Д.Н.Клышко

ФОТОНЫ И НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА

В книге на примере небольшого числа оптических эффектов разъясняются основные понятия и методы квантовой оптики. Предварительно даются необходимые сведения из квантовой механики и статистической физики. Основное внимание уделяется нескольким обнаруженным за последние 10—20 лет явлениям (эффект Брауна—Твисса, двухфотонное излучение, параметрическое и поляритонное рассеяние света), а также некоторым еще не наблюдавшимся эффектам (корреляция стоксовых и антистоксовых фотонов, существование нечетных моментов поля в тепловом излучении). Общей особенностью этих эффектов является то, что в них фотоны излучаются по двое и наиболее ярко проявляются квантовые свойства света. Попутно рассматриваются некоторые методические вопросы, например, влияние оптической нелинейности вещества на статистику его собственного теплового излучения. Устанавливаются феноменологические связи между наблюдаемыми спонтанными и вынужденными процессами (обобщенные законы Кирхгофа). Рассматриваются возможные метрологические применения таких связей для абсолютной калибровки источников и приемников света.

ОГЛАВЛЕНИЕ

Предисловие 7

Некоторые обозначения 12

Глава 1. Рассеяние света на свете в веществе 13

§ 1.1. Параметрическое рассеяние (ПР) 13

Спектр ПР (13). Когерентное рассеяние (15). Нулевые флуктуации вакуума (16). Эффективная температура ПР (16). Число фотонов на моду и яркость света (18). Яркость ПР (21). Параметрическая сверхлюминесценция (22). Перестроечные кривые (23). Интегральные интенсивности ПР (25)

§ 1.2. Рассеяние на поляритонах (РП) 27

Поляритоны и закон дисперсии (27). Сравнение ПР и РП (28). Интенсивность РП (28). Частотно-угловой спектр РП (29). Нормальная и аномальная дисперсия (30). Эффект линеаризации (31)

§ 1.3. Четырехфотонное рассеяние и нелинейная спектроскопия 32

Гиперпараметрическое рассеяние (ГПР) (32). Каскадное ГПР (34). Гиперкомбинационное рассеяние (ГКР) (34). Излучение бифотонов при КР (34). Резонансная люминесценция (35). Двухфотонная резонансная люминесценция (35). Нелинейная спектроскопия (35)

§ 1.4. Многофотонные эффекты — историко-библиографический очерк 36

Каменный (долазерный) век (36). Лазерный век (38). Трех-фотонное параметрическое рассеяние (38). Другие виды рассеяния (40). Гиперпараметрическое рассеяние (41)

Глава 2. Некоторые сведения из квантовой механики и статистической 43

физики
§ 2.1. Переход от классического описания к квантовому 43
Квантование уравнений движения (43). Выбор представления (45). Сравнение теории и эксперимента (46). Экспериментальная процедура (46)
§ 2.2. Обозначения Дирака и геометрическая интерпретация квантовой механики 48
Функции как векторы (48). Преобразования функций и тензоры (49). Разложение единицы (50). Различные представления (51). Унитарные преобразования (52). Связь с физикой (53). Время как параметр (54). Квантовые функции корреляции (56). Смешанные состояния и матрица плотности (56)
§ 2.3. Представление взаимодействия и теория возмущений 58
Представление взаимодействия (58). Другие представления (60). Теория возмущений для оператора рассеяния (61). Вероятность перехода (62). Скорость перехода (63)
§ 2,4. Флуктуационно-диссипативные теоремы (ФДТ) 64
Линейная. ФДТ (65). Спектральная форма (J8). Симметрия моментов и восприимчивостей (68). Квадратичная ФДТ (69). Приближенная кубическая ФДТ (71)
§ 2.5. Релаксация и кинетические уравнения 73
Кинетическое уравнение для матрицы плотности (74). Кинетические уравнения для средних (75). Кинетические уравнения для населенностей (76). Спонтанные и вынужденные переходы (77)
Глава 3. Основы квантовой оптики 79
§ 3.1. Канонические переменные электромагнитного поля Динамические уравнения для поля (79). Пространственное фурье-преобразование полей (80). Канонические переменные поля (82). Канонические уравнения поля и функция Грина (82). Роль размеров нормировочного объема (84) 79
§ 3.2. Квантование электромагнитного поля 84
Гамильтониан поля (84). Коммутаторы операторов поля (85). Свободное поле (88). Разложение операторов поля в частотный интеграл Фурье (88)
§ 3.3. Возможные состояния поля 90
Энергетические и когерентные состояния (90). Многомодовое поле (92). Свойства базисных состояний (94). Смешанные состояния (94). Характеристическая функция (96). Динамика состояния поля (98). Матрица рассеяния поля (100)
§ 3.4. Функция Грина и квантование макроскопического поля в среде 101
Феноменологические уравнения Максвелла (101). Функция Грина для поля в среде (102). Нормальные волны (104). Закон дисперсии (104).

