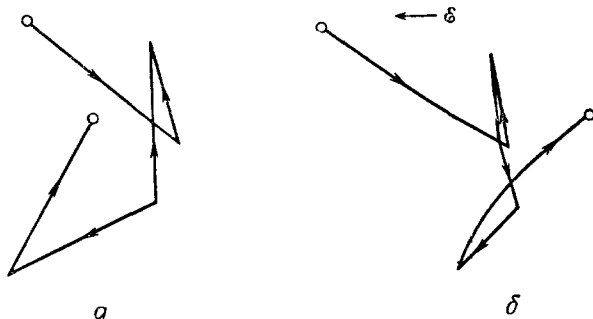
Рассмотрим электрон, который испытал последнее столкновение в момент $t = t_0$. Вероятность dp того, что электрон рассеется в последующий промежуток времени dt , пропорциональна dt и вероятности p того, что электрон не испытает столкновения за промежуток времени $t - t_0$. Таким образом,

$$dp = -\frac{1}{\tau} p dt, \quad (8.67)$$

где $(-1/\tau)$ — константа пропорциональности. Из (8.67) видно, что τ — среднее время между столкновениями. Интегрируя (8.67), находим

$$p = e^{-(t-t_0)/\tau}, \quad (8.68)$$

где положено $p = 1$ в момент $t = t_0$. Если нас интересует изменение вероятности того, что электрон не испытает столкновения



Фиг. 8.12. Движение электрона в кристалле с учетом столкновений. а — в отсутствие приложенного поля; б — при наличии приложенного поля.

в момент t (которое связано с учетом изменения момента времени его последнего столкновения), то надо продифференцировать (8.68) по t_0 . Получим

$$dp = \frac{1}{\tau} e^{-(t-t_0)/\tau} dt_0. \quad (8.69)$$

Между столкновениями, как видно из (8.65) и (8.66), скорость вдоль направления главной оси равна

$$\langle v \rangle = \langle v \rangle_0 + \int_{t_0}^t \frac{f}{m^*} dt, \quad (8.70)$$

где $\langle v \rangle_0$ — скорость в момент $t = t_0$. Изменение энергии электрона между столкновениями обычно очень мало, так что

$^2E/\partial k^2$ существенно не изменяется, и поэтому эффективную массу m^* можно считать не зависящей от времени.

При наложении синусоидального сигнала с частотой ω выражение для силы \vec{f} можно записать в виде

$$\vec{f} = -\frac{e\vec{\mathcal{E}}}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}, \quad (8.71)$$

где e — заряд электрона, $\vec{\mathcal{E}}$ — не зависящая от времени амплитуда компоненты поля, параллельной главной осн. Скорость электрона, который в последний раз испытал столкновение в момент $t = t_0$, определяется путем подстановки (8.71) в (8.70):

$$\langle v \rangle = \langle v \rangle_0 - \left[\frac{e\vec{\mathcal{E}} e^{i\omega t}}{2i\omega m^*} [1 - e^{-i\omega(t-t_0)}] + \text{компл. сопр.} \right]. \quad (8.72)$$

Чтобы получить среднюю скорость электрона, необходимо усреднить (8.72) по всем возможным моментам столкновения t_0 . Среднее значение $\langle v \rangle$ есть

$$\overline{\langle v \rangle} = \frac{\int_{-\infty}^t \langle v \rangle dp}{\int_{-\infty}^t dp} \quad (8.73)$$

или из (8.69) и (8.72)

$$\overline{\langle v \rangle} = \langle v \rangle_0 - \left[\frac{e\tau}{m^*} \left[\frac{1 - i\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \right] \frac{\vec{\mathcal{E}}}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.} \right]. \quad (8.74)$$

Рассеяние на тепловых колебаниях изотропно, так что в этом случае $\langle v \rangle_0 = 0$ вдоль любого выбранного направления. Если преимущественно происходит рассеяние на некоторый данный угол, как, например, при рассеянии ионизованными примесными центрами, τ соответственно видоизменяется [1]. Наше обсуждение будет ограничено случаем изотропного рассеяния.

Типичная область значений τ составляет 10^{-12} — 10^{-13} сек, так что для частот ниже 10^{12} рад/сек $\omega\tau \ll 1$ и из (8.74) совместно с соотношением $\langle v \rangle = 1/2 \overline{\langle v \rangle} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}$ имеем

$$\overline{\langle v \rangle} = -\frac{e\tau}{m^*} \vec{\mathcal{E}} \equiv \mu \vec{\mathcal{E}}, \quad (8.75)$$

где

$$\mu = \frac{e\tau}{m^*}. \quad (8.76)$$

Постоянная μ называется подвижностью, и для чистого германия при комнатной температуре равна $0,39$ м²/в·сек.

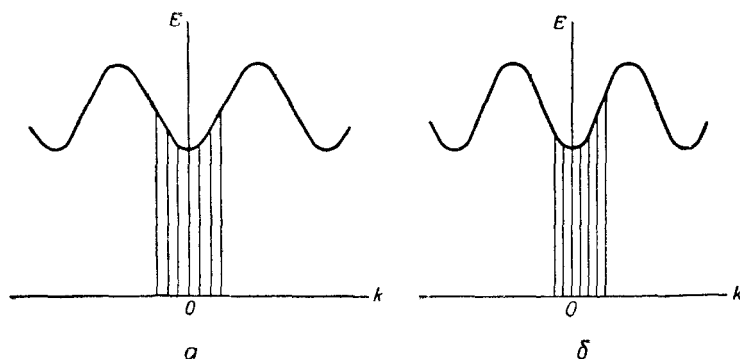
Рассмотрим теперь поведение электрона в k -пространстве с учетом столкновений. В отсутствие столкновений было получено, что k возрастает линейно со временем при наложении постоянного поля:

$$k = k_0 + \frac{f}{\hbar} (t - t_0), \quad (8.77)$$

где f — амплитуда постоянной приложенной силы и k_0 — значение k при $t = t_0$. Методом, аналогичным использованному для вычисления средней скорости электрона, найдем, что среднее значение k равно

$$\bar{k} = \frac{f\tau}{\hbar}. \quad (8.78)$$

Фиг. 8.13 иллюстрирует заселенность частично заполненной энергетической зоны в отсутствие поля и в случае наложения



Фиг. 8.13. Заселенность энергетических состояний.

a — в отсутствие приложенной постоянной силы; b — при приложении постоянной силы. Вертикальная линия показывает, что собственное состояние занято.

постоянной силы. Имеет место сдвиг среднего значения k для электронов на величину $f\tau/\hbar$.

4. Плотность тока

Для определения плотности тока, возникающего при наложении поля, можно использовать два подхода. Можно вычислить дрейфовую скорость электрона в присутствии поля и тем самым получить плотность тока для одного электрона в виде

$$\mathbf{J} = -\frac{e}{V} \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle, \quad (8.79)$$

где V — произвольный элементарный объем, по которому нормируется волновая функция электрона. Величина заряда элек-

трона равна e , дрейфовая скорость равна $\langle \bar{\mathbf{v}} \rangle$. Ток, создаваемый всеми электронами в объеме V , есть

$$\mathbf{J} = -\frac{e}{V} \sum_i \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_i, \quad (8.80)$$

где индекс i относится к i -му электрону. Обычно интересуются электронным током, связанным с движением электронов на дне зоны проводимости, где каждый электрон имеет приблизительно одинаковую скорость. В этом случае

$$\mathbf{J} = -N_e \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle, \quad (8.81)$$

где N_e — число электронов проводимости в единице объема.

Преимуществом этого подхода является простота; в частности, он полезен, когда время между столкновениями τ не зависит от энергии электрона. Однако, когда учитывается изменение τ с энергией, необходимо найти соответствующее среднее значение τ . Это среднее получается при использовании второго подхода для определения \mathbf{J} , а именно, следует рассмотреть некоторый интервал энергии или скорости и вычислить изменение плотности заряда, приходящегося на этот интервал в присутствии приложенного поля. В п. 4 и 5 мы будем использовать первый метод, а в п. 6 применим второй метод.

Из (8.74) и (8.81) видно, что плотность тока $J = 1/2 \mathcal{J} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}$ имеет амплитуду

$$\tilde{J} = \frac{N_e e^2 \tau}{m^*} \left[\frac{1 - i\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \right] \tilde{\mathcal{E}} \equiv \sigma^* \tilde{\mathcal{E}} \equiv (\sigma + i\omega \Delta\epsilon) \tilde{\mathcal{E}}, \quad (8.82)$$

где σ^* — комплексная проводимость; σ — вклад в действительную проводимость, обусловленный движением электронов, и $\Delta\epsilon$ — вклад в диэлектрическую проницаемость, возникающий за счет движения электронов. Здесь используются координатные оси, соответствующие главным осям, так что \tilde{J} и $\tilde{\mathcal{E}}$ — компоненты векторов, параллельные главной оси. В общем случае σ^* имеет три различных значения вдоль разных главных осей. Из (8.82) выражение для σ имеет вид

$$\sigma = \frac{N_e e^2}{m^*} \frac{\tau}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad (8.83)$$

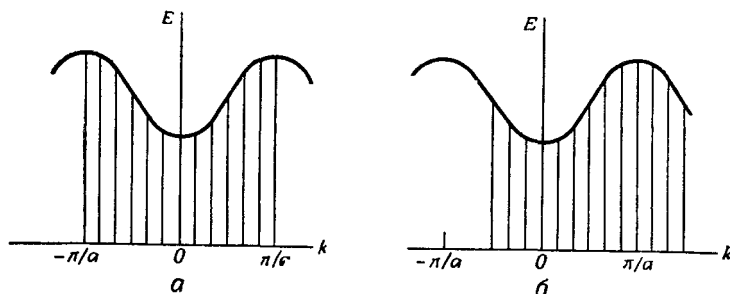
а на фиг. 8.14 построен график этой функции. Когда $\hbar\omega$ больше энергии, необходимой для осуществления межзонных переходов, проводимость сильно возрастает, и внутризонным поглощением или поглощением на свободных носителях обычно пренебрегают по сравнению с межзонным. Эта тема будет рассмотрена в § 4 настоящей главы.

Определим теперь ток, возникающий при наложении постоянного поля, для случая заполненной энергетической зоны. Фиг. 8.15, *а* иллюстрирует случай заполненной зоны в отсутствие поля. Заселенность состояний показана только для интервала значений k от $-\pi/a$ до $+\pi/a$, поскольку электрон со значением k ,



Фиг. 8.14. Зависимость проводимости от частоты, обусловленная внутризонным поглощением или поглощением на свободных носителях.

равным $k_0 + 2\pi/a$, неотличим от электрона со значением k , равным k_0 . При наложении поля занятые состояния смещаются вправо, как показано на фиг. 8.15, *б*. В отсутствие поля тока нет.



Фиг. 8.15. Заселенность энергетических состояний электрона в заполненной зоне.

а — в отсутствие поля; *б* — при наличии поля.

При наложении поля электроны во вновь занятых состояниях между π/a и $2\pi/a$ неотличимы от электронов в ранее занятых состояниях между $-\pi/a$ и 0 . Отсюда заключаем, что когда поле включается, тока нет.

5. Дырки

Из (8.80) видно, что, когда зона заполнена,

$$\mathbf{J} = -\frac{e}{V} \sum_i \langle \mathbf{v} \rangle_i = 0. \quad (8.84)$$

Предположим, что у потолка зоны не хватает одного электрона, как было бы в случае валентной зоны, когда электрон переходит

из валентной зоны в зону проводимости. Тогда ток равен

$$\mathbf{J} = -\frac{e}{V} \sum_{i \neq p} \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_i, \quad (8.85)$$

где p -й электрон удален. Прибавим и вычтем член для p -го электрона в выражении (8.85):

$$\mathbf{J} = -\frac{e}{V} \sum_{i \neq p} \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_i - \frac{e}{V} \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_p + \frac{e}{V} \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_p = -\frac{e}{V} \sum_i \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_i + \frac{e}{V} \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_p. \quad (8.86)$$

Поскольку ток для заполненной зоны равен нулю, видно, что ток для зоны, в которой не хватает p -го электрона, равен

$$\mathbf{J} = \frac{e}{V} \langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_p. \quad (8.87)$$

Можно считать, что ток, определяемый выражением (8.87), создается частицей с зарядом $+e$, имеющей скорость, а, следовательно, и эффективную массу, те же, что и электрон перед его удалением из зоны. Эта частица называется дыркой. Поскольку эффективная масса у потолка зоны отрицательна, эффективная масса дырок m_h^* определяется как

$$\frac{1}{(m_h^*)_{\alpha\beta}} \equiv -\frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k_\alpha \partial k_\beta}, \quad (8.88)$$

т. е. отличается от эффективной массы электрона (8.64) знаком минус. Поэтому из (8.74) видно, что дрейфовая скорость $\langle \bar{\mathbf{v}} \rangle_h = = 1/2 \langle \tilde{\mathbf{v}} \rangle_h e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}$ для дырок имеет амплитуду

$$\langle \tilde{\mathbf{v}} \rangle_h = \left[\frac{1 - i\omega\tau_h}{1 + (\omega\tau_h)^2} \right] \frac{e\tau_h}{m_h^*} \tilde{\mathcal{E}}, \quad (8.89)$$

где индекс h относится к дырке. При выводе (8.74) допускалось, что координатные оси совпадают с главными осями, так что $\langle \tilde{\mathbf{v}} \rangle_h$ и $\tilde{\mathcal{E}}$ — компоненты векторов вдоль главной оси. Аналогично, m_h есть компонента тензора эффективной массы вдоль той же оси.

Полный ток, возникающий при наложении низкочастотного поля, для которого $\omega\tau_e, \omega\tau_h \ll 1$, когда существуют как электроны у дна зоны проводимости, так и дырки у потолка валентной зоны, равен

$$\tilde{\mathbf{J}} = \left(\frac{N_e \tau_e}{m_e^*} + \frac{N_h \tau_h}{m_h^*} \right) e^2 \tilde{\mathcal{E}} = (N_e \mu_e + N_h \mu_h) e \tilde{\mathcal{E}}, \quad (8.90)$$

где индекс e относится к электрону, N_e — число электронов проводимости в единице объема, N_h — число дырок в единице объема, e — заряд электрона.

6. Плотность тока из уравнения Больцмана

В § 3, п. 4 и 5 была определена плотность тока путем вычисления тока для одного электрона и суммирования по всем электронам. При этом допускалось, что время между столкновениями τ не меняется со временем. Однако при движении электрона его энергия меняется и в общем случае τ есть функция энергии. Чтобы избежать этого затруднения, рассмотрим фиксированный интервал энергии и определим ток, который возникает вследствие изменения плотности заряда, приходящегося на этот интервал. Полный ток получится интегрированием по энергии при допущении, что τ — функция энергии.

Плотность заряда $d\xi$, создаваемая электронами проводимости в малом объеме \mathbf{k} -пространства, равна

$$d\xi = -N_V e \rho_{22}(\mathbf{k}) d^3k, \quad (8.91)$$

где d^3k — элемент объема в \mathbf{k} -пространстве, равный $dk_x dk_y dk_z$; $\rho_{22}(\mathbf{k})$ — диагональный элемент оператора плотности в зоне проводимости (индекс 2 относится к зоне проводимости), равный вероятности того, что электрон будет обнаружен в единице объема в \mathbf{k} -пространстве в зоне проводимости; N_V — число электронов в единице объема в координатном пространстве.

Плотность тока, создаваемая этим элементом заряда, равна

$$d\mathbf{J} = \langle \mathbf{v}(\mathbf{k}) \rangle d\xi. \quad (8.92)$$

Функция $\langle \mathbf{v}(\mathbf{k}) \rangle$ есть скорость для данного значения \mathbf{k} , определяемая выражением (8.57).

Под действием поля величина ρ_{22} меняется вследствие движения в \mathbf{k} -пространстве и, согласно (8.55), имеем

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} = \frac{e}{\hbar} \mathcal{E} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{22}, \quad (8.93)$$

где \mathcal{E} — приложенное электрическое поле. Уравнение (8.55) выведено для электрона, движущегося без столкновений, и являлось следствием допущения, что $T_1 \rightarrow \infty$ в выражении (1.36). При наличии столкновений время T_1 конечно, так что выражение (8.93) будет иметь вид

$$\frac{\partial \rho_{22}}{\partial t} + \frac{\rho_{22} - \rho_{22}^e}{T_1} = \frac{e}{\hbar} \mathcal{E} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{22}, \quad (8.94)$$

где T_1 — время релаксации и ρ_{22}^e — равновесное значение. Далее в этом разделе мы свяжем T_1 с постоянной времени τ — временем между столкновениями. При наложении низкочастотного поля (т. е. при $\omega T_1 \ll 1$) в стационарном состоянии имеем уравнение

$$\frac{\rho_{22} - \rho_{22}^e}{T_1} = \frac{e}{\hbar} \mathcal{E} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{22}, \quad (8.95)$$

которое известно как уравнение Больцмана. В первом порядке по полю величина ρ_{22} в правой части уравнения (8.95) берется равной равновесному значению, поскольку в правой части стоит множитель \mathcal{E} .

Теперь можно получить выражение для плотности тока как функции приложенного поля. Из (8.91) и (8.92) имеем

$$\mathbf{J} = -eN_V \int d^3k \langle \mathbf{v}(\mathbf{k}) \rangle \rho_{22}(\mathbf{k}), \quad (8.96)$$

где из (8.95)

$$\rho_{22}(\mathbf{k}) = \frac{eT_1}{\hbar} \mathcal{E} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{22}^e + \rho_{22}^e. \quad (8.97)$$

В отсутствие поля ток \mathbf{J} равен нулю, так что член ρ_{22}^e в правой части (8.97) не дает вклада в плотность тока и поэтому может быть опущен.

Из (8.57) имеем

$$\langle \mathbf{v}(\mathbf{k}) \rangle = \frac{1}{\hbar} \nabla_{\mathbf{k}} E, \quad (8.57)$$

где E — энергия электрона. Комбинация (8.57), (8.96) и (8.97) дает

$$\mathbf{J} = -\frac{N_V e^2}{\hbar} \int d^3k (\nabla_{\mathbf{k}} E) (\mathcal{E} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{22}^e) T_1, \quad (8.98)$$

причем T_1 входит под знак интеграла, так как в общем случае T_1 есть функция E .

В приложении 13 будет показано, что выражение (8.98) можно переписать в виде

$$J_{\alpha} = \frac{N_e e^2}{m_{\alpha}^*} \langle T_1 \rangle \mathcal{E}_{\alpha}, \quad (8.99)$$

где \mathcal{E}_{α} — электрическое поле вдоль направления α , которое совпадает с главной осью; m_{α}^* — эффективная масса у дна зоны проводимости вдоль того же направления; N_e — число электронов проводимости в единице объема, и

$$\langle T_1 \rangle = \frac{\int_0^{\infty} T_1 E^{3/2} \rho_{22}^e dE}{\int_0^{\infty} E^{3/2} \rho_{22}^e dE}. \quad (8.100)$$

При сравнении (8.82) и (8.99) можно видеть, что оба эти выражения совпадут для сигнала низкой частоты, если принять, что среднее время между столкновениями τ равно $\langle T_1 \rangle$. Если T_1 не

является функцией E , имеем $\tau = T_1$. Выражение (8.100) указывает приемлемый путь к усреднению константы T_1 , когда T_1 есть функция энергии электрона.

§ 4. МЕЖЗОННЫЕ ЭФФЕКТЫ

Рассмотрим теперь случай, когда энергия фотонов достаточно велика, чтобы вызвать переходы из валентной зоны в зону проводимости. В полупроводниках это соответствует длинам волн, которые лежат в инфракрасной или видимой области спектра. Дипольное приближение для этих длин волн будет либо сомнительным, либо недействительным, поэтому будем использовать гамильтониан

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2m} (\mathbf{p} - q\mathbf{A})^2 + \mathcal{V}^o, \quad (8.101)$$

где принято $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ и \mathcal{V}^o — потенциал поля для электрона в кристалле. Плотность тока для N_V заряженных частиц в единице объема есть

$$\mathbf{J} = qN_V \langle \mathbf{v} \rangle$$

и для гамильтониана \mathcal{H} , определяемого выражением (8.101), оператор скорости связан с каноническим импульсом \mathbf{p} соотношением, приведенным в гл. 2, § 2:

$$\mathbf{v} = \frac{1}{m} (\mathbf{p} - q\mathbf{A}). \quad (8.102)$$

Следовательно, плотность тока равна

$$\mathbf{J} = q \frac{N_V}{m} \langle \mathbf{p} - q\mathbf{A} \rangle. \quad (8.103)$$

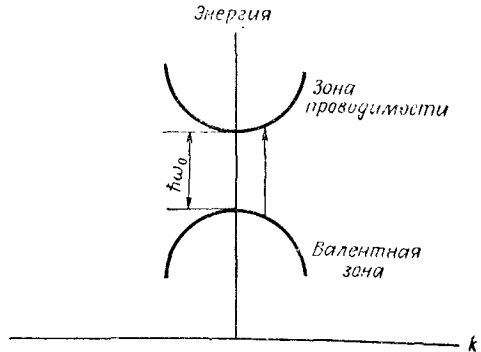
Проблема прямых переходов из валентной зоны в зону проводимости, происходящих при поглощении излучения, будет излагаться с помощью оператора плотности, и будут выведены уравнения, подобные уравнениям гл. 2, которые свяжут ток и поле. Мы рассмотрим также не прямые переходы, при которых взаимодействуют поле, электроны и колебания решетки.

1. Прямые переходы

В этом разделе будет получено выражение для проводимости, создаваемой прямыми переходами между энергетическими зонами. Прямой переход — это переход, для которого величина \mathbf{k} для конечного состояния электрона приблизительно та же, что и для начального состояния, как показано на фиг. 8.16. Чтобы произошел такой переход, энергия фотона должна быть равна

или больше, чем энергетическая щель между зонами $\hbar\omega_0$. Поэтому следует ожидать, что проводимость будет равна нулю для энергий фотона, меньших $\hbar\omega_0$, и отлична от нуля для энергий выше $\hbar\omega_0$. Обратная картина имеет место в случае проводимости, обусловленной поглощением на свободных носителях, которая имеет максимум для постоянного поля и уменьшается с увеличением частоты. На фиг. 8.25 показано инфракрасное поглощение для арсенида галлия, где при энергиях ниже 1,45 эв имеется поглощение на свободных носителях, а выше 1,45 эв преобладают межзонные переходы.

Наш метод анализа будет близок к процедуре, использованной в гл. 2, § 4, п. 2 при выводе уравнения движения для электрического дипольного перехода между двумя дискретными уровнями, т. е. мы сначала выразим плотность тока через матричные элементы оператора плотности. Это уравнение вместе с выражением для гамильтониана дает дифференциальное уравнение второго порядка для плотности тока как функции времени. Единственная значительная разница между нашей проблемой и электрическим дипольным переходом, рассмотренным в гл. 2, заключается в том, что теперь мы имеем дело с непрерывным набором собственных состояний, так что потребуются интегрирование в \mathbf{k} -пространстве. Из (1.41) и (8.103) следует, что выражение для плотности тока содержит двойной интеграл по \mathbf{k} -пространству:



Фиг. 8.16. Прямой межзонный переход.

$$\mathbf{J} = \frac{qN_V}{m} \langle \mathbf{p} - q\mathbf{A} \rangle \sim \int \int d^2k d^3k' \sum_{B, B'} \rho_{BB'}(\mathbf{k}\mathbf{k}') (\mathbf{p} - q\mathbf{A})_{\mathbf{k}'B', \mathbf{k}B}, \quad (8.104)$$

где

$$\begin{aligned} \rho_{BB'}(\mathbf{k}\mathbf{k}') &= \langle \mathbf{k}B | \rho | \mathbf{k}'B' \rangle, \\ (\mathbf{p} - q\mathbf{A})_{\mathbf{k}'B', \mathbf{k}B} &= \langle \mathbf{k}'B' | \mathbf{p} - q\mathbf{A} | \mathbf{k}B \rangle. \end{aligned} \quad (8.105)$$

Переходя от (1.41) к (8.104), дополнительно вводим суммирование по энергетическим зонам B и B' , поскольку для данного значения \mathbf{k} может существовать много различных энергетических зон.

Если расписать $\langle \mathbf{k}' B' | \rho | \mathbf{k} B \rangle$ как интеграл по пространственным координатам, то из вида функций Блоха имеем

$$\langle \mathbf{k}', B' | \rho | \mathbf{k}, B \rangle = \int_F dV \phi(\mathbf{r}) e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{r}}, \quad (8.106)$$

где $\phi(\mathbf{r})$ — периодичная функция с периодом решетки. Поскольку экспоненциальные функции ортогональны при интегрировании по всему основному домену, этот интеграл равен нулю, если только не выполняется равенство $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$ [2].

Аналогично, если рассмотрим поле, представляющее собой бегущую волну вида

$$\mathbf{A} = \frac{\tilde{\mathbf{A}}}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}, \quad (8.107)$$

где $\tilde{\mathbf{A}}$ меняется как $e^{-\beta\cdot\mathbf{r}}$, то $\langle \mathbf{k}', B' | \mathbf{A} | \mathbf{k}, B \rangle$ можно записать в виде

$$\langle \mathbf{k}', B' | \tilde{\mathbf{A}} | \mathbf{k}, B \rangle = \int dV \phi'(\mathbf{r}) e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}'+\beta)\cdot\mathbf{r}}, \quad (8.108)$$

где функция $\phi'(\mathbf{r})$ имеет периодичность решетки. Мы знаем, что $|\mathbf{k}|$ и $|\mathbf{k}'|$ — величины порядка некоторой дробной части от $2\pi/a$, в то время как $|\beta| \sim 2\pi/\lambda$, где λ — длина волны сигнала. Для излучения оптической частоты $\lambda \gg a$, так что интеграл в (8.108) также равен нулю, если не выполняется приближенное равенство $\mathbf{k} \approx \mathbf{k}'$.

Отсюда ясно, почему поглощение фотонов оптических частот ведет к прямым переходам. Постоянная β , пропорциональная импульсу излучения, мала по сравнению с обратной величиной периода решетки, так что закон сохранения импульса (т. е. $\mathbf{k} - \mathbf{k}' + \beta = 0$) приводит к условию

$$\mathbf{k} \approx \mathbf{k}'. \quad (8.109)$$

Только в том случае, когда длина волны фотона сравнима с периодом решетки, как это было бы в случае мягких рентгеновских лучей, поглощение фотона будет вызывать заметное изменение импульса электрона.

В результате выполнения (8.109) двойной интеграл в \mathbf{k} -пространстве в (8.104) приводится к однократному интегралу

$$\mathbf{J} \approx \frac{qN_V}{m} \int d^3k \sum_{BB'} (\rho_{BB'}) (\mathbf{p} - q\mathbf{A})_{\mathbf{k}B', \mathbf{k}B}, \quad (8.110)$$

где

$$\rho_{BB'} \equiv \rho_{BB'}(\mathbf{k}\mathbf{k}).$$

Будем рассматривать только переходы между валентной зоной, соответствующей $B, B' = 1$, и зоной проводимости, соответствующей $B, B' = 2$. Тогда (8.110) принимает вид

$$\mathbf{J} = \frac{qN_V}{m} \int d^3k \{ \rho_{11} \langle \mathbf{k}1 | \mathbf{p} - q\mathbf{A} | \mathbf{k}1 \rangle + \rho_{22} \langle \mathbf{k}2 | \mathbf{p} - q\mathbf{A} | \mathbf{k}2 \rangle + \rho_{21} \langle \mathbf{k}1 | \mathbf{p} - q\mathbf{A} | \mathbf{k}2 \rangle + \rho_{12} \langle \mathbf{k}2 | \mathbf{p} - q\mathbf{A} | \mathbf{k}1 \rangle \}. \quad (8.111)$$

Первые два члена в подынтегральном выражении в (8.111) дают токи, обусловленные наличием скорости у электрона, связанной с данным энергетическим состоянием, последние два члена относятся к межзонным переходам. Если энергия фотона больше энергетической щели между зонами, то ρ_{21} и ρ_{12} имеют резонансные знаменатели, и преобладают последние два члена.

Уравнение (8.111) можно далее упростить, замечая, что для $\lambda \gg a$

$$\langle \mathbf{k}1 | \mathbf{A} | \mathbf{k}2 \rangle \approx 0$$

вследствие ортогональности собственных функций. Поэтому (8.111) можно переписать в виде

$$\mathbf{J} = \frac{qN_V}{m} \int d^3k (\rho_{21}\mathbf{M} + \rho_{12}\mathbf{M}^*), \quad (8.112)$$

где

$$\mathbf{M} \equiv \langle \mathbf{k}1 | \mathbf{p} | \mathbf{k}2 \rangle. \quad (8.113)$$

Удобно ввести плотность тока на единицу объема в \mathbf{k} -пространстве \mathbf{j} , так что

$$\mathbf{J} = \int d^3k \mathbf{j}. \quad (8.114)$$

Из (8.112) и (8.114) имеем

$$\mathbf{j} = \frac{qN_V}{m} (\rho_{21}\mathbf{M} + \rho_{12}\mathbf{M}^*) = \frac{qN_V}{m} (\rho_{21}\mathbf{M} + \text{компл. сопр.}). \quad (8.115)$$

Уравнение (8.115) завершает первую половину анализа, в результате которого получено выражение для плотности тока через матричные элементы оператора плотности. Следующий шаг будет состоять в нахождении вида гамильтониана взаимодействия. Из (8.101) имеем

$$\mathcal{H}' = -\frac{q}{m} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}^2. \quad (8.116)$$

Условие сохранения импульса (8.109) применим к матричному элементу

$$\mathcal{H}'_{\mathbf{k}'B', \mathbf{k}B} = \langle \mathbf{k}'B' | \mathcal{H}' | \mathbf{k}B \rangle, \quad (8.117)$$

так что единственными отличными от нуля матричными элементами для \mathcal{H}' будут элементы с $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$. Если определим $\mathcal{H}'_{BB'}$ как

$$\mathcal{H}'_{BB'} \equiv \mathcal{H}'_{\mathbf{k}B, \mathbf{k}B'}, \quad (8.118)$$

то матрицу \mathcal{H}' можно переписать в виде

$$\mathcal{H}' = \begin{pmatrix} \mathcal{H}'_{11} & \mathcal{H}'_{12} \\ \mathcal{H}'_{21} & \mathcal{H}'_{22} \end{pmatrix}, \quad (8.119)$$

где индекс 1 относится к валентной зоне, а индекс 2 — к зоне проводимости. Диагональные элементы в матрице \mathcal{H}' вызывают смещение частоты перехода, которое обычно мало, и поэтому могут быть отброшены. Недиагональные элементы ответственны за межзонные переходы.

Из (8.116) найдем матричный элемент \mathcal{H}'_{21}

$$\mathcal{H}'_{21} = -\frac{q}{m} \mathbf{A} \cdot \mathbf{M}^*, \quad (8.120)$$

где \mathbf{M} определяется выражением (8.113). Член с \mathbf{A}^2 в выражении для \mathcal{H}' не дает вклада в этот матричный элемент при $\lambda \gg a$ вследствие ортогональности собственных функций. Поэтому матричное представление для интересующего нас гамильтониана \mathcal{H}' имеет вид

$$\mathcal{H}' = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{q}{m} A_\alpha M_\alpha \\ -\frac{q}{m} A_\alpha M_\alpha^* & 0 \end{pmatrix}, \quad (8.121)$$

где подразумевается суммирование по повторяющемуся индексу α .

Уравнения (8.115) и (8.121) идентичны по форме уравнениям (2.28) и (2.27) соответственно. Поэтому решение уравнений (2.28) и (2.27), даваемое выражением (2.35), можно непосредственно приложить к настоящей задаче¹⁾

$$\ddot{j}_\alpha + \frac{2}{\tau_{21}} \dot{j}_\alpha + \omega_{21}^2 j_\alpha = -\frac{2\omega_{21} q^2 N_V}{m^2 \hbar} (\rho_{22} - \rho_{11}) M_\alpha M_\beta^* A_\beta, \quad (8.122)$$

где индексы α и β относятся к координатным направлениям и правая часть (8.122) суммируется по повторяющемуся индексу β .

¹⁾ Мы видим, что правая часть уравнения (8.122) пропорциональна $(\rho_{22} - \rho_{11})$. Вследствие принципа запрета вероятность перехода $2 \rightarrow 1$ пропорциональна $\rho_{22}(1 - \rho_{11})$, т. е. если $\rho_{11} = 1$, то не может быть никаких переходов в состояние 1. Однако если учесть переходы в обоих направлениях, то получим

$$\rho_{22}(1 - \rho_{11}) - \rho_{11}(1 - \rho_{22}) = \rho_{22} - \rho_{11},$$

так что уравнение (8.122) справедливо в том виде, в котором оно приведено.

Произведение $M_\alpha M_\beta^*$ есть тензор второго ранга, и если выбрать оси вдоль главных осей этого тензора, то в (8.122) надо произвести замену

$$M_\alpha M_\beta^* A_\beta \rightarrow |M_\alpha|^2 A_\alpha. \quad (8.123)$$

Диагональные элементы оператора плотности дают вероятность заселенности. Например, вероятность того, что электрон находится в валентной зоне в элементе объема d^3k в \mathbf{k} -пространстве, есть $\rho_{11}d^3k$, где ρ_{11} дается выражением (П.13.8) в приложении 13. При комнатной температуре в полупроводнике с не слишком большой концентрацией примесей вероятность заселенности состояния высока в валентной зоне и низка в зоне проводимости. Таким образом, из (П.13.8) и (П.13.9) приложения 13 найдем, что

$$(\rho_{22} - \rho_{11}) = -\frac{2N_V^{-1}}{(2\pi)^3}. \quad (8.124)$$

Из уравнений (8.122) — (8.124) видно, что стационарное выражение для \tilde{j}_α есть

$$\tilde{j}_\alpha = \frac{ie^2 |M_\alpha|^2 \tilde{\mathcal{E}}_\alpha}{2\pi^3 m^2 \hbar \omega} \frac{\omega_{21}(\omega_{21}^2 - \omega^2 - 2i\omega/\tau_{21})}{(\omega_{21}^2 - \omega^2)^2 + (2\omega/\tau_{21})^2}, \quad (8.125)$$

где

$$j_\alpha = \frac{\tilde{j}_\alpha}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.},$$

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_\alpha &= \frac{\tilde{\mathcal{E}}_\alpha}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.} = -\frac{\partial A_\alpha}{\partial t} = \\ &= -i\omega \frac{\tilde{A}_\alpha}{2} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.} \end{aligned}$$

Действительная часть (8.125) дает вклад в проводимость, а мнимая — в диэлектрическую постоянную. Чтобы вычислить проводимость, нужно рассматривать только действительную часть (8.125).

Определим теперь проводимость, создаваемую межзонными переходами в случае полупроводника, для которого энергия фотона падающего излучения близка к ширине энергетической щели между зонами. Фиг. 8.16 иллюстрирует рассматриваемый тип перехода. Переход показан вертикальной линией, поскольку начальное и конечное значения \hbar равны.

Проводимость есть отношение плотности тока к электрическому полю. Плотность тока J_α дается выражением

$$J_\alpha = \int d^3k j_{\alpha},$$

и поскольку j_α выражается через ω_{21} , необходимо представить и d^3k через ω_{21} , с тем чтобы можно было выполнить интегрирование. В приложении 10 показано, что

$$d^3k = 4\pi \left(\frac{2\mu_x^* \mu_y^* \mu_z^*}{\hbar^3} \right)^{1/2} (\omega_{21} - \omega_0)^{1/2} d\omega_{21}, \quad (8.126)$$

где $\hbar\omega_0$ — минимальная энергия, разделяющая зоны,

$$\frac{1}{\mu_\alpha^*} \equiv \frac{1}{m_\alpha^*(2)} - \frac{1}{m_\alpha^*(1)} \quad (8.127)$$

и $m_\alpha^*(2)$ равна α -компоненте эффективной массы в зоне проводимости, причем направление α совпадает с главной осью; $m_\alpha^*(1)$ равна α -компоненте эффективной массы в валентной зоне. Из (8.126) и действительной части (8.125) получим

$$J_\alpha = \frac{2}{\pi} G_\alpha \mathcal{E}_\alpha \int \frac{(2\omega_{21}/\tau_{21}) (\omega_{21} - \omega_0)^{1/2}}{(\omega_{21}^2 - \omega^2)^2 + (2\omega/\tau_{21})^2} d\omega_{21}, \quad (8.128)$$

где

$$G_\alpha \equiv \frac{e^2 |M_\alpha|^2}{\pi^2 m^2 \hbar^{5/2}} (2\mu_x^* \mu_y^* \mu_z^*)^{1/2}. \quad (8.129)$$

В (8.128) пределы интегрирования по ω_{21} — от ω_0 до максимальной разности частот между зоной проводимости и валентной зоной. Однако подынтегральное выражение имеет резкий пик вблизи $\omega_{21} = \omega$ и, таким образом, интеграл существенно не изменится при замене пределов интегрирования на пределы от $-\infty$ до $+\infty$. Тогда получим

$$\begin{aligned} J_\alpha &= G_\alpha \frac{(\omega - \omega_0)^{1/2}}{\omega} \mathcal{E}_\alpha, & \omega &\geq \omega_0, \\ J_\alpha &= 0, & \omega &\leq \omega_0. \end{aligned} \quad (8.130)$$

Из (8.130) следует

$$\begin{aligned} \sigma_\alpha &= G_\alpha \frac{(\omega - \omega_0)^{1/2}}{\omega}, & \omega &\geq \omega_0, \\ \sigma_\alpha &= 0, & \omega &\leq \omega_0, \end{aligned} \quad (8.131)$$

где σ_α — проводимость вдоль направления α .

Следствием конечной проводимости является экспоненциальное затухание излучения с расстоянием. Коэффициент поглощения Γ определяется таким образом, что вектор Пойнтинга уменьшается до $1/e$ от своей начальной величины на расстоянии, равном Γ^{-1} . Для поля, поляризованного в направлении α , связь между Γ и σ_α определяется соотношением

$$\Gamma = \frac{\sigma_\alpha}{\eta e_0 c}, \quad (8.132)$$

где η — показатель преломления в направлении α , c — скорость света в свободном пространстве и ϵ_0 — диэлектрическая проницаемость вакуума. Общий вид коэффициента поглощения, обусловленного прямыми межзонными переходами, показан на фиг. 8.17. В окрестности точки $\omega \approx \omega_0$ коэффициент поглощения меняется приблизительно как $\sqrt{\omega - \omega_0}$.