Переход к ***kt***-представлению (105). Квантование поля в среде (106). Представление ***ωr*** (108)
Глава 4. Тепловое излучение в линейном приближении 110
§ 4.1. Статистика равновесного поля в свободном пространстве 111
Равновесный статистический оператор (111). Характеристическая функция (111). Статистика фотонов (111)
§ 4.2. Флуктуации макроскопического поля в веществе 113
Двухэтапный расчет (113). Прямой путь (114). ***kt*** -представление (115). Проблема наблюдения (116). Флуктуации поля в изотропной среде (116)
§ 4.3. Тепловое излучение нагретых тел 118
Применение ФДТ (116). Закон Кирхгофа (120)
§ 4.4. Обобщенный закон Кирхгофа (ОЗК) 121
Входное и выходное поля (122). Матрица рассеяния (122). Векторные обозначения (124). Вывод ОЗК по Найквисту (124). Частные случаи (126). Высшие моменты ТИ (127). Тепловое поле по теории возмущения (128). Вывод ОЗК по Ланжевену (129)
§ 4.5. Вывод ОЗК с помощью кинетического уравнения 129
Тепловое излучение и кинетическое уравнение (129). Кинетическое уравнение для χ-функции (130). Уравнения для моментов (133). Шумы квантовых усилителей (134)
§ 4.6. Тепловое излучение в дальней зоне 135
Дальнее поле и операторы a_k (135). Функция корреляции(136). Измерение модуля МР (137). Микроскопическая модель (137). Объем когерентности (139). Счет фотонов (140). Феноменологическая модель (141)
§ 4.7. Интерференция интенсивностей 142
Вероятность совпадения фотоотсчетов (143). Роль объема детектирования (144). Интерпретация эффекта (146).
Глава 5. Влияние ангармонизма вещества на его тепловое излучение 148
§ 5.1. Многофотонные переходы и высшие моменты поля Ангармонизм и 149
корреляция разночастотных мод (149). Равновесная и неравновесная задачи (149). Двухфотонный парадокс (150)
§ 5.2. Вычисление моментов поля с помощью теории возмущения Связь 151
выходных и входных моментов (152). Общие свойства преобразования (154). Высшие поправки (155)
§ 5.3. Третий момент теплового поля 156
Связь с двухвременной функцией корреляции молекул (156). Интерпретация эффекта (158). Оценка куба поля (160). Проблема детектирования (161)
§ 5.4. Двухфотонный закон Кирхгофа 163
Эффективное кинетическое уравнение (163). Первые моменты (165).