Можно оценить матричные элементы $|M_\alpha|^2$ и, следовательно, G_α . Точно такое же правило сумм, как правило сумм для оператора дипольного момента, даваемое выражением (3.21), существует и для оператора импульса. Сила осциллятора f_B для межзонных переходов из валентной зоны в B -ю энергетическую зону определяется выражением

$$f_B \equiv \frac{2|M_B|^2}{m\hbar\omega}, \quad (8.133)$$

где $\hbar\omega$ — энергия фотона излучения, вызывающего переход, и

$$|M_B|^2 \equiv |\langle \mathbf{k}, B | \mathbf{p} | \mathbf{k}, 1 \rangle|^2. \quad (8.134)$$

Для электромагнитного поля, поляризованного вдоль направления α , правило сумм имеет вид [3]

$$\sum_{B \neq 1} (f_B)_\alpha = 1 - \frac{m}{m_\alpha^*}, \quad (8.135)$$

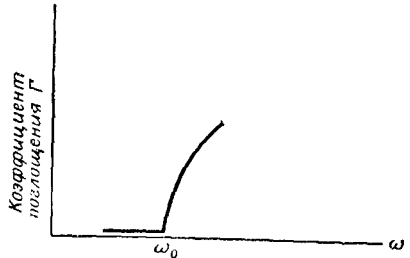
где m_α^* — α -компонента эффективной массы электрона в валентной зоне. В общем случае преобладают переходы в зону проводимости, так что в левую часть (8.135) войдет только один член. Если принять, что эффективная масса электрона вблизи потолка валентной зоны приблизительно равна массе свободного электрона со знаком минус, то из (8.133) и (8.135) получим

$$|M_\alpha|^2 \approx m\hbar\omega. \quad (8.136)$$

Тогда, согласно (8.129) и (8.131), проводимость имеет значение

$$\sigma_\alpha \approx \frac{e^2 m^{1/2}}{2\pi^2 \hbar^{3/2}} \sqrt{\omega - \omega_0} = 1,1 \cdot 10^{-3} \sqrt{\omega - \omega_0}, \quad \omega \geq \omega_0, \quad (8.137)$$

где эффективная масса взята равной массе свободного электрона, так что $\mu_x^* = \mu_y^* = \mu_z^* = m/2$. Для полупроводника с $\eta = 4$ из (8.132) получим $\Gamma \approx 10^6 \text{ м}^{-1}$ для фотона, энергия которого на 0,05 эв превышает минимальную ширину щели между зонами.



Фиг. 8.17. Коэффициент поглощения Γ для прямых межзонных переходов.

Это значит, что падающее излучение затухает до $1/e$ от своей начальной величины на расстоянии порядка 10^{-6} м.

При выводе выражения для проводимости допускалось, что $|M_\alpha|^2$ либо не зависит от частоты или слабо меняется для $\omega \approx \omega_0$. В общем случае можно записать

$$|M_\alpha|^2 \approx |M_\alpha|_0^2 + \frac{\partial |M_\alpha|^2}{\partial \omega} (\omega - \omega_0), \quad (8.138)$$

где оставлены первые два члена в разложении вблизи $\omega = \omega_0$. Если $|M_\alpha|_0^2 = 0$, то переход называется запрещенным переходом, и для этого случая из (8.125) и (8.126) находим

$$\begin{aligned} J_\alpha &= G'_\alpha \frac{(\omega - \omega_0)^{3/2}}{\omega} \mathcal{E}_\alpha, & \omega &\geq \omega_0, \\ J_\alpha &= 0, & \omega &\leq \omega_0, \end{aligned} \quad (8.139)$$

где

$$G'_\alpha \equiv \frac{1}{|M_\alpha|^2} \frac{\partial |M_\alpha|^2}{\partial \omega} G_\alpha. \quad (8.140)$$

Таким образом, для запрещенного перехода коэффициент поглощения пропорционален разности между энергией фотона и шириной энергетической щели в степени $3/2$.

2. Непрямые переходы

В § 4, п. 1 был рассмотрен случай, когда значение \mathbf{k} для конечного состояния в зоне проводимости равно значению \mathbf{k} в начальном состоянии в валентной зоне. Прямые переходы преобладают, когда вершине валентной зоны соответствует такое же значение \mathbf{k} , что и дну зоны проводимости, как изображено на фиг. 8.16. Этот случай соответствует таким полупроводникам, как арсенид галлия (GaAs) и антимонид индия (InSb), а для Si и Ge примерный вид энергетической диаграммы показан на фиг. 8.18. Если частота излучения лежит в пределах $\omega_0 \leq \omega \leq \omega'_0$, переходы происходят только с изменением \mathbf{k} между начальным и конечным состояниями. Для случая $\omega \approx \omega_0$ возможный переход показан стрелкой на фиг. 8.18.

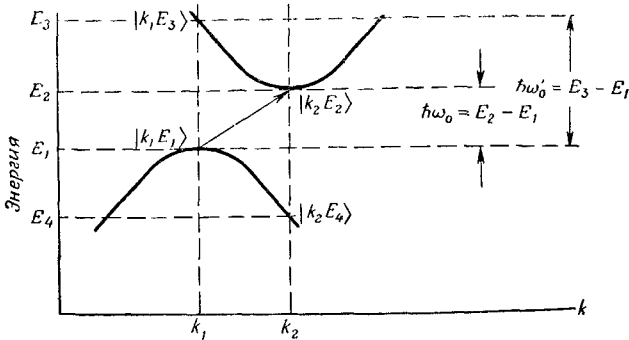
Оператор вида $Qe^{i\beta \cdot \mathbf{r}}$, где Q не зависит от \mathbf{r} , может иметь отличный от нуля матричный элемент $\langle \mathbf{k}'B' | Qe^{i\beta \cdot \mathbf{r}} | \mathbf{k}B \rangle$, если только

$$\mathbf{k} - \mathbf{k}' + \beta = 0. \quad (8.141)$$

Как уже обсуждалось в связи с соотношением (8.108), $|\beta| \ll |\mathbf{k}|$ для электромагнитных полей, так что $\mathbf{k}' \approx \mathbf{k}$, и происходят только прямые переходы. Однако если $\beta = \mathbf{k}_v$ соответствует фонону, то

k' может значительно отличаться от k , поскольку длина волны фонона сравнима с параметром решетки a . В § 7, п. 4 было отмечено, что выражение (8.141) известно как условие сохранения волнового вектора.

Рассмотрим теперь, какими способами может осуществляться переход из $|k_1 E_1\rangle$ в $|k_2 E_2\rangle$. В гл. 5 по отношению к многофотонным эффектам было отмечено, что для существования резонансного знаменателя необходимо, чтобы сохранялась энергия между начальными и конечными состояниями. Однако энергия не



Фиг. 8.18. Непрямые переходы.

сохраняется обязательно для каждого матричного элемента, участвующего в процессе, и это же условие выполняется для непрямых переходов в полупроводниках. С другой стороны, импульс должен сохраняться для каждого матричного элемента, или же элемент равен нулю.

Рассмотрим гамильтониан вида

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2, \tag{8.142}$$

где \mathcal{H}_1 и \mathcal{H}_2 — члены взаимодействия: \mathcal{H}_1 — энергия взаимодействия между электроном и фотоном, \mathcal{H}_2 — энергия взаимодействия между электроном и фононом. Член \mathcal{H}_1 связан только с вертикальными переходами, в то время как \mathcal{H}_2 вызывает изменение в k . Если в процессе участвуют один фотон и один фонон, то переход $|k_1 E_1\rangle \rightarrow |k_2 E_2\rangle$ может быть следствием произведения

$$\langle k_2 E_2 | \mathcal{H}_2 | k_1 E_3 \rangle \langle k_1 E_3 | \mathcal{H}_1 | k_1 E_1 \rangle \tag{8.143}$$

или произведения

$$\langle k_2 E_2 | \mathcal{H}_1 | k_2 E_4 \rangle \langle k_2 E_4 | \mathcal{H}_2 | k_1 E_1 \rangle. \tag{8.144}$$

Выражения (8.143) и (8.144) соответствуют единственно возможным путям для осуществления желаемых переходов с одним фотоном и одним фононом, пока переходы в другие энергетические

зоны исключаются. Вероятность перехода из $|k_1 E_1\rangle$ в $|k_2 E_2\rangle$ пропорциональна сумме квадратов величин (8.143) и (8.144).

Определим теперь частотную зависимость проводимости, создаваемой непрямыми переходами. Если детально проделать всю процедуру метода возмущения, как это было сделано в гл. 5, то найдем, что резонансный знаменатель вида

$$\frac{1}{\omega_{21} \pm \omega_v - \omega} \quad (8.145)$$

появится в выражении для недиагональных элементов оператора плотности и поэтому в выражение для j_α этот член войдет в качестве множителя. В (8.145) приняты следующие обозначения:

$$\begin{aligned} \hbar\omega_{21} &= E_2 - E_1, \\ \hbar\omega_v &\text{— энергия фонона,} \\ \hbar\omega &\text{— энергия фотона.} \end{aligned}$$

Переход $|k_1 E_1\rangle \rightarrow |k_2 E_2\rangle$ происходит с поглощением фотона и либо с поглощением, либо с испусканием фонона. В (8.145) знак плюс соответствует испусканию фонона, а знак минус — поглощению фонона. Если фонон поглощается, то резонанс имеет место, когда энергия перехода равна сумме энергий фотона и фонона. Если же фонон испускается, то резонанс имеет место, когда энергия перехода равна разности энергий фотона и фонона. Физический смысл выражения (8.145) заключается в том, что всякий раз, когда энергия в полном процессе сохраняется, компонента тока j_α велика.

Вблизи резонанса выражение для j_α имеет вид

$$j_\alpha = \frac{C}{\omega_{21} \pm \omega_v - \omega} \mathcal{E}_\alpha, \quad (8.146)$$

где C — функция вероятности заселенности и матричных элементов, определяемых выражениями (8.143) и (8.144)¹⁾, а поле \mathcal{E}_α входит в это выражение потому, что оно является множителем в \mathcal{H}_1 . Плотность тока J_α дается интегралом в \mathbf{k} -пространстве от j_α :

$$J_\alpha = \int \int d^3 k_1 d^3 k_2 j_\alpha, \quad (8.147)$$

где $d^3 k_1$ — объем в \mathbf{k} -пространстве в зоне проводимости, и $d^3 k_2$ — объем в \mathbf{k} -пространстве в валентной зоне. Для прямых переходов выражение (8.147) сводится к однократному интегралу, так как начальное и конечное значения \mathbf{k} одинаковы.

¹⁾ О вычислении этих матричных элементов см., например, раздел 13.5.2 в работе [3].

Поскольку j_α является функцией частоты, величины d^3k_1 и d^3k_2 также необходимо выразить через частоту. Этот вывод очень похож на приведенный в приложении 10 для случая прямых переходов; используя (П.10.3), а не (П.10.4), чтобы выразить d^3k через частоту, находим

$$\begin{aligned} d^3k_1 &= a (\omega_a - \omega_1)^{1/2} d\omega_1, \\ d^3k_2 &= b (\omega_2 - \omega_b)^{1/2} d\omega_2, \\ a &\equiv 4\pi \left(\frac{2m_x^*(1) m_y^*(1) m_z^*(1)}{\hbar^3} \right)^{1/2}, \\ b &\equiv 4\pi \left(\frac{2m_x^*(2) m_y^*(2) m_z^*(2)}{\hbar^3} \right)^{1/2}, \end{aligned} \quad (8.148)$$

где величины ω_1 , ω_2 , ω_a и ω_b показаны на фиг. 8.19, а $m_x^*(1)$ — эффективная масса в валентной зоне вдоль оси x . Из фиг. 8.19 следует, что

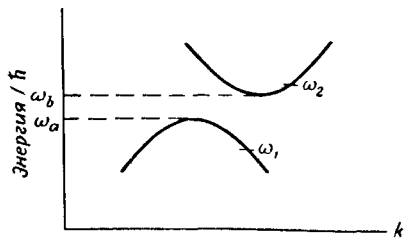
$\hbar(\omega_a - \omega_1)$ — приращение энергии ниже потолка валентной зоны,
 $\hbar(\omega_2 - \omega_b)$ — приращение энергии выше дна зоны проводимости.

Комбинация уравнений (8.146) — (8.148) дает

$$J_\sigma = abC\mathcal{E}_\alpha \int_{\omega_b}^{\omega_a} (\omega_a - \omega_1)^{1/2} d\omega_1 \int_{\omega_b}^{\omega_2} \frac{(\omega_2 - \omega_b)^{1/2}}{(\omega_2 - \omega_1) - \omega \pm \omega_v} d\omega_2, \quad (8.149)$$

где ω_{21} в (8.146) заменено эквивалентным выражением $\omega_{21} = \omega_2 - \omega_1$. Из фиг. 8.19 видно, что нижний предел ω_2 есть ω_b , а верхний предел ω_1 есть ω_a .

Подынтегральное выражение в интеграле по ω_2 резко возрастает вблизи $\omega_2 = \omega_1 + \omega \mp \omega_v$, и поэтому необходимо рассматривать только вклад в интеграл от полюса при $\omega_2 = \omega_1 + \omega \mp \omega_v$. Производя преобразование этого интеграла, следует заметить, что $C \rightarrow 0$ при $\omega_2 \rightarrow \infty$, поскольку функция C пропорциональна распределению Ферми — Дирака, и, таким образом, интеграл будет конечным при $\omega_2 \rightarrow \infty$. Поэтому интегрирование по ω_2 дает



Фиг. 8.19. Частоты, соответствующие непрямым переходам.

$$\begin{aligned} J_\alpha &= abC\mathcal{E}_\alpha \int_{\omega_b}^{\omega_a} (\omega_a - \omega_1)^{1/2} (\omega_1 + \omega \mp \omega_v - \omega_b)^{1/2} d\omega_1, \quad \omega_1 + \omega \mp \omega_v \geq \omega_b, \\ J_\alpha &= 0, \quad \omega_1 + \omega \mp \omega_v \leq \omega_b. \end{aligned} \quad (8.150)$$

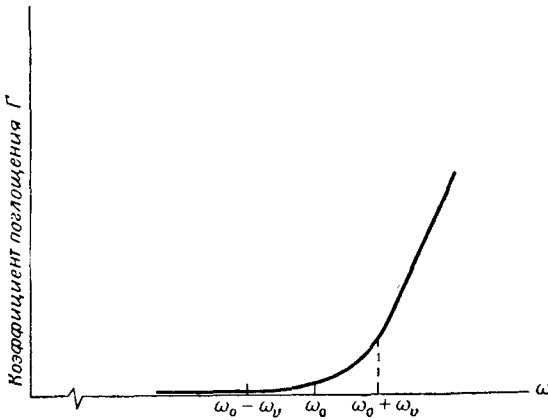
Так как $J_\alpha = 0$ для $\omega_1 \leq \omega_b - \omega \pm \omega_v$, то нижний предел в интеграле по ω_1 можно взять равным $(\omega_b - \omega \pm \omega_v)$, так что J_α записывается в виде

$$J_\alpha = abC\mathcal{E}_\alpha \int_{\omega_b - \omega \pm \omega_v}^{\omega_a} (\omega_a - \omega_1)^{1/2} (\omega_1 + \omega \mp \omega_v - \omega_b)^{1/2} d\omega_1. \quad (8.151)$$

Интегрирование выражения (8.151) дает желаемую связь между J_α и \mathcal{E}_α :

$$\begin{aligned} J_\alpha &= \frac{\pi}{8} abC\mathcal{E}_\alpha (\omega - \omega_0 \mp \omega_v)^2, & \omega &\geq \omega_0 \pm \omega_v, \\ J_\alpha &= 0, & \omega &\leq \omega_0 \pm \omega_v, \end{aligned} \quad (8.152)$$

где $\omega_0 \equiv \omega_b - \omega_b$ и $\hbar\omega_0$ — ширина минимальной энергетической щели между зонами.



Фиг. 8.20. Коэффициент поглощения Γ для непрямых межзонных переходов.

Постоянная C неодинакова для случая испускания и поглощения фонона, поэтому необходимо рассмотреть отдельно следующие частотные интервалы:

$$\begin{aligned} J_\alpha &= 0 & \omega &\leq \omega_0 - \omega_v, \\ J_\alpha &= C_a \mathcal{E}_\alpha (\omega - \omega_0 + \omega_v)^2, & \omega_0 - \omega_v &\leq \omega \leq \omega_0 + \omega_v, \\ J_\alpha &= C_a \mathcal{E}_\alpha (\omega - \omega_0 + \omega_v)^2 + & & \\ &+ C_e \mathcal{E}_\alpha (\omega - \omega_0 - \omega_v)^2, & \omega_0 + \omega_v &\leq \omega. \end{aligned} \quad (8.153)$$

При тепловом равновесии отношение постоянной C_e для эмиссии фонона к постоянной C_a для поглощения фонона характеризуется фактором Больцмана

$$\frac{C_e}{C_a} = e^{-\hbar\omega_v/kT}. \quad (8.154)$$

Эмиссия есть девозбуждение фонона, а поглощение — возбуждение фонона; таким образом, отношение вероятностей этих событий определяется отношением заселенностей состояния с фононом и основного состояния, т. е. фактором Больцмана.

На фиг. 8.20 показано поведение коэффициента поглощения, связанного с непрямыми межзонными переходами. Поглощение начинается тогда, когда энергия фотона равна разности между шириной энергетической щели $\hbar\omega_0$ и энергией фонона $\hbar\omega_v$. В области $\omega_0 - \omega_v \leq \omega \leq \omega_0 + \omega_v$ переходы вызываются поглощением фотона и фонона. В области $\omega_0 + \omega_v \leq \omega$ переходы могут происходить либо при поглощении фотона и фонона, либо при поглощении фотона и испускании фонона.

В общем случае частота фонона ω_v является функцией k_v , как и в случае акустических фононов. Величина ω_v , использованная в (8.153), соответствует $k_v = k_2 - k_1$, где $k_2 - k_1$ — разность значений k в конечном и начальном состояниях, как это и показано на фиг. 8.18.

§ 5. ФОТОПРОВОДИМОСТЬ

В § 3 настоящей главы рассматривались некоторые следствия внутризонного движения, а в § 4 изучались межзонные переходы. Фотопроводимость — явление, которое сочетает в себе оба эти эффекта, ибо это есть изменение проводимости в постоянном или низкочастотном поле вследствие переходов из зоны в зону.

Рассмотрим плотность тока, создаваемого под действием приложенного постоянного поля,

$$J = (N_e \mu_e + N_h \mu_h) e \mathcal{E}, \quad (8.90)$$

где e — заряд электрона; N_e — число электронов проводимости в единице объема; N_h — число валентных дырок в единице объема; μ_e и μ_h — подвижности электронов и дырок соответственно, измеренные вдоль направления, совпадающего с главной осью тензора эффективной массы; \mathcal{E} — постоянное электрическое поле; J — плотность тока. Параметры N_e и N_h вследствие межзонных переходов зависят от частоты и интенсивности инфракрасного или видимого излучения, падающего на кристалл. Мы приступим к вычислению зависимости проводимости для постоянного поля от плотности мощности падающего излучения оптической частоты и определим также фототок при постоянном поле. Фототок — это та компонента тока, которая обусловлена наложением постоянного или низкочастотного поля при освещении кристалла.

Вычислим N_e , приравнявая скорость поглощения фотонов к скорости изменения числа электронов проводимости. Это значит, что квантовый выход (к.в.) берется равным единице, т. е. каждый поглощенный фотон вызывает переход электрона из

валентной зоны в зону проводимости. Квантовый выход обычно близок к единице, но если мы хотим учесть, что (к. в.) $\neq 1$, необходимо просто умножить число поглощенных фотонов на (к. в.).

Полная скорость изменения величины N_e , вызываемого приложенным излучением, равна

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} + \frac{N_e - N_e^e}{T_e}, \quad (8.155)$$

где N_e^e — стационарная плотность электронов проводимости в отсутствие падающего излучения, T_e — время жизни свободных носителей, или время жизни электронов в зоне проводимости. Величина T_e определяется скоростью рекомбинации электронов и дырок, а также скоростью, с которой электроны захватываются примесями, как обсуждалось в § 2, п. 5 настоящей главы. Этот параметр является функцией температуры и может изменяться на много порядков. В сульфиде кадмия, например, T_e меняется в пределах 10^{-2} — 10^{-10} сек. При комнатной температуре типичное значение $T_e = 10^{-6}$ сек.

Если электронно-дырочная рекомбинация является единственным механизмом потери электронов проводимости, то $T_h' = T_e$, где T_h — время жизни дырок в валентной зоне. Однако при наличии ловушек T_h не обязательно равно T_e , ибо сечение захвата для дырок может отличаться от сечения захвата для электронов. Подробное обсуждение времени жизни дается Роузом [4].

При плотности мощности падающего излучения I , однородно освещающего кристалл, и при коэффициенте поглощения Γ мощность, поглощаемая единицей объема, равна ΓI . Поэтому число фотонов, поглощенных в единицу времени единицей объема, равно

$$\frac{\Gamma I}{\hbar\omega}. \quad (8.156)$$

Считая квантовый выход равным единице, можно приравнять друг другу выражения (8.155) и (8.156), и в стационарном состоянии получим

$$\frac{N_e - N_e^e}{T_e} = \frac{\Gamma I}{\hbar\omega}. \quad (8.157)$$

Аналогично, при поглощении фотона в валентной зоне появляется дырка, так что

$$\frac{N_h - N_h^e}{T_h} = \frac{\Gamma I}{\hbar\omega}. \quad (8.158)$$

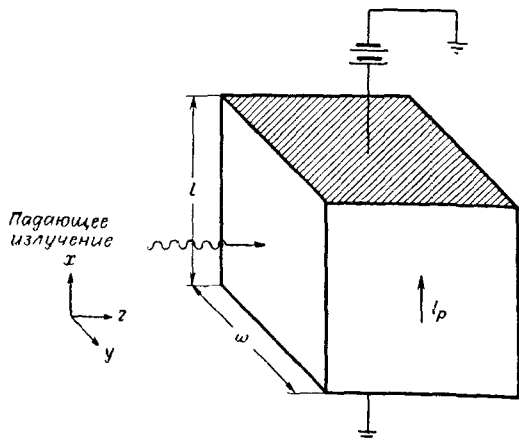
Подстановка (8.157) и (8.158) в выражение (8.90) дает

$$\tilde{J} = (N_e^e \mu_e + N_h^e \mu_h) e \tilde{\mathcal{E}} + (T_e \mu_e + T_h \mu_h) \left(\frac{\Gamma I}{\hbar\omega} \right) e \tilde{\mathcal{E}}, \quad (8.159)$$

где первый член в правой части является результатом равновесных концентраций, а второй член — фототок — появляется за счет падающего света. Из (8.159) видно, что увеличение проводимости $\Delta\sigma$ вследствие эффекта фотопроводимости равно

$$\Delta\sigma = (T_e\mu_e + T_h\mu_h) \frac{\Gamma I}{\hbar\omega} e. \quad (8.160)$$

Частотная зависимость величины $\Delta\sigma$ определяется частотной зависимостью Γ , которая в свою очередь зависит от того, является



Фиг. 8.21. Падение однородного излучения на кристалл полупроводника, к которому приложено постоянное смещение.

ли переход прямым или непрямым. Если квантовый выход не равен единице, то правую часть (8.160) нужно умножить на его величину (к. в.).

Фототок I_p часто записывается в виде

$$I_p = eGF, \quad (8.161)$$

где G — коэффициент усиления при фотопроводимости; F — число электронно-дырочных пар, создаваемых в единицу времени при поглощении света, которое равно числу фотонов, поглощаемых в единицу времени (для квантового выхода, равного единице). Отношение I_p/e есть число носителей, электронов и дырок, которые проходят между электродами в единицу времени, и, следовательно, G есть отношение числа носителей к числу создаваемых электронно-дырочных пар. Чтобы вычислить G , рассмотрим схему, показанную на фиг. 8.21. Ток I_p связан с плотностью

тока J соотношением

$$I_p = \omega \int_0^{\infty} J dz, \quad (8.162)$$

поэтому с помощью (8.159) найдем, что фототок равен

$$I_p = (T_e \mu_e + T_h \mu_h) \frac{e \mathcal{E} \omega \Gamma}{\hbar \omega} \int_0^{\infty} I dz. \quad (8.163)$$

Плотность мощности изменяется по закону

$$I = I_0 e^{-\Gamma z}, \quad (8.164)$$

где I_0 — плотность мощности на передней поверхности. Если размеры кристалла в направлении оси z значительно больше, чем Γ^{-1} , так что все излучение поглощается, то

$$I_p = (T_e \mu_e + T_h \mu_h) \frac{e \mathcal{E} \omega}{\hbar \omega} I_0. \quad (8.165)$$

Время пролета электрона между электродами T_{re} равно

$$T_{re} = \frac{l}{\mu_e \mathcal{E}}, \quad (8.166)$$

а время пролета дырок

$$T_{rh} = \frac{l}{\mu_h \mathcal{E}}. \quad (8.167)$$

Комбинируя (8.165) — (8.167), получаем

$$I_p = \left(\frac{T_e}{T_{re}} + \frac{T_h}{T_{rh}} \right) e \frac{\omega I_0}{\hbar \omega}. \quad (8.168)$$

Величина (ωI_0) — мощность падающего излучения, и поэтому скорость поглощения фотонов равна $\omega I_0 / \hbar \omega$. Следовательно, если квантовая эффективность равна единице, то

$$F = \frac{\omega I_0}{\hbar \omega}. \quad (8.169)$$

Сравнение (8.168), (8.169) и (8.161) дает

$$G = \frac{T_e}{T_{re}} + \frac{T_h}{T_{rh}}. \quad (8.170)$$

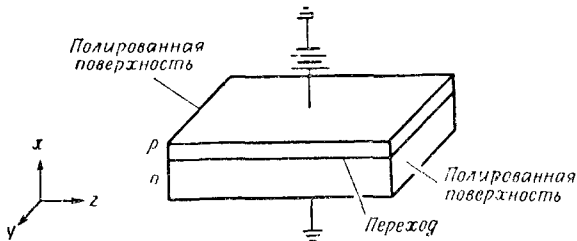
Усиление при фотопроводимости зависит от отношения времени жизни ко времени пролета и может быть больше или меньше единицы.

§ 6. ПОЛУПРОВОДНИКОВЫЕ ИНЖЕКЦИОННЫЕ ЛАЗЕРЫ

В гл. 4 были рассмотрены различные типы лазеров, в которых инверсия населенностей достигалась между дискретными энергетическими уровнями. Рассмотрим теперь инверсию населенностей и работу лазера в случае, когда такая инверсия создается между зоной проводимости и валентной зоной в полупроводнике. Общее описание и некоторые характеристики полупроводникового лазера рассмотрены в § 6, п. 1, а пороговые условия будут рассчитаны в § 6, п. 2 данной главы.

1. Общее описание

В полупроводниковом инжекционном лазере поток электронов течет через переход от материала n -типа к материалу p -типа. На фиг. 8.22 показана общая схема. Поток электронов направлен вдоль положительного направления оси x , а поверхности полупроводника, нормальные к направлению оси z , полированы и параллельны и образуют интерферометр, ось которого направлена вдоль z .



Фиг. 8.22. Схема полупроводникового инжекционного лазера.

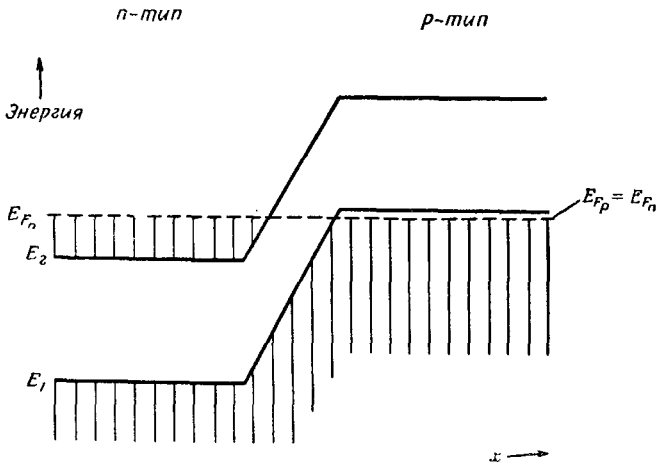
Поток электронов ориентирован вдоль положительного направления оси x ; полированные поверхности образуют интерферометр.

Материал n -типа — это полупроводник, легированный донорной примесью, т. е. такой примесью, которая приводит к появлению электронов в зоне проводимости. Присутствие донорного атома обуславливает энергетические собственные состояния, расположенные немного ниже уровня зоны проводимости. Это означает, что почти все примесные атомы ионизованы, т. е. они отдают электроны в зону проводимости. Материал p -типа — это полупроводник, легированный акцепторной примесью, т. е. примесью, которая создает дырки в валентной зоне. Присутствие акцепторного атома приводит к энергетическим собственным состояниям, которые расположены немного выше потолка валентной зоны и на которые захватываются электроны из валентной зоны.

При тепловом равновесии в полупроводнике вероятность того, что собственное состояние занято электроном, определяется распределением Ферми — Дирака:

$$f = \frac{1}{1 + e^{(E - E_F)/kT}}, \quad (8.171)$$

где E — энергия собственного состояния, E_F — энергия Ферми, k — постоянная Больцмана и T — абсолютная температура. Если энергия собственного состояния лежит ниже E_F более чем на kT , то $f \approx 1$. Для вырождающей примеси в материале n -типа E_F ле-



Фиг. 8.23. Энергетическая диаграмма для полупроводника.

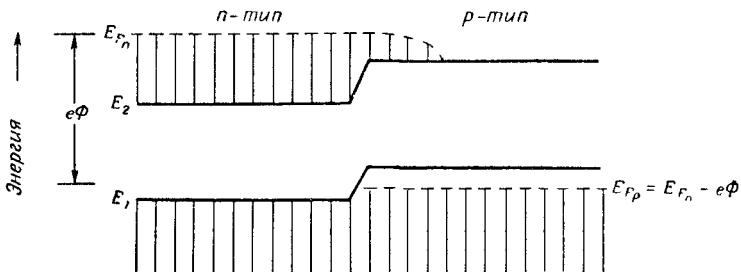
Вертикальные линии показывают области, в которых собственные состояния энергии заняты. Эта энергетическая диаграмма применима в случае теплового равновесия, когда к переходу не приложено напряжение смещения. Энергия, соответствующая дну зоны проводимости, обозначена E_2 , и энергия, соответствующая дну зоны валентной, обозначена E_1 .

жит в зоне проводимости, а для вырождающей примеси в материале p -типа — в валентной зоне. Если между материалами n -типа и p -типа образуется переход, то величина E_F одинакова для всей среды, и, следовательно, заселенность состояний вблизи перехода имеет вид, показанный на фиг. 8.23.

Если к переходу приложено напряжение Φ , так что материал p -типа становится положительным по отношению к материалу n -типа, то при прохождении электрона через переход из области n в область p его потенциальная энергия уменьшается на величину $e\Phi$. Поэтому при наличии смещения нужно изменить фиг. 8.23 так, чтобы энергия в p -области уменьшалась по отношению к энергии в n -области на величину $e\Phi$. На фиг. 8.24

показана энергетическая диаграмма при прямом смещении, когда p -область положительна по отношению к n -области.

Электроны проводимости движутся из материала n -типа в материал p -типа при наличии смещения, поэтому в материале p -типа существует область толщиной порядка 1—10 мкм, в которой зона проводимости занята, а в валентной зоне имеются дырки. Это приводит к инверсии населенностей, на которой основан принцип действия лазера. Инверсия населенностей означает, что $(\rho_{22} - \rho_{11})$ является положительной величиной, так что коэффициент поглощения, определяемый выражением (8.132), становится отрицательным, откуда следует, что имеется усиление, и



Фиг. 8.24. Заселенность собственных состояний для прямого смещения Φ . Заметим, что в материале p -типа существует инверсия населенностей в непосредственной близости к переходу.

когда это усиление превосходит полные потери в системе, возникают незатухающие колебания.

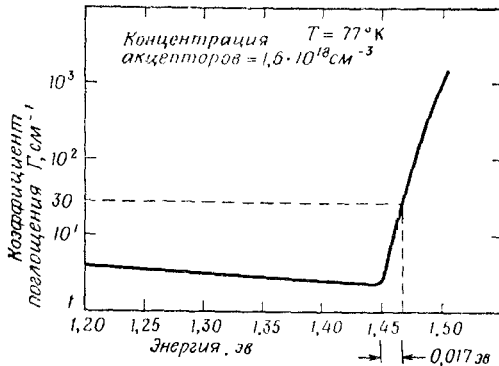
Арсенид галлия GaAs был первым полупроводником, в котором был получен лазерный эффект [5, 6]. Межзонный переход для этого материала является прямым и имеет довольно большой матричный элемент, а потери за счет поглощения на свободных носителях на частоте перехода малы. Лазерная генерация в GaAs с длиной волны 0,84 мкм происходит главным образом в материале p -типа вблизи перехода в области толщиной 1—10 мкм. Полная эффективность устройства, определенная как отношение выходной мощности света к мощности, развиваемой источником смещения, может быть порядка 30%. При температуре жидкого гелия можно получить в непрерывном режиме мощность свыше 10 вт.

В § 6, п. 1 и 2 настоящей главы рассмотрено действие лазера, основанное на инверсии населенностей между зоной проводимости и валентной зоной. Имеются другие пути для получения лазерной генерации в полупроводниках. Эти возможности перечислены и рассмотрены в литературе (см., например, [7]).

2. Пороговый ток

Колебания возникают, когда усиление за счет инверсии населенностей превосходит потери. Потери могут быть следующих типов:

1. Поглощение лазерного излучения на свободных носителях, которое приводит к возбуждению электронов со дна зоны проводимости в состояния с более высокой энергией в той же зоне, а также к возбуждению электронов внутри валентной зоны в верхние состояния валентной зоны, где существуют дырки.



Фиг. 8.25. Коэффициент поглощения в GaAs *p*-типа при температуре жидкого азота.

2. Потери на излучение через зеркала или поверхности, образующие интерферометр.

3. Дифракционные потери в интерферометре.

При температуре жидкого азота 77° К и концентрации примесей около 10^{18} см^{-3} потери приводят к коэффициенту ослабления, типичное значение которого составляет примерно 30 см^{-1} .

На фиг. 8.25 показан коэффициент поглощения GaAs вблизи края зоны при температуре 77° К и концентрации акцепторов $1,6 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$. Поглощение в области ниже $1,45 \text{ эВ}$ происходит главным образом за счет поглощения на свободных носителях, а в области выше $1,45 \text{ эВ}$ существует, кроме того, поглощение за счет межзонных переходов. Так как фиг. 8.25 соответствует случаю заполненной валентной зоны и незаполненной зоны проводимости, то при инверсии населенностей межзонные переходы дают вклад в Γ другого знака, по сравнению с фиг. 8.25. Чтобы получить усиление 30 см^{-1} , нужно заполнить состояния, энергия которых на $0,017 \text{ эВ}$ больше энергии щели между зонами. Это означает, что если в материал *p*-типа инжектируется достаточное количество электронов, чтобы заполнить состояния с энергией,

лежащей на 0,017 эв выше дна зоны проводимости, то будет получено усиление 30 см⁻¹. При этом предполагается, что концентрация акцепторов достаточно высока, так что валентная зона пуста в области энергий в валентной зоне, соответствующей прямым переходам.

Определим теперь плотность тока, который необходимо инжектировать через переход, чтобы достичь порога. Из (1.40) имеем

$$\rho_{22} = n(\mathbf{k}) P N_e^{-1},$$

где $n(\mathbf{k})$ — число собственных состояний на единицу объема \mathbf{k} -пространства и единицу объема координатного пространства; P — вероятность того, что состояние занято электроном; N_e — число электронов проводимости в единице объема координатного пространства. Так как $\int d^3k_2 \rho_{22} = 1$, где d^3k_2 — элемент объема \mathbf{k} -пространства в зоне проводимости (вероятность найти электрон проводимости где-нибудь в зоне проводимости равна единице), то из (1.40) получим

$$N_e = \int d^3k_2 n(\mathbf{k}) P. \quad (8.172)$$

С помощью (8.148) можно записать (8.172) в виде

$$N_e = 4\pi \left[\frac{2m_x^*(2)m_y^*(2)m_z^*(2)}{\hbar^3} \right]^{1/2} \int n(\mathbf{k}) P \sqrt{\omega_2 - \omega_b} d\omega_2, \quad (8.173)$$

где $\hbar\omega_b$ — энергия электрона, находящегося на дне зоны проводимости, а $\hbar\omega_2$ — энергия электрона внутри зоны. Пусть при наличии инжектированного тока распределение приближается к распределению Ферми — Дирака, так что

$$\begin{aligned} P &= 1 \quad \text{для} \quad \hbar(\omega_2 - \omega_b) \leq \Delta E, \\ P &= 0 \quad \text{для} \quad \hbar(\omega_2 - \omega_b) > \Delta E, \end{aligned} \quad (8.174)$$

где ΔE — превышение энергии над дном зоны проводимости при достижении порога.

Из формулы (П.13.9) приложения 13 имеем $n(\mathbf{k}) = 2/(2\pi)^3$ и с помощью (8.173) и (8.174) найдем, что

$$N_e = 3,5 \cdot 10^{27} [2m_{rx}^*(2)m_{ry}^*(2)m_{rz}^*(2)]^{1/2} (\Delta E)^{3/2}, \quad (8.175)$$

где (ΔE) измерено в эв, N_e — в м⁻³ и

$$m_{rx}^*(2) \equiv \frac{m_x^*(2)}{m}; \quad m_{ry}^*(2) \equiv \frac{m_y^*(2)}{m}; \quad m_{rz}^*(2) \equiv \frac{m_z^*(2)}{m}.$$

Выше предполагалось, что вероятность заселенности равна единице для состояния с энергией ниже данной и нулю для состояния с более высокой энергией. Чтобы определить N_e с помощью

(8.173); следует использовать распределение Ферми — Дирака, особенно при более высоких температурах. Для приведенного вычисления в этом уточнении нет необходимости и можно учесть распределение Ферми — Дирака, если потребовать, чтобы ΔE было равно $(0,017 + \kappa T) \text{ эв}$. Тогда состояния с энергией на $0,017 \text{ эв}$ выше дна зоны проводимости заполнены. При 77° К величина κT составляет около $0,006 \text{ эв}$, так что в (8.175) полагаем $\Delta E = 0,023 \text{ эв}$. Так как для GaAs

$$m_{rx}^* (2) \approx m_{ry}^* (2) \approx m_{rz}^* (2) \approx 0,07,$$

то (8.175) дает

$$N_e = 3,1 \cdot 10^{23} \text{ м}^{-3}. \quad (8.176)$$

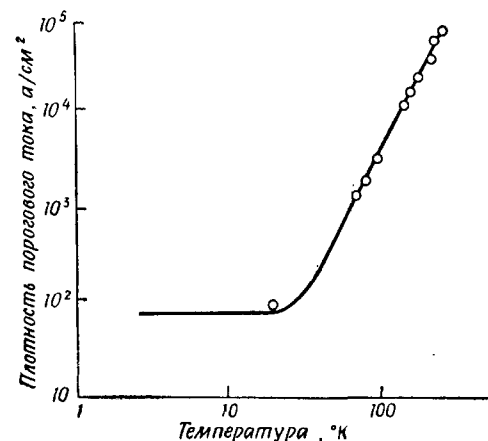
Если из n -области в p -область течет ток с плотностью J , то число электронов, инжектируемых в единицу времени

$$\text{в единицу объема в } p\text{-области} = \frac{J}{ed}, \quad (8.177)$$

где d — глубина проникновения электронов в p -область. В стационарном состоянии плотность электронов проводимости, возникающих в единицу времени за счет инжекционного тока, найдем, приравнявая (8.155) и (8.177),

$$\frac{N_e}{T_e} = \frac{J}{ed} \text{ (к. в.)}, \quad (8.178)$$

где (к. в.) — квантовый выход, который равен отношению числа инжектируемых электронов к числу инжектированных электронов, которые достигают зоны проводимости в материале p -типа. В (8.155) предполагается, что $N_e^e = 0$, так как в отсутствие инжектированного тока в полупроводнике очень мало электронов проводимости.



Фиг. 8.26. Температурная зависимость пороговой плотности тока для инжекционного лазера на GaAs.

Сравним теоретический пороговый ток с измеренными значениями, полученными в материале с концентрацией примеси $5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Данные для поглощения приведены на фиг. 8.25 для другой концентрации, но можно предположить, что наклон кривой поглощения слабо зависит от примеси. Для GaAs при кон-

центрации примесей $5 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ $T_e \approx 2,2 \cdot 10^{-9} \text{ сек}^{-1}$). При значениях параметров

$$(k. v.) = 1,$$

$$d = 1 \text{ мкм}$$

и при величине N_e , определяемой (8.176), с помощью (8.178) получим пороговую плотность тока

$$J = 2,3 \cdot 10^3 \text{ а/см}^2.$$

Если размеры площадки, перпендикулярной потоку, равны $200 \times 200 \text{ мкм}^2$, то это означает, что требуется инжектированный ток $0,92 \text{ а}$. На фиг. 8,26 показаны экспериментальные данные, полученные Бернсом, Диллом и Натаном [9], для порогового тока в зависимости от температуры. При 77° К измеренная плотность тока составляет примерно $2 \cdot 10^3 \text{ а/см}^2$, что очень близко к вычисленному значению. При температурах ниже 20° К пороговый ток уменьшается до 80 а/см^2 .

ЛИТЕРАТУРА

1. *Smith R. A.*, Semiconductors, London, 1961, p. 95. (См. перевод: *Р. Смит*, Полупроводники, изд-во «Мир», 1962.)
2. *Spence E.*, Electronic Semiconductors, New York, 1958, App. I, p. 381.
3. *Smith R. A.*, Wave Mechanics of Crystalline Solids, London, 1963, App. 2, p. 464.
4. *Rose A.*, Concepts in Photoconductivity and Allied Problems, Interscience Tracts on Physics and Astronomy, No. 19, New York, 1963.
5. *Nathan M. I.*, *Dumke W. P.*, *Burns G.*, *Dill F. H., Jr.*, *Lasher G. L.*, Stimulated Emission of Radiation from GaAs *p-n* Junctions, Appl. Phys. Letters, 1, 62 (1962).
6. *Hall R. N.*, *Fenner G. E.*, *Kingsley J. D.*, *Soltys T. J.*, *Carlson R. O.*, Coherent Light Emission From GaAs Junctions, Phys. Rev. Letters, 9, 366 (1962).
7. *Birnbaum G.*, Optical Masers, New York, 1964, p. 155.
8. *Smith W. V.*, *Sorokin P. P.*, The Laser, New York, 1966.
9. *Burns G.*, *Dill F. H., Jr.*, *Nathan M. I.*, The Effect of Temperature on the Properties of GaAs Lasers, Proc. IEEE, 51, 947 (1963).

ДОПОЛНИТЕЛЬНАЯ ЛИТЕРАТУРА

к § 2—3.

1. *Spence E.*, Electronic Semiconductors, New York, 1958, Ch. 7.
2. *Kittel C.*, Introduction to Solid State Physics, 3rd ed., New York, 1966, Ch. 9. (См. перевод: *Ч. Киттель*, Введение в физику твердого тела, Физматгиз, 1963.)
3. *Feynman R. P.*, *Leighton R. B.*, *Sands M.*, The Feynman Lectures on Physics. Reading, Mass. Vol. III, 1965, Ch. 13. (См. перевод: *Р. Фейнман*, *Р. Лейтон*, *М. Сэндс*, Фейнмановские лекции по физике, т. 9, изд-во «Мир», 1967, гл. 11.)

1) Это значение T_e получено из уравнений (7.21) и (7.24) книги [8].

к § 4.

1. *Smith R. A.*, Semiconductors. London, 1961, Ch. 7. (См. перевод: *Р. Смит*, Полупроводники, изд-во «Мир», 1962.)
2. *Smith R. A.*, Wave Mechanics of Crystalline Solids, London, 1963, Ch. 13.

к § 5.

1. *Bube R. H.*, Photoconductivity of Solids. New York, 1960. (См. перевод: *Р. Бьюб*, Фотопроводимость твердых тел, изд-во «Мир», 1962.)
2. *Rose A.*, Concepts in Photoconductivity and Allied Problems, Interscience Tracts on Physics and Astronomy, No. 19, New York, 1963.

к § 6.

1. *Birnbaum G.*, Optical Masers, New York, 1964, Ch. XI.
2. *Smith W. V., Sorokin P. P.*, The Laser. New York, 1966, Ch. 7.
3. *Lengyel B. A.*, Introduction to Laser Physics, New York, 1966, p. 136.
4. *Yariv A.*, Quantum Electronics, New York, 1967, Ch. 17.

Задачи

8.1. Вывести для трехмерного случая условие брэгговского отражения, даваемое формулой (8.15).

8.2. Доказать, что условие ортогональности (8.25) справедливо для периодических граничных условий.

8.3. Из выражений (8.27) и (8.28) показать, что для свободного электрона

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}.$$

8.4. Определить вероятность отражения или прохождения электроном узла, содержащего примесь. Используя выражение (8.44) и считая $\Lambda = 0,2\mathcal{H}'_{01}$, изобразить графически вероятности отражения электрона и прохождения электрона как функцию ka .

8.5. Определить положение энергетических уровней для захваченных электронов. Принимая в (8.49) $\Lambda = 0,2\mathcal{H}'_{01}$ и

а) для энергетической зоны, в которой $E = 1$ эв для $k = 0$ и $E = 2$ эв для $k = \pi/a$, определить энергетический уровень захваченного электрона (ответ: энергия на $1/400$ эв ниже зоны);

б) для энергетической зоны, в которой $E = 1$ эв для $k = \pi/a$ и $E = 2$ эв для $k = 0$, определить энергетический уровень захваченного электрона.

8.6. Показать, что (8.55) удовлетворяет условию сохранения заряда. Иначе говоря, доказать, что

$$\frac{d\rho}{dt} = 0 = \frac{\partial \rho}{\partial t} + \mathbf{k} \cdot \nabla_k \rho.$$

8.7. Выполнить промежуточные выкладки при выводе (8.58) из (8.57).

8.8. На фиг. 8.11 представлены временные зависимости величин k , E и $\langle v \rangle$ при наложении постоянного поля и в отсутствие столкновений. Используя уравнения, выведенные в § 3, п. 3, построить временные зависимости для тех же величин, когда приложено постоянное поле и учитываются столкновения.

8.9. Вывести уравнение (П.13.9) из приложения 13 для плотности состояний в k -пространстве.

8.10. Вывести выражение (П.13.2) из приложения 13.

8.11. Показать, что действительная и мнимая части комплексной проводимости, даваемой выражением (8.82), согласуются с соотношениями Крамерса — Кроинга.

8.12. а) Получить выражение для изменения проводимости (8.160) для случая, когда квантовый выход не равен единице.

б) На сколько процентов изменится проводимость, если кристалл GaAs при комнатной температуре облучать неодимовым лазером мощностью 100 Вт/см²?

8.13. Рассмотреть некоторые особенности поведения коэффициента усиления G для фотопроводимости, который определяется формулами (8.161) и (8.170).

а) Показать, что G не зависит от квантового выхода.

б) Что ограничивает бесконечное возрастание коэффициента G , даваемого выражением (8.170)?

в) Начертить кривую температурной зависимости коэффициента G ¹⁾.

8.14. Полупроводниковый инжекционный лазер работает при температуре 77° К и с током через переход, обеспечивающим положение уровня Ферми на 0,023 эВ выше для зоны проводимости. Построить форму кривой усиления как функции частоты для энергии фотона от 1,2 до 1,6 эВ для случая, когда переход используется как усилитель, а не как генератор. Предположить, что коэффициент поглощения, приведенный на фиг. 8.25, есть коэффициент усиления для случая инверсии населенностей.

¹⁾ R. H. Vibe, Photoconductivity of Solid, New York, 1960. (См. перевод: Р. Бьюб, Фотопроводимость твердых тел, изд-во «Мир», 1962.)

Приложение 1 ВЛИЯНИЕ \mathcal{H}^r НА ρ_{11}

Решаем уравнения (1.25) и (1.26) для $\rho_{11}(t)$ с помощью преобразования Лапласа, которое вводится следующим образом:

$$\rho_{ij}(s) = L \{ \rho_{ij}(t) \} = \int_0^{\infty} e^{-st} \rho_{ij}(t) dt. \quad (\text{П. 1.1})$$

Применяя это преобразование к (1.25) и (1.26) и разрешая относительно $\rho_{11}(s)$, находим

$$\rho_{11}(s) = \frac{1}{s + (1/\hbar^2) \sum_k (2s |\mathcal{H}_{1k}^r|) / (s^2 + \omega_{1k}^2)}. \quad (\text{П. 1.2})$$

Здесь $\omega_{1k} \equiv (E_1 - E_k)/\hbar$. Обратное преобразование Лапласа выражения (П.1.2) дает

$$\rho_{11}(t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{\varepsilon - j\infty}^{\varepsilon + j\infty} \frac{e^{st} ds}{s + (1/\hbar^2) \sum_k (2s |\mathcal{H}_{1k}^r|) / (s^2 + \omega_{1k}^2)}. \quad (\text{П. 1.3})$$

Здесь ε — малое положительное число.

Член \mathcal{H}_{1k}^r может представлять собой, например, матричный элемент между двумя электронными состояниями молекулы, связанными с различными типами колебаний решетки. Типы колебаний решетки расположены очень густо, поэтому суммирование в (П.1.3) можно заменить интегрированием

$$\sum_k \frac{2s |\mathcal{H}_{1k}^r|^2}{s^2 + \omega_{1k}^2} \rightarrow \int_{-\infty}^{\infty} g(\omega_{1k}) d\omega_{1k} \frac{2s |\mathcal{H}_{1k}^r|^2}{s^2 + \omega_{1k}^2}. \quad (\text{П. 1.4})$$

Здесь $g(\omega_{1k})$ — число колебательных состояний на единичном частотном интервале.

В случае слабой связи (т. е. $\mathcal{H}_{1k}^r \approx 0$) вычисление (П.1.3) сводится к определению вычета в полюсе $s = 0$, т. е. $\rho_{11}(t)$ — постоянная величина. Следовательно, для слабой связи надо вычислить интеграл в (П.1.4) для $s \approx 0$. Получим

$$\int_{-\infty}^{\infty} g(\omega_{1k}) d\omega_{1k} \frac{2s |\mathcal{H}_{1k}^r|^2}{s^2 + \omega_{1k}^2} = 2\pi g(\omega_{1k}) |\mathcal{H}_{1k}^r|^2 \Big|_{\omega_{1k}=0}. \quad (\text{П. 1.5})$$

Таким образом, вычисления приводят к плотности состояний $g(\omega_{1k})$ и матричному элементу $|\mathcal{H}_{1k}^r|^2$ для типов колебаний, которые существуют в исчезающе малой энергетической окрестности электронного состояния.

Подставляя (П.1.5) в (П.1.3), получаем

$$\rho_{11}(t) = \frac{1}{2\pi i} \int_{\varepsilon-j\infty}^{\varepsilon+j\infty} \frac{e^{st} ds}{s + 1/\tau} = e^{-t/\tau}, \quad (\text{П. 1.6})$$

где

$$\frac{1}{\tau} \equiv \frac{2\pi g(\omega_{1k}) |\mathcal{H}_{1k}^r|^2}{\hbar^2} \Big|_{\omega_{1k}=0}. \quad (\text{П. 1.7})$$

Приложение 2 СКОРОСТИ ПЕРЕХОДОВ ПРИ РАВНОВЕСИИ

При равновесии требуется, чтобы ρ_{jj} была величиной, не зависящей от времени, и чтобы ни при каких частотах переходов не появлялось никакого результирующего излучения или поглощения энергии. Для двухуровневой системы это означает, что число переходов $|2\rangle \rightarrow |1\rangle$ в единицу времени должно быть равно числу переходов $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$:

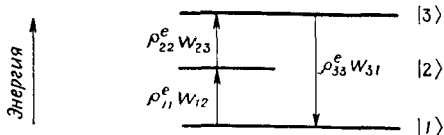
$$\rho_{22}^e W_{21} = \rho_{11}^e W_{12}. \quad (\text{П. 2.1})$$

Для трехуровневой системы возможно удовлетворить условие постоянства ρ_{jj} равенством

$$\rho_{11}^e W_{12} = \rho_{22}^e W_{23} = \rho_{33}^e W_{31}. \quad (\text{П. 2.2})$$

Это равенство иллюстрируется на фиг. П.2.1. Однако на этой схеме изображена система, в которой поглощение энергии происходит на частотах ω_{21} и ω_{32} , а излучение на частоте ω_{31} . Это не условие равновесия. Равновесие в трехуровневой системе имеет место, если только скорость перехода из j -го состояния в k -е состояние равна скорости перехода из k -го состояния в j -е, т. е.

$$\rho_{kk}^e W_{kj} = \rho_{jj}^e W_{jk}. \quad (\text{П. 2.3})$$

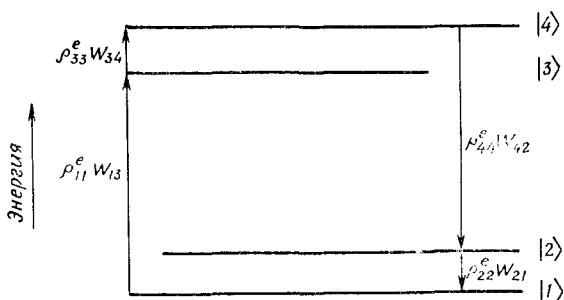


Фиг. П.2.1. Возможные скорости переходов для поддержания постоянных значений ρ_{jj} .

Для четырехуровневой системы возможно равновесие либо при выполнении условия (П.2.3), либо, например, в том случае, когда выполняются следующие соотношения:

$$\begin{aligned} \omega_{21} &= \omega_{43}, \\ \rho_{11}^e W_{13} &= \rho_{33}^e W_{34} = \rho_{44}^e W_{42} = \rho_{22}^e W_{21}, \\ W_{12} &= W_{14} = W_{23} = W_{24} = W_{31} = W_{32} = W_{41} = W_{43} = 0. \end{aligned} \quad (\text{П. 2.4})$$

Эти соотношения иллюстрируются на фиг. П.2.2. Однако для удовлетворения (П.2.4) требуется значительно больше условий, чем для выполнения (П.2.3), и поэтому маловероятно, чтобы в условиях равновесия удовлетворялись соотношения (П.2.4).



Фиг. П.2.2. Возможные скорости переходов для находящейся в равновесии четырехуровневой системы.

Следовательно, даже для многоуровневых систем используются условия равновесия (П.2.3). Уравнение (П.2.3) известно как принцип детального равновесия. (См. работу [5] в гл. 1.)

Приложение 3 ДОКАЗАТЕЛЬСТВО ВЕЩЕСТВЕННОСТИ ПРОИЗВЕДЕНИЯ $\mu_\alpha \mu_\beta^*$

Из определения дипольного матричного элемента имеем

$$\mu_\alpha \mu_\beta^* = \langle u_1 | \mu_\alpha | u_2 \rangle \langle u_1 | \mu_\beta | u_2 \rangle^* = \langle u_1 | \mu_\alpha | u_2 \rangle \langle u_2 | \mu_\beta | u_1 \rangle.$$

Здесь последнее равенство следует из эрмитовости оператора μ_α . Тогда, добавляя и вычитая член $\langle u_1 | \mu_\alpha | u_1 \rangle \langle u_1 | \mu_\beta | u_1 \rangle$, находим

$$\mu_\alpha \mu_\beta^* = \sum_{i=1}^2 \langle u_1 | \mu_\alpha | u_i \rangle \langle u_i | \mu_\beta | u_1 \rangle - \langle u_1 | \mu_\alpha | u_1 \rangle \langle u_1 | \mu_\beta | u_1 \rangle.$$

Исключая тождественный оператор $I = \sum_{i=1}^2 |u_i\rangle \langle u_i|$, запишем это равенство в виде

$$\mu_\alpha \mu_\beta^* = \langle u_1 | \mu_\alpha \mu_\beta | u_1 \rangle - \langle u_1 | \mu_\alpha | u_1 \rangle \langle u_1 | \mu_\beta | u_1 \rangle. \quad (\text{П. 3.1})$$

Кроме того, пользуясь правилом для эрмитова сопряжения операторов, а также учитывая, что операторы μ_α и μ_β эрмитовы,

имеем следующее соотношение:

$$(\mu_\alpha \mu_\beta)^* = \mu_\beta^+ \mu_\alpha^- = \mu_\beta \mu_\alpha.$$

Однако μ_α и μ_β — функции только \mathbf{r} и, следовательно, являются коммутирующими наблюдаемыми. Поэтому можно изменить порядок операторов на обратный, записав

$$(\mu_\alpha \mu_\beta)^* = \mu_\alpha \mu_\beta,$$

т. е. произведение операторов также эрмитово.

Поскольку компоненты дипольного момента и их произведения являются эрмитовыми, они представляются эрмитовыми матрицами, диагональные элементы которых вещественны. Следовательно, произведение $\mu_\alpha \mu_\beta^*$, определяемое соотношением (П.3.1) и выражаемое через диагональные элементы, должно быть вещественным, что и требовалось доказать.

Величина $\mu_\alpha \mu_\beta^*$ является коэффициентом связи между α -компонентой индуцированного дипольного момента и β -компонентой приложенного электрического поля. Таблица из девяти коэффициентов, которые связывают два вектора, составляет тензор второго ранга. Поскольку $\mu_\alpha \mu_\beta^* = \mu_\alpha^* \mu_\beta = \mu_\beta \mu_\alpha^*$, то этот тензор является симметричным относительно индексов α и β .

Приложение 4 ПОПРАВОЧНЫЙ КОЭФФИЦИЕНТ ЛОРЕНЦА ДЛЯ ЛОКАЛЬНОГО ПОЛЯ

Уравнения поля для изотропной поляризуемой среды в отсутствие свободных зарядов имеют вид

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0, & \nabla \cdot \mathbf{D} &= 0, \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}, & \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, & (\text{П. 4.1}) \\ \mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{H}, & \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{\text{пол}}, \\ \mathbf{J} &= \sigma \mathbf{E}. \end{aligned}$$

Особый интерес представляет поляризационный член $\mathbf{P}^{\text{пол}}$, появляющийся в выражении для электрической индукции \mathbf{D} . При рассмотрении некоторых процессов, имеющих место на атомных или молекулярных уровнях, таких, как, например, электрический дипольный переход, полезно представлять полную поляризацию в виде суммы двух членов:

$$\mathbf{P}^{\text{пол}} = \mathbf{P} + \mathbf{P}'. \quad (\text{П. 4.2})$$

Здесь \mathbf{P} характеризует поляризацию, связанную с исследуемыми молекулярными процессами, а \mathbf{P}' — поляризацию, возникающую в результате всех других переходов.

Предположим теперь, что поляризация \mathbf{P}' , возникшая в результате всех других переходов, связана с локальным электрическим полем $\mathbf{E}^{\text{ЛОК}}$ следующим образом:

$$\mathbf{P}' = \sum_i N_i \bar{\alpha}_i \mathbf{E}^{\text{ЛОК}}. \quad (\text{П. 4.3})$$

Здесь N_i — число молекул типа i в единице объема, а $\bar{\alpha}_i$ — усредненная по ориентациям линейная поляризуемость молекул типа i . Для переходов, резонансные частоты которых далеки от частот приложенных полей, поляризуемость $\bar{\alpha}_i$ — просто вещественное число. Поэтому полную поляризацию $\mathbf{P}^{\text{ПОЛН}}$ можно записать на основании (П.4.2) и (П.4.3) следующим образом:

$$\mathbf{P}^{\text{ПОЛН}} = \mathbf{P} + \sum_i N_i \bar{\alpha}_i \mathbf{E}^{\text{ЛОК}}. \quad (\text{П. 4.4})$$

В учебниках по общей физике показано, что в изотропной среде макроскопическое поле \mathbf{E} отличается от локального электрического поля $\mathbf{E}^{\text{ЛОК}}$ для данного атома или молекулы вследствие влияния окружающей поляризуемой среды. Эти поля связаны следующим образом¹⁾:

$$\mathbf{E}^{\text{ЛОК}} = \mathbf{E} + \frac{1}{3\epsilon_0} \mathbf{P}^{\text{ПОЛН}}. \quad (\text{П. 4.5})$$

Комбинируя (П.4.4) и (П.4.5), находим

$$\mathbf{P}^{\text{ПОЛН}} = \frac{1}{1 - \sum_i N_i \bar{\alpha}_i / 3\epsilon_0} \mathbf{P} + \frac{\sum_i N_i \bar{\alpha}_i}{1 - \sum_i N_i \bar{\alpha}_i / 3\epsilon_0} \mathbf{E}. \quad (\text{П. 4.6})$$

Подставляя (П.4.6) в выражение для \mathbf{D} в (П.4.1), получаем

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}^{\text{ПОЛН}} = \left(\epsilon_0 + \frac{\sum_i N_i \bar{\alpha}_i}{1 - \sum_i N_i \bar{\alpha}_i / 3\epsilon_0} \right) \mathbf{E} + \frac{1}{1 - \sum_i N_i \bar{\alpha}_i / 3\epsilon_0} \mathbf{P}. \quad (\text{П. 4.7})$$

Это выражение содержит два члена. Первый член не зависит от процессов, связанных с исследуемой поляризацией \mathbf{P} ; второй характеризует вклад за счет этой поляризации. Если характеризовать диэлектрические свойства среды, *исключая при этом влияющие исследуемых процессов с помощью диэлектрической прони-*

¹⁾ См., например, Ч. Киттель, Введение в физику твердого тела, 2-е изд., Физматгиз, 1963.

цаемости ε , то в отсутствие \mathbf{P} имеем $\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E}$. Поэтому (П.4.7) перепишем в виде

$$\mathbf{D} = \varepsilon\mathbf{E} + \mathbf{P}^s. \quad (\text{П. 4.8})$$

Сравнение (П.4.7) и (П.4.8) показывает, что:

а) диэлектрические свойства среды, исключая эффекты, связанные с \mathbf{P} , описываются так называемым соотношением Лоренц — Лоренца

$$\frac{\eta^2 - 1}{\eta^2 - 2} = \frac{1}{3\varepsilon_0} \sum_i N_i \bar{\alpha}_i; \quad (\text{П. 4.9})$$

здесь $\eta = \sqrt{\varepsilon/\varepsilon_0}$ — показатель преломления среды без учета влияния поляризации \mathbf{P} ;

б) член \mathbf{P}^s (характеризующий поляризационные источники), который используется в уравнениях макроскопического поля и отражает влияние исследуемых процессов, связан с действительной поляризацией \mathbf{P} соотношением

$$\mathbf{P}^s = \left(\frac{\eta^2 + 2}{3} \right) \mathbf{P}. \quad (\text{П. 4.10})$$

Далее, если уравнения (П.4.6) с учетом (П.4.10) подставить в (П.4.5), то можно выразить локальное электрическое поле $\mathbf{E}^{\text{лок}}$ через макроскопическое поле \mathbf{E} :

$$\mathbf{E}^{\text{лок}} = \left(\frac{\eta^2 + 2}{3} \right) \mathbf{E} + \frac{1}{3\varepsilon_0} \mathbf{P}^s \approx \left(\frac{\eta^2 + 2}{3} \right) \mathbf{E}. \quad (\text{П. 4.11})$$

Такая аппроксимация вполне удовлетворительна, когда поляризационный источник \mathbf{P}^s не слишком велик. Множитель $(\eta^2 + 2)/3$ в (П.4.10) и (П.4.11) известен как поправочный множитель Лоренца для локального поля.

Волновое уравнение для \mathbf{E} получается путем применения операции rot к уравнению $\nabla \times \mathbf{E}$, подстановки другого уравнения из (П.4.1) и учета уравнения (П.4.8). Получаем

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{\eta \mathcal{A}}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\eta^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^s}{\partial t^2}. \quad (\text{П. 4.12})$$

Здесь $c^2 = 1/\mu_0\varepsilon_0$, $\mathcal{A} = \mu_0\sigma c/\eta$ — коэффициент затухания и $\eta = \sqrt{\varepsilon/\varepsilon_0}$ — показатель преломления среды без учета влияния тех процессов, которые учитываются с помощью члена \mathbf{P}^s .

Итак, показано, что для изотропной среды поляризация \mathbf{P} , возникающая в результате макроскопических процессов, должна быть скорректирована поправочным множителем Лоренца для локального поля, согласно (П.4.10), и только после этого можно рассматривать влияние поляризации на макроскопические поля с помощью (П.4.12). Кроме того, само макроскопическое поле \mathbf{E} должно быть скорректировано с помощью (П.4.11), чтобы

получить локальное поле $\mathbf{E}^{\text{лок}}$, которое может появиться в уравнениях, описывающих микроскопические процессы. Все эти рассуждения справедливы независимо от того, какими процессами, линейными или нелинейными, определяется \mathbf{P} . Вывод, представленный здесь для изотропной среды, может быть распространен на анизотропные среды. В последнем случае поправочные множители Лоренца являются тензорами¹⁾.

Приложение 5 СООТНОШЕНИЯ КРАМЕРСА — КРОНИГА

Согласно (3.5), поляризация $\mathbf{P} = 1/2 \tilde{\mathbf{P}} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}$ и электрическое поле $\mathbf{E} = 1/2 \tilde{\mathbf{E}} e^{i\omega t} + \text{компл. сопр.}$ в линейной изотропной среде связаны соотношением

$$\tilde{\mathbf{P}} = \epsilon_0 \chi(\omega) \tilde{\mathbf{E}}. \quad (\text{П. 5.1})$$

Величина $\chi(\omega)$ — линейная восприимчивость — имеет как вещественную, так и мнимую части

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega). \quad (\text{П. 5.2})$$

Покажем теперь, что $\chi'(\omega)$ и $\chi''(\omega)$ связаны таким образом, что, если одна из них известна, то другую можно определить с помощью совокупности интегральных соотношений, известных как соотношения Крамерса — Кронига:

$$\chi'(\omega) = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega', \quad (\text{П. 5.3})$$

$$\chi''(\omega) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi'(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'. \quad (\text{П. 5.4})$$

Здесь P означает, что берется главное значение интеграла, определенное несколько ниже (3.29).

Рассмотрим интегрирование функции $\chi(\omega')/(\omega' - \omega)$ по замкнутому контуру, изображенному на фиг. П.5.1. Для пассивной среды функция $\chi(\omega')$ является аналитической внутри области, ограниченной контуром, и, следовательно, функцией $[\chi(\omega')]/(\omega' - \omega)$ — также аналитическая в этой области. Следовательно, по

¹⁾ Bloembergen N., Nonlinear Optics, New York, 1965. (См. перевод Н. Бломберген, Нелинейная оптика, изд-во «Мир», 1969.)

теореме Коши интеграл по замкнутому контуру равен нулю¹⁾:

$$\int_{c'} \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' + \int_{-R}^{\omega - \varepsilon} \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' + \int_{\omega + \varepsilon}^R \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' + \int_c \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' = 0. \quad (\text{П. 5.5})$$

Перейдем теперь к пределу при $R \rightarrow \infty$, $\varepsilon \rightarrow 0$. Первый интеграл стремится к нулю, так как при $\chi(\omega')$, заданном выражением (3.6), числитель подинтегрального выражения имеет степень по ω' , на две единицы меньшую, чем знаменатель. Поэтому интегрирование по полуокружности бесконечного радиуса дает нуль.

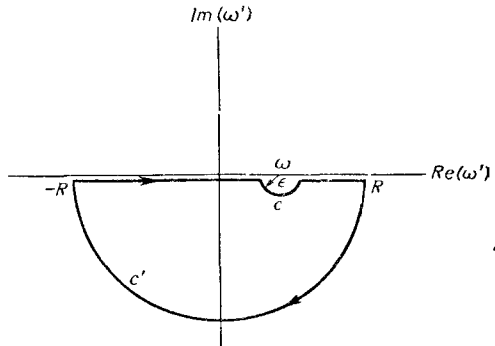
Сумма второго и третьего интегралов в пределе при $\varepsilon \rightarrow 0$ является по определению главным значением интеграла. Четвертый интеграл, вычисленный вокруг простого полюса $\omega' = \omega$, дает $i\pi\chi(\omega)$. Поэтому при $R \rightarrow \infty$, $\varepsilon \rightarrow 0$ имеем

$$P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' + i\pi\chi(\omega) = 0 \quad (\text{П. 5.6})$$

или

$$\chi(\omega) = \frac{i}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'. \quad (\text{П. 5.7})$$

Подставляя (П.5.2) в это соотношение и приравнявая вещественную и мнимую части, получаем соотношения Крамерса — Кронига, т. е. уравнения (П.5.3) и (П.5.4).



Фиг. П.5.1. Контур на комплексной плоскости, по которому вычисляются интегралы в (П.5.5).

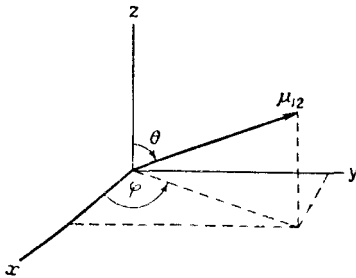
Приложение 6 УСРЕДНЕНИЕ ПО ОРИЕНТАЦИЯМ

Рассмотрим ошибку, к которой приводит предположение, что соотношение (2.39) справедливо при насыщении для случая, когда все ориентации молекул равновероятны. Равенство (2.39) имеет вид

$$\overline{N_V(\mu_a \mu_b^*)}(\rho_{11} - \rho_{12}) = \overline{(\mu_a \mu_b^*)}(N_1 - N_2).$$

¹⁾ См., например, *MacRobert T. M., Functions of a Complex Variable, London, 1954.*

Здесь черта указывает на усреднение по ориентациям. Если все ориентации молекул равновероятны, то $|\mu_{12}|^2$ вдоль любого направления имеет зависимость вида $\cos^2 \theta$, где θ — угол между вектором дипольного момента и направлением координатной оси, как показано на фиг. П.6.1.



Фиг. П.6.1. Координатные направления для вычисления средних по ориентациям.

Коэффициент усиления, введенный в (3.67), был получен в предположении справедливости (2.39), причем последнее приводит к множителю в коэффициенте усиления вида

$$\frac{1}{1 + I/I_{\text{нас}}} \quad (\text{П.6.1})$$

Однако если неусредненное уравнение типа (3.66) подставить в неусредненное уравнение (3.65), множитель в коэффициенте усиления будет иметь вид

$$\frac{1}{4\pi} \int \frac{3 \cos^2 \theta}{1 + (I/I_{\text{нас}}) 3 \cos^2 \theta} d\Omega \quad (\text{П.6.2})$$

Здесь $d\Omega$ — элемент телесного угла. Множитель 3 появился в (П.6.2) потому, что при выводе (П.6.1) усреднение $\cos^2 \theta$ по всем направлениям дает множитель $1/3$.

Отношение (П.6.2) к (П.6.1) всегда больше единицы. Для очень малых и очень больших значений $I/I_{\text{нас}}$ это отношение стремится к единице, а максимальное его значение равно приблизительно 1,3.

Приложение 7 Вывод кинетического уравнения для фотонов

Чтобы вычислить правую часть уравнения (6.49), рассмотрим выражение (6.44) для диагональных элементов $\rho_{1, n; 1, n}$. Коммутатор в правой части (6.44) получим из (6.40):

$$[\mathcal{H}', \rho]_{1, n; 1, n} = \mathcal{H}'_{1, n; 2, n-1} \rho_{2, n-1; 1, n} + \mathcal{H}'_{1, n; 2, n+1} \rho_{2, n+1; 1, n} - \text{компл. сопр.} \quad (\text{П.7.1})$$

Рассуждение, приведенное в следующем абзаце, показывает, что второй член в правой части (П.7.1) может быть опущен.

При решении уравнений движения (6.43) и (6.44) для оператора плотности заметим, что можно сделать некоторые упро-

шающие предположения. Однородное решение для $\rho_{i, n; j, m}$ имеет вид экспоненциально затухающей синусоиды с резонансной частотой $\omega_{i, n; j, m}$. Следовательно, $\rho_{i, n; j, m}$ откликается наиболее сильно на вынуждающий член, который изменяется с естественной резонансной или с близкой к ней частотой. Поэтому будем оставлять только те члены в правой части уравнения (6.43), которые имеют синусоидальную зависимость от времени частоты $\omega_{i, n; j, m}$. Из (6.40) видно, что матричные элементы \mathcal{H}' не зависят от времени. Это означает, что частоты в вынуждающих членах в (6.43) — те же, что и в матричных элементах $\rho_{k, p; l, q}$. Члены $\rho_{k, p; l, q}$ имеют частоты $\omega_{k, p; l, q}$, в то время как резонансной частотой в (6.43) будет $\omega_{i, n; j, m}$. При условии близости этих двух частот из (6.45) видим, что сохраняются только те выражения $\rho_{k, p; l, q}$, для которых справедливо соотношение

$$E_k - E_l + (p - q) \hbar \omega \approx E_i - E_j + (n - m) \hbar \omega. \quad (\text{П. 7.2})$$

Любой член, для которого не справедливо соотношение (П.7.2), не дает вклада на частоте, близкой к резонансной, и поэтому не учитывается. Это условие применимо, в частности, к диагональным элементам, определяемым выражением (6.44), причем в этом случае резонансная частота близка к нулю, т. е.

$$E_k - E_l + (p - q) \hbar \omega \approx 0. \quad (\text{П. 7.3})$$

С помощью (П.7.3) находим, что сохраняется только первый член в (П.7.1), который содержит $\rho_{2, n-1; 1, n}$. Комбинируя (6.44) и (П.7.1), находим

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{1, n; 1, n} + \frac{1}{\tau_{1, n; 1, n}} (\rho_{1, n; 1, n} - \rho_{1, n; 1, n}^e) = \\ = \frac{1}{i\hbar} (\mathcal{H}'_{1, n; 2, n-1} \rho_{2, n-1; 1, n} - \text{компл. сопр.}). \quad (\text{П. 7.4}) \end{aligned}$$

Аналогичным образом получаем

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{2, n; 2, n} + \frac{1}{\tau_{2, n; 2, n}} (\rho_{2, n; 2, n} - \rho_{2, n; 2, n}^e) = \\ = \frac{1}{i\hbar} (\mathcal{H}'_{2, n; 1, n+1} \rho_{1, n+1; 2, n} - \text{компл. сопр.}). \quad (\text{П. 7.5}) \end{aligned}$$

Недиагональные члены в правой части (П.7.4) и (П.7.5) могут быть вычислены из (6.43). Для элемента $\rho_{2, n-1; 1, n}$ имеем $\omega_{2, n-1; 1, n} = \Omega - \omega \approx 0$, а для $\rho_{1, n+1; 2, n}$ соответствующей естественной частотой будет $\omega - \Omega \approx 0$. Следовательно, эти матричные элементы являются медленно меняющимися функциями времени и, кроме того, для типичных оптических переходов имеем $\partial/\partial t \ll 1/\tau_{i, n; j, m}$. Из окончательного вида уравнений, которые будут получены, ясно, что $\tau_{i, n; j, m}$ — постоянная времени поперечной релаксации T_2 . Это то же самое условие (т. е. $\partial/\partial t \ll 1/T_2$), что и использованное при выводе кинетических

уравнений для лазера (3.78) и (3.79). При этом условии, которое подразумевается с самого начала, первым членом в (6.43) можно пренебречь по сравнению с третьим. Следовательно, уравнение для недиагональных элементов будет иметь вид

$$\rho_{2, n-1; 1, n} = \frac{\mathcal{H}'_{2, n-1; 1, n}/\hbar}{(\omega - \Omega) + i/\tau_{2, n-1; 1, n}} (\rho_{1, n; 1, n} - \rho_{2, n-1; 2, n-1}) \quad (\text{П. 7.6})$$

и

$$\rho_{1, n+1; 2, n} = \frac{\mathcal{H}'_{1, n+1; 2, n}/\hbar}{(\Omega - \omega) + i/\tau_{1, n+1; 2, n}} (\rho_{2, n; 2, n} - \rho_{1, n+1; 1, n+1}). \quad (\text{П. 7.7})$$

Здесь снова в вынуждающих членах оставлены только те члены, для которых справедливо (П.7.2).

Комбинируя (П.7.4) — (П.7.7) и подставляя результат для диагональных элементов матрицы плотности в (6.49), после упрощений получаем

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_e} = \frac{2\pi}{\hbar^2} g_L(\omega, \Omega) \sum_n n [|\mathcal{H}'_{1, n; 2, n-1}|^2 \times \\ \times (\rho_{2, n-1; 2, n-1} - \rho_{1, n; 1, n}) + |\mathcal{H}'_{2, n; 1, n+1}|^2 (\rho_{1, n+1; 1, n+1} - \rho_{2, n; 2, n})]. \end{aligned} \quad (\text{П. 7.8})$$

Здесь $g_L(\omega, \Omega)$ — лоренцева функция формы линии, определяемая выражением

$$g_L(\omega, \Omega) = \frac{1}{\pi} \frac{1/T_2}{(\Omega - \omega)^2 + (1/T_2)^2}. \quad (\text{3.14})$$

При выводе (П.7.8) отождествление постоянной времени в левой части (П.7.8) с τ_e соответствует условию, что τ_e является временем затухания электромагнитной энергии в резонаторе и характеризует убывание фотонов в резонаторе, обусловленное не взаимодействием с молекулами, а другими причинами, например потерями на зеркалах. Аналогично отождествление постоянной времени, появляющейся в $g_L(\omega, \Omega)$, с временем поперечной релаксации среды T_2 обосновывается тем, что окончательный результат согласуется с выводами, полученными на основе полуклассического анализа в гл. 3, где более детально рассмотрены временные константы.

Матричные элементы гамильтониана взаимодействия, входящие в (П.7.8), определяются из (6.40), и после их подстановки выражение (П.7.8) сведется к виду

$$\frac{\partial}{\partial t} \langle n \rangle + \frac{\langle n \rangle - \langle n \rangle^e}{\tau_e} = -G \sum_n n (\rho_{1, n; 1, n} - \rho_{2, n; 2, n}) + G\rho_{22}, \quad (\text{П. 7.9})$$

где

$$G \equiv \frac{\pi\omega}{\hbar\epsilon} (\mu_{\alpha}\mu_{\beta}') (E_{\alpha})_{\alpha} (E_{\beta})_{\beta} g_L(\omega, \Omega). \quad (\text{П. 7.10})$$

Приложение 8 ВЕЩЕСТВА, В КОТОРЫХ
НАБЛЮДАЕТСЯ ВЫНУЖДЕННОЕ
РАМАНОВСКОЕ РАССЕЯНИЕ

Жидкости	Смещение частоты, см ⁻¹	Литература	Жидкости	Смещение частоты, см ⁻¹	Литература
Бромформ	222	[3]	Нитробензол	1344	[1, 3]
Тетрахлорэтилен	447	[10]	1-Бромнафталин	1368	[1]
Четыреххлористый углерод	460	[12]	1-Хлорнафталин	1368	[8]
Гексафторбензол	515	[12]	α -Этилнафталин	1381	[10]
Бромформ	539	[3]	<i>m</i> -Нитротолуол	1389	[12]
Трихлорэтилен	640	[3]	Хянолин	1427	[12]
Сероуглерод	656	[3]	Фуран	1522	[12]
Хлороформ	667	[3]	Метиловый эфир салициловой кислоты	1612	[12]
<i>o</i> -Ксилол	730	[2]	Коричный альдегид	1621	[8]
α -Диметилэтоксифениламин	836	[9]	Стирол	1629	[4, 8]
Диоксан	841	[12]	3-Метилбутадиев	1638	[7]
Морфолин	916	[12]	Пентадиен	1655	[7]
Тиофенол	927	[12]	Изопрен	1792	[9]
Нитрометан	944	[1]	Бутилэтилен	2116	[12]
Дейтерированный бензол	990	[12]	<i>o</i> -Дихлорбензол	2202	[12]
Кумол	990	[10]	Бензонитрил	2229	[8]
1,3-Дибромбензол	992	[1, 3]	1,2-Диметиланилин	2292	[12]
Бензол	992	[1]	Метилциклогексан	2817	[12]
Пиридин	997	[8]	Метанол	2831	[3]
Анилин	998	[4, 8]	<i>цис</i> , <i>транс</i> -1,3-Диметилциклогексан	2844	[10]
Стирол	999	[12]	Тетрагидрофуран	2849	[8]
<i>m</i> -Толуидин			Циклогексан	2852	[1, 3]
Бромбензол	1000	[8]	<i>цис</i> -1,2-Диметилциклогексан	2854	[10]
Хлорбензол	1001	[12]	α -Диметилэтоксифениламин	2856	[9]
Бензонитрил	1002	[8]	Диоксан	2856	[3]
<i>трет</i> -Бутилбензол	1002	[10]	Циклогексан	2863	[1, 3]
Этилбензол	1002	[2]	Циклогексанон	2863	[2]
Толуол	1004	[1, 3]	<i>цис</i> , <i>транс</i> -1,3-Диметилциклогексан	2870	[10]
Фторбензол	1012	[5]	<i>цис</i> -1,4-Диметилциклогексан	2873	[10]
4-Пиколин	1016	[12]	Циклогексан	2884	[1, 3]
<i>m</i> -Крезол	1029	[12]	Дихлорметан	2902	[12]
<i>m</i> -Дихлорбензол	1030	[12]	Морфолин	2902	[12]
1-Фтор-2-хлорбензол	1030	[10]			
Йодбензол	1070	[12]			
Хлорбензол	1086	[12]			
Бензальдегид	1086	[12]			
Анизол	1097	[12]			
Пиррол	1178	[12]			
Фуран	1180	[12]			
Стирол	1315	[4, 8]			

Жидкости	Смещение частоты, см ⁻¹	Литература	Жидкости	Смещение частоты, см ⁻¹	Литература
2-октен	2908	[10]	o-Дихлорбензол	2982	[12]
2,3-Диметил-1, 5-гексадиен	2910	[10]	n-Хлортолуол	2982	[12]
Лимонен	2910	[9]	α-Пиколин	2982	[12]
o-Ксилол	2913	[2]	n-Ксилол	2988	[2]
1-Бутилэтилен	2915	[12]	o-Ксилол	2992	[2]
цис-2-Гептен	2920	[10]	Дибутилфталат	2992	[12]
Мезитилен	2920	[9]	1,1, 1-Трихлорэтан	3018	[3]
2-Бромпропан	2920	[10]	Этиленхлоргидрин	3022	[12]
Ацетон	2921	[2, 3]	Изофорон	3022	[12]
Этанол	2921	[3]	Нитрозодиметил-амин	3022	[12]
Карвон	2922	[9]	Пропиленгликол	3022	[12]
цис-1,2-Диметилциклогексан	2927	[10]	Циклогексан	3038	[12]
Диметилформамид	2930	[3]	Стирол	3056	[4, 8]
2-Хлор-2-метилбутан	2931	[10]	Бензол	3064	[1, 3]
2-Октен	2931	[10]	трет-Бутилбензол	3064	[10]
цис-транс-1,3-Диметилциклогексан	2931	[10]	1-Фтор-2-хлорбензол	3084	[10]
m-Ксилол	2933	[]	Живица	3090	[12]
1,2-Диэтилтарtrat	2933	[]	Псевдокумол	3093	[12]
o-Ксилол	2933	[]	Уксусная кислота	3162	[12]
Пиперидин	2933	[9]	Ацетонилацетон	3162	[12]
1,2-Диэтилбензол	2934	[10]	Метилметакрилат	3162	[12]
2-Хлор-2-метилбутен	2935	[10]	4-Пиколин	3182	[12]
1-Бромпропан	2935	[10]	Анилин	3300	[8]
Пиперидин	2936	[]	Вода	3651	[12]
Тетрагидрофуран	2939	[]			
Пиперидин	2940	[2]	Твердые тела		
Циклогексанон	2945	[2]			
1-Нитропропан	2948	[10]	Кварц	128	[11]
2,2-Диэтилкарбонат	2955	[12]	Ниобат лития	152	[15]
1,2-Дихлорэтан	2956	[12]	α-Сера	216	[8]
транс-Дихлорэтилен	2956	[3]	Ниобат лития	248	[14, 15]
1-Бромпропан	2962	[10]	Кварц	466	[11]
2-хлор-2-метилбутан	2962	[10]	α-Сера	470	[8]
α-Диметилэтоксифениламин	2967	[9]	Ниобат лития	628	[14, 15]
Диоксан	2967	[3]	Вольфрамат кальция	911	[8]
Циклогексанол	2982	[12]	Стильбен	997	[9]
Циклопентан	2982	[12]	Полистирол	1001	[3]
Циклопентанол	2982	[12]	Кальцит	1084	[3]
Бромциклопентан	2982	[12]	Алмаз	1332	[8]
			Нафталин	1380	[8]
			Стильбен	1591	[9]

Продолжение

Твердые тела	Смещение частоты, см ⁻¹	Литература	Газы	Смещение частоты, см ⁻¹	Литература
Триглицинсульфат	2422	[12]	Кислород	1552	[8]
Триглицинсульфат	2702	[12]	Пары калия	2721	[13]
Триглицинсульфат	3022	[12]	Метан	2916	[6]
Полистирол	3054	[3]	Дейтерий	2991	[6]
			Водород	4155	[6]

ЛИТЕРАТУРА

1. Eckhardt G., Hellwarth R. W., McClung F. J., Schwarz S. E., Weiner D., Stimulated Raman Scattering from Organic Liquids, Phys. Rev. Letters, **9**, 455 (December 1962).
2. Geller M., Bortfeld D. P., Sooy W. R., New Woodbury-Raman Laser Materials, Appl Phys. Letters, **3**, 36 (August 1963).
3. Kern S., Feldman B., Stimulated Raman Emission, M. I. T. Lincoln Lab. Solid-State Res. Rept., **3**, 18 (1964).
4. Bortfeld D. P., Geller M., Eckhardt G., Combination Lines in the Stimulated Raman Spectrum of Styrene, Journ. Chem. Phys., **40**, 1770 (March 15, 1964).
5. Calviello J. A., Heller Z. H., Raman Laser Action in Mixed Liquids, Appl. Phys. Letters, **5**, 112 (September 1964).
6. Minck R. W., Terhune R. W., Rado W. G., Laser-Stimulated Raman Effect and Resonant Four-Photon Interactions in Gases H₂, D₂, and CH₄, Appl. Phys. Letters, **3**, 181 (November 15, 1963).
7. Zubov B. A., Сущинский М. М., Шувалов И. К., Исследование порога возбуждения вынужденного комбинационного рассеяния, ЖЭТФ, **47**, 784 (1964).
8. Eckhardt G., Selection of Raman Laser Materials, IEEE Journ Quant. Electr., **QE-2**, 1 (January 1966).
9. Weinberg D. L., Stimulated Raman Emission in Crystals and Organic Liquids, M. I. T. Lincoln Lab. Solid-State Res., Rept. 2, 31 (1965).
10. Barrett J. J., Tobin M. C., Stimulated Raman Emission Frequencies in 21 Organic Liquids, Journ. Opt. Soc. Amer., **56**, 129 (January 1966).
11. Tannenwald P. E., Thaxter J. B., Stimulated Brillouin and Raman Scattering in Quartz at 2,1° to 293° Kelvin, Science, **134**, 1319 (December 9, 1966).
12. Martin M. D., Thomas E. L., Infrared Difference Frequency Generation, IEEE Journ. Quant. Electr., **QE-2** (August 1966).
13. Rokni M., Yatsiv S., Resonance Raman Effect in Free Atoms of Potassium, Phys. Letters, **24a**, 277 (1967).
14. Kuriz S. K., Giordmaine J. A., Stimulated Raman Scattering by Polaritons, Phys. Rev. Letters, **22**, 192 (February 3, 1969).
15. Gelbwachs J., Pantell R. H., Puthoff H. E., Yarborough J. M., A Tunable Stimulated Raman Oscillator, Appl. Phys. Letters, **14** (May 1, 1969).

Приложение 9 СООТНОШЕНИЕ МЕЖДУ ПОЛЯРИЗУЕМОСТЬЮ И СМЕЩЕНИЕМ

Из уравнения (7.96) видно, что электронная поляризуемость в m -м узле решетки имеет флуктуирующую компоненту вследствие прохождения акустической волны q_m . Эта компонента

имеет вид

$$\alpha'_m = \sum_l \left(\frac{\partial \alpha_m}{\partial (q_{l+1} - q_l)} \right)_0 (q_{l+1} - q_l). \quad (\text{П. 9.1})$$

Здесь

$$q_l = \frac{\tilde{q}}{2} e^{i(\omega_2 t - k l a)} + \text{компл. сопр.}, \quad (\text{П. 9.2})$$

а $l = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ — индекс узлов решетки вдоль кристалла. Это значит, что поляризуемость в узле m зависит от относительного смещения атомов в других узлах решетки, соответствующих различным номерам l . Покажем теперь, что суммирование по узлам решетки в (П.9.1) приводит к простому выражению

$$\alpha'_m = C_b (q_{m+1} - q_m). \quad (\text{П. 9.3})$$

Подставляя (П.9.2) в (П.9.1), имеем

$$\alpha'_m = \text{Re } F. \quad (\text{П. 9.4})$$

Здесь

$$F = \sum_l \left(\frac{\partial \alpha_m}{\partial (q_{l+1} - q_l)} \right)_0 \tilde{q} e^{i(\omega_2 t - k l a)} (e^{-i k a} - 1). \quad (\text{П. 9.5})$$

Поскольку кристаллическая решетка однородна по структуре и считается бесконечно большой, очевидно, что изменение поляризуемости в узле решетки m под действием относительных смещений атомов в узле решетки l и изменение поляризуемости в узле решетки $m + 1$ в результате аналогичных смещений атомов в узле решетки $l + 1$ должны быть тождественны. Следовательно,

$$\left(\frac{\partial \alpha_m}{\partial (q_{l+1} - q_l)} \right)_0 = \left(\frac{\partial \alpha_{m+1}}{\partial (q_{l+2} - q_{l+1})} \right)_0. \quad (\text{П. 9.6})$$

Выражение (П.9.5) можно записать в виде

$$\begin{aligned} F &= \sum_l \left(\frac{\partial \alpha_m}{\partial (q_{l+1} - q_l)} \right)_0 \tilde{q} e^{i(\omega_2 t - k l a)} [e^{-i k a} - 1] = \\ &= \sum_{l'} \left(\frac{\partial \alpha_{m+1}}{\partial (q_{l'+2} - q_{l'+1})} \right)_0 \tilde{q} e^{i(\omega_2 t - k l' a)} [e^{-i k a} - 1] = \\ &= \sum_{l'} \left(\frac{\partial \alpha_{m+1}}{\partial (q_{l'+1} - q_{l'})} \right)_0 \tilde{q} e^{i(\omega_2 t - k l' a)} e^{i k a} [e^{-i k a} - 1]. \end{aligned} \quad (\text{П. 9.7})$$

Здесь $l' = l - 1$. Приравнявая экспоненциальные члены в (П.9.7), получаем рекуррентное соотношение

$$c_m = c_{m+1} e^{i k a}. \quad (\text{П. 9.8})$$

Здесь $c_m = [\partial\alpha_m/\partial(q_{l+1} - q_l)]_0$. Уравнение (П.9.8) является разностным уравнением, которое может быть решено, если предположить, что решение имеет вид $c_m = Ae^{pm}$. Получим

$$c_m = c_0 e^{-ikma}. \quad (\text{П. 9.9})$$

Здесь $c_0 = [\partial\alpha_0/\partial(q_{l+1} - q_l)]_0$ есть значение c_m в узле решетки $m = 0$. Комбинируя (П.9.4), (П.9.5) и (П.9.9), находим

$$\begin{aligned} \alpha'_m &= \text{Re } \tilde{q} e^i (\omega_k t - kma) [e^{-i\tilde{q}a} - 1] \sum_l c_0 e^{-ikla} = \\ &= \left[\frac{\tilde{q}}{2} e^i [\omega_k t - k(m+1)a] - \frac{\tilde{q}}{2} e^i [\omega_k t - kma] \right] \sum_l c_0 e^{-ikla} + \text{компл. сопр.} \end{aligned} \quad (\text{П. 9.10})$$

Поскольку l может принимать как положительные, так и отрицательные значения, а c_0 является вещественной величиной, то (П.9.10) сводится к виду

$$\alpha'_m = C_b (q_{m+1} - q_m). \quad (\text{П. 9.11})$$

Здесь C_b является константой

$$C_b = \sum_l \left(\frac{\partial\alpha_0}{\partial(q_{l+1} - q_l)} \right)_0 e^{-ikla}.$$

Таким образом, поляризуемость в m -м узле решетки α'_m может быть выражена просто как величина, в C_b раз превышающая акустические смещения в узле решетки m .

Приложение 10 ВЫРАЖЕНИЕ ДЛЯ d^3k ЧЕРЕЗ ω_{21}

В окрестности $\mathbf{k} = 0$ энергия в зоне проводимости записывается в виде

$$E(\mathbf{k}, 2) \approx E(0, 2) + \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta} \frac{\partial^2 E(\mathbf{k}, 2)}{\partial k_\alpha \partial k_\beta} k_\alpha k_\beta. \quad (\text{П. 10.1})$$

Здесь учтены только первые два отличные от нуля члена степенного ряда. Используя определение эффективной массы, выраженные (П.10.1) можно переписать в виде

$$E(\mathbf{k}, 2) = E(0, 2) + \frac{\hbar^2}{2} \sum_{\alpha, \beta} \frac{1}{m_{\alpha\beta}^*(2)} k_\alpha k_\beta. \quad (\text{П. 10.2})$$

Здесь $m_{\alpha\beta}^*(2)$ — эффективная масса на нижней границе зоны проводимости. Если координатные оси выбрать вдоль направлений

главных осей, то (П.10.2) сводится к виду

$$E(\mathbf{k}, 2) = E(0, 2) + \frac{\hbar^2}{2} \sum_{\alpha} \frac{1}{m_{\alpha}^*(2)} k_{\alpha}^2. \quad (\text{П. 10.3})$$

Здесь α — направление, параллельное главной оси.

Для валентной зоны получается выражение, аналогичное (П.10.3), так что имеем

$$\hbar\omega_{21} = E(\mathbf{k}, 2) - E(\mathbf{k}, 1) = \hbar\omega_0 + \frac{\hbar^2}{2} \sum_{\alpha} \frac{1}{\mu_{\alpha}^*} k_{\alpha}^2. \quad (\text{П. 10.4})$$

Здесь

$$\hbar\omega_0 = E(0, 2) - E(0, 1) =$$

= минимальное расстояние между энергетическими зонами
и

$$\frac{1}{\mu_{\alpha}^*} \equiv \frac{1}{m_{\alpha}^*(2)} - \frac{1}{m_{\alpha}^*(1)}.$$

Теперь определим переменную q в виде

$$q_{\alpha} \equiv \frac{k_{\alpha}}{\sqrt{\mu_{\alpha}^*}},$$

так что

$$d^3k = dk_x dk_y dk_z = \sqrt{\mu_x^* \mu_y^* \mu_z^*} dq_x dq_y dq_z. \quad (\text{П. 10.5})$$

Из (П. 10.4) имеем

$$\omega_{21} - \omega_0 = \frac{\hbar}{2} (q_x^2 + q_y^2 + q_z^2) \equiv \frac{\hbar}{2} \rho^2. \quad (\text{П. 10.6})$$

Здесь

$$\rho^2 \equiv q_x^2 + q_y^2 + q_z^2.$$

Переменная ρ является радиусом в q -пространстве, так что элемент объема в q -пространстве имеет вид

$$dq_x dq_y dq_z = 4\pi\rho^2 d\rho. \quad (\text{П. 10.7})$$

Комбинируя (П.10.5) — (П.10.7), находим

$$d^3k = 4\pi \sqrt{\frac{2\mu_x^* \mu_y^* \mu_z^*}{\hbar^3}} (\omega_{21} - \omega_0) d\omega_{21}. \quad (\text{П. 10.8})$$

Это и есть желаемое выражение для d^3k через ω_{21} .

Приложение 11 ВЫЧИСЛЕНИЕ ИНТЕГРАЛОВ В УРАВНЕНИИ (8.54)

Прежде всего рассмотрим интеграл

$$I_1 \equiv i \int dV \rho_{BB}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) \psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} \nabla_{\mathbf{k}'} u_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) -$$

— компл. сопр. (П. 11.1)

Поскольку

$$\psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}),$$

то в подынтегральном выражении в (П.11.1) имеется множитель $e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}}$, благодаря которому интеграл в координатном пространстве равен нулю¹⁾, пока не выполняется равенство $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$. Поэтому можно записать I_1 в виде

$$\begin{aligned} I_1 &= i \int dV \rho_{BB} u_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \nabla_{\mathbf{k}} u_B(\mathbf{k}, \mathbf{r}) - \text{компл. сопр.} = \\ &= i \rho_{BB} \int dV [u_B^* \nabla_{\mathbf{k}} u_B + u_B \nabla_{\mathbf{k}} u_B^*] = \\ &= i \rho_{BB} \nabla_{\mathbf{k}} \int dV |u_B|^2. \end{aligned} \quad (\text{П. 11.2})$$

Здесь $\rho_{BB} \equiv \rho_{BB}(\mathbf{k}, \mathbf{k}, t)$. Поскольку $\int dV |u_B|^2 = 1$, $\nabla_{\mathbf{k}} \int dV |u_B|^2 = 0$, получим, что $I_1 = 0$. Это означает, что выражение, стоящее во вторых скобках в правой части уравнения (8.54), равно нулю.

Теперь рассмотрим интеграл

$$I_2 \equiv i \int \int d^3 k' dV \rho_{BB}(\mathbf{k}, \mathbf{k}', t) \psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \nabla_{\mathbf{k}'} \psi_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) - \text{компл. сопр.} \quad (\text{П. 11.3})$$

Интегрируя (П.11.3) по частям относительно \mathbf{k}' , получаем

$$I_2 = -i \int \int d^3 k' dV \psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \psi_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) \nabla_{\mathbf{k}'} \rho_{BB}(\mathbf{k}, \mathbf{k}', t) - \text{компл. сопр.} \quad (\text{П. 11.4})$$

Из (8.26) имеем $\int \psi_B^*(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \psi_B(\mathbf{k}', \mathbf{r}) dV = \delta(\mathbf{k}' - \mathbf{k})$, так что I_2 можно переписать в виде

$$I_2 = -i \lim_{\mathbf{k}' \rightarrow \mathbf{k}} [\nabla_{\mathbf{k}'} \rho_{BB}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) + \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{BB}(\mathbf{k}, \mathbf{k}', t)]. \quad (\text{П. 11.5})$$

Матричный элемент ρ определяется из (1.37):

$$\rho_{BB}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) = c_B(\mathbf{k}', t) c_B^*(\mathbf{k}, t). \quad (\text{П. 11.6})$$

¹⁾ См. работу [2] в конце гл. 8.

Здесь $c_B(\mathbf{k}, t)$ — коэффициент при члене $|\mathbf{k}B\rangle$ в разложении для вектора состояния. Из (П.11.6) находим, что

$$\begin{aligned} \lim_{\mathbf{k}' \rightarrow \mathbf{k}} [\nabla_{\mathbf{k}} \rho_{BB}(\mathbf{k}', \mathbf{k}, t) + \nabla_{\mathbf{k}'} \rho_{BB}(\mathbf{k}, \mathbf{k}', t)] = \\ = \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{BB}(\mathbf{k}, \mathbf{k}, t) \equiv \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{BB}(\mathbf{k}, t). \end{aligned} \quad (\text{П. 11.7})$$

Отсюда имеем

$$I_2 = -i \nabla_{\mathbf{k}} \rho_{BB}(\mathbf{k}, t). \quad (\text{П. 11.8})$$

Это соотношение приводит к уравнению (8.55).

Приложение 12 ВЫВОД СООТНОШЕНИЯ

$$\left(\frac{\partial E}{\partial k_\alpha}\right)^2 = (2\hbar^2/3m_\alpha^*) E$$

В приложении 10 [уравнение (П.10.3)] показано, что

$$E = \frac{\hbar^2}{2} \sum_{\alpha=x, y, z} \frac{1}{m_\alpha^*} k_\alpha^2. \quad (\text{П. 12.1})$$

Здесь α обозначает координатные направления. Энергия на нижней границе зоны проводимости принята равной нулю, а m_α^* — эффективная масса на нижней границе зоны проводимости, когда координатная система выбрана вдоль главных осей. На основании (П.12.1) можно записать

$$E = \frac{\hbar^2}{2} \sum_{\alpha} q_\alpha^2. \quad (\text{П. 12.2})$$

Здесь $q_\alpha \equiv k_\alpha (m_\alpha^*)^{-1/2}$. Таким образом,

$$\left(\frac{\partial E}{\partial k_\alpha}\right)^2 = \frac{1}{m_\alpha^*} \left(\frac{\partial E}{\partial q_\alpha}\right)^2. \quad (\text{П. 12.3})$$

Поскольку

$$E = \frac{\hbar^2}{2} (q_x^2 + q_y^2 + q_z^2), \quad (\text{П. 12.4})$$

то в \mathbf{q} -пространстве поверхностями постоянной энергии являются сферы и, следовательно, E одинаково зависит от каждой координаты q , так что

$$\left(\frac{\partial E}{\partial q_x}\right)^2 + \left(\frac{\partial E}{\partial q_y}\right)^2 + \left(\frac{\partial E}{\partial q_z}\right)^2 = 3 \left(\frac{\partial E}{\partial q_\alpha}\right)^2 = 2\hbar^2 E. \quad (\text{П. 12.5})$$

Здесь последнее равенство получено из (П.12.2). Из (П.12.5) и (П.12.3) имеем

$$\left(\frac{\partial E}{\partial k_\alpha}\right)^2 = \frac{2\hbar^2}{3m_\alpha^*} E. \quad (\text{П. 12.6})$$

Приложение 13 Вывод выражения (8.99) из (8.98)

Исходим из уравнения

$$\mathbf{J} = -\frac{N_V e^2}{\hbar} \int d^3k (\nabla_k E) (\boldsymbol{\xi} \cdot \nabla_k \rho_{22}^e) T_1. \quad (8.98)$$

Если через N_e обозначить число электронов проводимости в единице объема, то

$$\int d^3k \rho_{22}^e = \frac{N_e}{N_V}. \quad (\text{П. 13.1})$$

Здесь N_V — общее число электронов в единице объема. Кроме того, можно записать

$$\boldsymbol{\xi} \cdot \nabla_k \rho_{22}^e = \frac{\partial \rho_{22}^e}{\partial E} \boldsymbol{\xi} \cdot \nabla_k E. \quad (\text{П. 13.2})$$

Комбинируя (П.13.1), (8.98) и (П.13.2), запишем плотность тока в виде

$$\mathbf{J} = -\frac{e^2 N_e}{\hbar^2} \frac{\int d^3k (\nabla_k E) (\partial \rho_{22}^e / \partial E) (\boldsymbol{\xi} \cdot \nabla_k E) T_1}{\int d^3k \rho_{22}^e}. \quad (\text{П. 13.3})$$

Если электрическое поле приложено вдоль направления α , то

$$J_\alpha = -\frac{e^2 N_e}{\hbar^2} \frac{\int d^3k (\partial E / \partial k_\alpha)^2 (\partial \rho_{22}^e / \partial E) T_1}{\int d^3k \rho_{22}^e} \mathcal{E}_\alpha. \quad (\text{П. 13.4})$$

В приложении 10 показано, что

$$d^3k \text{ пропорционально } \sqrt{E} dE, \quad (\text{П. 13.5})$$

а из приложения 12 имеем

$$\left(\frac{\partial E}{\partial k_\alpha} \right)^2 = \frac{2\hbar^2}{3m_\alpha^*} E. \quad (\text{П. 12.6})$$

Здесь m_α^* — эффективная масса на нижней границе зоны проводимости для координатной системы, выбранной вдоль главных осей. Подставляя (П.12.6) и (П.13.5) в (П.13.4), находим

$$J_\alpha = -\frac{2e^2 N_e}{3m_\alpha^*} \frac{\int \sqrt{E}^3 (\partial \rho_{22}^e / \partial E) T_1 dE}{\int \sqrt{E} \rho_{22}^e dE} \mathcal{E}_\alpha. \quad (\text{П. 13.6})$$

С помощью (1.40) величина $\rho_{22}(\mathbf{k})$ записывается в виде

$$\rho_{22}(\mathbf{k}) = n(\mathbf{k}) P N_V^{-1}. \quad (\text{П. 13.7})$$

Здесь $n(\mathbf{k})$ — число собственных состояний в единице объема в \mathbf{k} -пространстве на единицу объема координатного пространства; P — вероятность того, что собственное состояние в зоне проводимости занято электроном.

При тепловом равновесии величина P дается распределением Ферми — Дирака, так что диагональные элементы ρ^e равны

$$\rho_{ii}^e = \frac{n(\mathbf{k}) N_V^{-1}}{1 + e^{(E - E_F)/\kappa T}}. \quad (\text{П. 13.8})$$

Здесь E_F — так называемая энергия Ферми, κ — постоянная Больцмана, а T — абсолютная температура. Уравнение (8.24), связывающее n и k , приводит к следующему выражению для $n(\mathbf{k})$:

$$n(\mathbf{k}) = \frac{2}{(2\pi)^3}. \quad (\text{П. 13.9})$$

Здесь множитель 2 введен для учета двух спиновых состояний электрона. Из (П.13.8) находим, что

$$\frac{\partial \rho_{22}^e}{\partial E} = -\frac{1}{\kappa T} \rho_{22}^e (1 - \rho_{22}^e) \approx -\frac{1}{\kappa T} \rho_{22}^e \text{ для } \rho_{22}^e \ll 1. \quad (\text{П. 13.10})$$

В зоне проводимости $\rho_{22}^e \ll 1$, поэтому справедливо приближение, сделанное в (П.13.10). Поскольку ρ_{22}^e с увеличением энергии затухает экспоненциально, пределы интегрирования в (П.13.6) можно выбрать от 0 до ∞ . Истинными пределами интегрирования являются нуль и величина максимальной энергии в зоне проводимости.

В зоне проводимости, где ρ_{22}^e приблизительно пропорционально $e^{-E/\kappa T}$, справедливо следующее соотношение:

$$\int_0^{\infty} \sqrt{E} \rho_{22}^e dE = \frac{2}{3} \kappa T \int_0^{\infty} \sqrt{E^3} \rho_{22}^e dE. \quad (\text{П. 13.11})$$

Подставляя (П.13.10) и (П.13.11) в (П.13.6), находим

$$J_{\alpha} = \frac{N e e^2}{m_{\alpha}} \langle T_1 \rangle \mathcal{E}_{\alpha}. \quad (\text{8.99})$$

Здесь

$$\langle T_1 \rangle \equiv \frac{\int_0^{\infty} T_1 \sqrt{E^3} \rho_{22}^e dE}{\int_0^{\infty} \sqrt{E^3} \rho_{22}^e dE}. \quad (\text{8.100})$$

- Дисперсия 77
 — аномальная 78
 Диэлектрическая проницаемость 253, 258
 Допплера эффект 281
 Допплеровское уширение 86, 147, 155
 Дырки 328
- Запрещенные переходы 44, 340
 Затягивание частоты 112, 156
 Захват примесями 315
 Зеркальная плоскость 104
- Импульс каноический 36
 — — свободного электрона 311
 — — частицы 36, 320
 — — электрона в кристалле 311
 Инверсия населенностей 125, 143, 352
 Ионная связь 250, 265
- Квадрупольный переход, гамильто-
 ниан 40
 — — правило сумм 121
 — — четность 46
 Кваптовый выход 346, 354, 357
 Керра эффект 292
 — ячейка 143, 261
 Кет-вектор 16, 19, 25
 Кинетические уравнения 114
 — — в нормированных переменных
 115, 131
 — — для лазера 114, 131
 — — — бегущей волны 108, 115
 — — — лазера 116
 — — — разности населенностей 131,
 217
 — — стационарного состояния 133
 — — фотонов 206, 215, 366
 Комплексная плоскость 365
 Комptonовское рассеяние 221, 300
 Коши теорема 365
 Коэффициент заполнения 57, 134, 157
 — поглощения 55, 363
 — — для не прямых переходов 344
 — — электрического дипольного
 перехода 78
 — — при насыщении 93
 — — парамагнитном резонансе
 119
 — — — фотопроводимости 346
 Крамерса — Кронига соотношения 90,
 357, 364
 Кристалл двуосный 103, 104
 — изотропный 103, 104
 — кубический 103
- Кристалл одноосный 103
 Кристаллов классы 103
 — поле 45
 — симметрия 102
 — энергетические зоны 304
 Кронекера символ 17
 Кросс-релаксационные процессы 95,
 96
 Кюна — Томаса правило 83
- Лагранжиан 37
 Лазер 124
 — бегущей волны 107
 — газовый 128
 — гелий-неоновый 129, 147, 157
 — кинетические уравнения 114, 131
 — модуляция добротности 142
 — мощность накачки 135
 — неодимовый 146, 157
 — полупроводниковый инжекционный
 349, 357
 — порог генерации 130, 152
 — потери 136
 — прожигание дырки 14
 — рубиновый 127
 — с резонатором 114
 — четырехуровневый 146
 Лапласа преобразования 358
 Лиддена — Сакса — Теллера соотно-
 шение 259
 Локальное поле 50, 361
 — — в случае анизотропной среды
 97
 — — поправочный коэффициент 58,
 98, 252, 267, 361
 Лоренцева форма линии 76, 85, 147,
 165, 168
 Лоренц — Лоренца соотношение
 363
- Магнитная восприимчивость 118
 Магнитный момент 40
 Магнон 187
 Мазер 116, 125
 Максвелла распределение по скоро-
 стям 87
 — уравнения 55
 Матричные диагональные элементы
 20, 24, 32
 Межзонные эффекты 332
 — — не прямые переходы 340
 — — прямые переходы 333
 Места стабильное состояние 127
 Многофотонные процессы 160
 — — сечение рассеяния 171
 — — четность 168

- Намагниченность 166
 Населенностей разность 51
 — — генерация гармоника 174
 — — уравнение движения 53
 — — шарковское смещение 1, 9
 Насыщение 90
 Необыкновенный луч 104
 Непрямые переходы 340
 Нормальные моды акустические 232
 — — резонатора 56, 188
 Нулевая энергия 194, 197, 220
 — — флуктуации 220
- Обратной** решетки вектор 247
 Однофотонного перехода вероятность 161
 Оператор 19
 — единичный 20
 — коммутатор 25, 30
 — плотности 21, 24, 158
 — производная по времени 31
 — рождения 191
 — след 31
 — сопряженный 21
 — уничтожения 191
 — эрмитов 21, 25, 27, 163
 Оптические моды 223, 231, 240, 250
 Основной домен 310, 317
 Остаточные лучи 255
 Отражения коэффициент 254
- Параматнитный** резонанс 117
 Паули принцип запрета 317
 — спиновые операторы 62
 Периодические граничные условия 199, 213, 232
 Плазмон 187
 Платка закон 219
 — постоянная 16, 188
 Плотность тока для межзонных переходов 333
 — — — прямых переходов 342
 — — — при фотопроводимости 345
 — — свободных электронов 327
 — — уравнение Больцмана 330
 Поглощение 77
 — двухфотонное 158, 166
 — многофотонное 171
 — трехфотонное 159, 169
 — m -фотонное 170
 Подвижность 325, 345
 Показатель преломления 55, 363
 Полное внутреннее отражение 293
 Полуклассический анализ 36
 Полупроводник 349
 Поляризация 50
- Поляризуемость 245, 260, 263, 281, 361
 Пороговые условия 178
 Постоянная распространения 78
 Потери в резонаторе 57
 Правило отбора 44
 Прецессия 68
 Примеси акцепторные 349
 — донорные 349
 Принцип детального равновесия 360
 — неопределенности 114, 209
 — соответствия 36, 84
 Проводимость 55
 — комплексная 327
 Просветление 74, 94
 Процессы переброса 247
 Прямые переходы 332
- Разложение по мультиполям** 37
 Рамана эффект 159, 224, 260
 — — антистоксово рассеяние 200, 264
 — — бензол 270, 276
 — — восприимчивость 269
 — — вынужденное 261
 — — гамильтониан 265
 — — пороговые условия 271
 — — сечении 274
 — — стоксово рассеяние 260, 264
 — — уравнение движения 266
 — — усиление 269
 Резонанс 74
 Резонатора время затухания 57, 72, 197
 — затухание энергии 196
 — нормальные моды 56, 188
 — плотность мод 211, 213
 Рентгеновские лучи 228
- Самофокусировка 292
 Свободные носители 317
 — — время жизни 346
 — — поглощение 327
 Сила осциллятора 82, 83, 339
 Системы многих частиц 41
 След 23, 31, 34
 Смешанное состояние 22
 Спелтуса закон 293
 Собственная функция 18
 — — вырожденная 44
 — — кристалла 304
 — — непрерывный спектр 29
 Сохранение энергии при бриллюэновском рассеянии 245
 — — — рамановском рассеянии 249
 — — — фононном рассеянии 242
 Спин 1/2 69, 117, 185
 Спинный пакет 86, 88

- Спин-орбитальное взаимодействие 63
 Среднее значение наблюдаемой величины 21, 25, 30
 Стробоскопический метод 107
- Тензор 98
 Теория возмущений 161
 Тепловое равновесие 26, 34, 218, 344
 Точечные группы 102
 Трехфотонное поглощение 159, 169
- Уширение неоднородное 86
 — однородное 85, 131, 148
- Фабри — Перо интерферометр 289
 Фактор спектроскопического расщепления 62
 Ферми — Дирака распределение 343, 350, 378
 Флуоресценция 214
 Фонон 223, 232
 Фотон 187, 194
 — л-импульс 73
 — плотность 114
 Фотопроводимость 345, 357
 Фотоупругие коэффициенты 287
- Центр симметрии 43, 102
- Черного тела излучение 218
 Четность 42, 70, 160
 Чистое состояние 22, 30
- Шредингера уравнение 15
 Штарковское смещение 179, 186
 Штерна — Герлаха эксперимент 61
- Эйнштейна квантовая гипотеза 187
 — коэффициенты A и B 218
 Экстинкции коэффициент 257
 Экстра-фотон 265, 273, 283, 291
 Электрический диполь 39, 44, 45
 — дипольный переход 49
 — — — восприимчивость 76
 — — — вырождение 94
 — — — кинетические уравнения 131
 — — — коэффициент поглощения 78
 — — — матричные элементы 42
 — — — насыщение 90
 — — — просветление 94
 — — — тензорные свойства 98, 100
 — — — уравнение движения 58
 — — — четность 44
 — — — штарковское смещение 179, 186
 Энтропия 34
 Эреифеста теорема 15
 Эффективная масса 320, 331, 338, 373
 Эффективное сечение поглощения 81
 — — — в классическом случае 82
 — — — для многофононных процессов 173
 — — — при резонансе 82
 — — — рамановского рассеяния 275
- Ядерный магнитный резонанс 72

ОГЛАВЛЕНИЕ

Предисловие к русскому изданию	5
Предисловие	7
Обозначения	11
Глава 1. Квантовая теория	15
§ 1. Введение	15
§ 2. Некоторые основные понятия	16
§ 3. Некоторые свойства операторов	19
§ 4. Оператор плотности	21
Литература	33
Задачи	33
Глава 2. Дипольные переходы	36
§ 1. Введение	36
§ 2. Гамильтонная атома в электромагнитном поле	36
§ 3. Матричные элементы и понятие четности	42
§ 4. Уравнения движения для электрического дипольного перехода	47
§ 5. Уравнения движения для магнитной дипольной системы, имеющей спин $1/2$	60
Литература	70
Задачи	70
Глава 3. Резонансные процессы	74
§ 1. Введение	74
§ 2. Электрический дипольный переход в стационарном состоянии; поглощение, дисперсия и насыщение	75
§ 3. Теоретические свойства восприимчивости	97
§ 4. Нестационарные процессы для электрического дипольного перехода. Система амплитудных уравнений и кинетические уравнения	106
§ 5. Парамагнитный резонанс	117
Литература	120
Задачи	120
Глава 4. Лазеры	124
§ 1. Введение	124
§ 2. Инверсия населенностей	125
§ 3. Порог генерации	130
§ 4. Выходная мощность в стационарном режиме	136
§ 5. Нестационарные процессы	137
§ 6. Модуляция добротности	142
§ 7. Четырехуровневый лазер	146
§ 8. Гелий-неоновый газовый лазер	147
Литература	153
Задачи	154
Глава 5. Нелинейные эффекты в квантованных средах	158
§ 1. Введение	158
§ 2. Четность и вероятности переходов	161
§ 3. Сечения рассеяния для процессов многофотонного поглощения	171
§ 4. Генерация гармоник	173
§ 5. Штарковское смещение	179

§ 6. Вынужденное рамановское рассеяние	181
Литература	184
Задачи	185
Глава 6. Квантование поля	187
§ 1. Введение	187
§ 2. Квантование полей в резонаторе	188
§ 3. Квантование плоских волн	199
§ 4. Взаимодействие излучения с веществом в случае, когда поле и среда квантуются	202
Литература	220
Задачи	220
Глава 7. Взаимодействие излучения с фононами	223
§ 1. Введение	223
§ 2. Колебания кристаллической решетки	224
§ 3. Квантование колебаний решетки	232
§ 4. Сохранение энергии и импульса в процессах с участием фононов	242
§ 5. Инфракрасные свойства оптических фононов	250
§ 6. Эффект Рамана	260
§ 7. Эффект Бриллюэна	278
Литература	297
Задачи	299
Глава 8. Электроны в кристаллах	303
§ 1. Введение	303
§ 2. Электроны в кристаллах в отсутствие внешнего поля	303
§ 3. Внутривольные эффекты	317
§ 4. Межзонные эффекты	332
§ 5. Фотопроводимость	345
§ 6. Полупроводниковые инжекционные лазеры	349
Литература	355
Задачи	355
Приложение 1. Влияние \mathcal{H}^r на ρ_{11}	357
Приложение 2. Скорости переходов при равновесии	360
Приложение 3. Доказательство вещественности произведения $\mu_{\alpha\beta}^*$	360
Приложение 4. Поправочный коэффициент Лоренца для локального поля	361
Приложение 5. Соотношения Крамерса — Кронига	364
Приложение 6. Усреднение по ориентациям	365
Приложение 7. Вывод кинетического уравнения для фотонов	366
Приложение 8. Вещества, в которых наблюдается вынужденное рамановское рассеяние	369
Приложение 9. Соотношение между поляризуемостью и смещением	371
Приложение 10. Выражение для d^3k через ω_{21}	373
Приложение 11. Вычисление интегралов в уравнении (8.54)	375
Приложение 12. Вывод соотношения $(\partial E / \partial k_{\alpha})^2 = (2\hbar^2 / 3m_{\alpha}^*) E$	376
Приложение 13. Вывод выражения (8.99) из (8.98)	377
Предметный указатель	379