Вторые моменты (166). Четвертые моменты (167). Двухфотонный закон Кирхгофа (168). Сравнение с однофотонным ТИ (169). Скорость совпадений фотоотсчетов (170). ОЗК для третьего момента (172)
Глава 6. Параметрическое рассеяние 174
§ 6.1. Скорость генерации бифотонов 175
Третий порядок теории возмущения (175). Эффективный гамильтониан (177). Вероятность рождения бифотонов (178). Дифференциальная скорость рождения бифотонов (179). Закон сохранения импульса (180).
§ 6.2. Интегральная интенсивность ПР 181
Детектор с низким частотным разрешением (182). Яркость света ПР (183). Детектор с низким угловым разрешением (184). Учет непараллельности групповой и фазовой скоростей (185)
§ 6.3. Форма спектральной линии ПР 186
Длина когерентности (187). ***k***-спектроскопия (188). Эффективная ширина линии (189). Вырожденный случай (190). Влияние спектра накачки на спектр сигнала (190). Гауссов луч накачки (191)
§ 6.4. Статистика поля и метрологические применения ПР 194
Уравнения Гейзенберга для операторов поля (195). Спонтанное рассеяние (196). Эталонный генератор фотонов (197)
Скорость совпадений при гауссовой накачке (198). Абсолютный радиометр (201). Ошибки измерения (202).
§ 6.5. Параметрическая сверхлюминесценция 203
Монохроматическая накачка (204). Характеристическая функция (205). Одномерная модель: представления ωq_z и k_z (207). Модулированная накачка и представление ММА (210)
§ 6.6. Рассеяние на поляритонах (РП) 213
Описание РП с помощью линейной ФДТ (213). Применение нелинейной ФДТ (216). Однополюсное приближение (218). Закон Кирхгофа для ПР и РП (220)
Глава 7. Гиперпараметрическое и комбинационное рассеяния 224
§ 7.1. Нерезонансное ГПР 224
Центросимметричная среда (224). ГПР в пьезокриоталлах (225). Интенсивность ГПР в пьезокристаллах (229). Статистика каскадного ГПР (230).
§ 7.2. Резонансное ГПР и комбинационное рассеяние 230
Уравнение для медленно-меняющихся операторов поля (231). Вакуумные шумы (232). Молекулярные шумы (233)
§ 7.3. Корреляция стоксова и антистоксова излучения при КР 234
Классическая модель (234). Феноменологическое описание (235). Корреляция в одномерном приближении (238). Скорость совпадений (240). Гауссова накачка (242). Оценка числа совпадений (245)
Приложение. Функция Грина и типы поляризации поля в поглощающей 246

анизотропной среде
Диагонализация и обращение неэрмитовых матриц (2411). Собственные векторы и значения тензора Грина (248). Собственные векторы тензоров $\boldsymbol{\pi\varepsilon}^{-1}$ и $\boldsymbol{\varepsilon}^{-1}\boldsymbol{\pi}$ (249). Углы анизотропии (251)
Литература 252

Памяти Р. В. ХОХЛОВА

ПРЕДИСЛОВИЕ

Название этой книги кажется с первого взгляда противоречивым: ведь термин «нелинейная оптика» ассоциируется с мощным лазерным излучением, содержащим огромное количество фотонов, и здесь, казалось бы, нет никакой необходимости учитывать фотонную структуру света. Действительно, подавляющая часть эффектов нелинейной (как, впрочем, и линейной) оптики прекрасно описывается полуклассической теорией излучения, в которой электромагнитное поле подчиняется классическим уравнениям Максвелла и лишь поведение вещества является квантовым.

Однако, некоторые оптические явления трудно или невозможно трактовать с помощью классических представлений, и последовательная теория должна описывать и атомы, и свет, исходя из принципов квантовой механики. Кроме того, наглядные фотонные представления очень удобны для качественного описания и классификации многих оптических эффектов. Например, эффект удвоения или сложения частоты света при его распространении через прозрачный кристалл можно считать результатом множества элементарных процессов, в каждом из которых два фотона падающего света сливаются в один фотон с суммарной энергией и частотой. Возможен, очевидно, и обратный процесс распада падающего на кристалл фотона на пару фотонов с меньшими энергиями. Такие процессы объясняют явление *параметрического рассеяния* света. При *комбинационном рассеянии* (эффект Рамана) падающий фотон превращается в фотон с меньшей частотой, называемой *стоксовым*, и в квант возбуждения вещества (например, фонон в случае колебательного возбуждения). Кроме того, фотон падающего света может объединиться с тепловым фононом и превратиться в *антистоксов* фотон с большей частотой. При двухфотонном поглощении два фотона падающего света превращаются в возбужденное состояние атома, молекулы или кристалла. Обратно, возбужденный атом может перейти в основное состояние, излучив пару фотонов.

В настоящей книге из множества эффектов нелинейной оптики, обнаруженных за последние 20 лет, рассматриваются, в основ-

ном, лишь явления, связанные с излучением фотонов парами (пары одновременно возникающих фотонов мы для краткости будем называть «бифотонами»). Излучение фотонов парами (а также тройками, четверками и т. д.) тесно связано с оптической нелинейностью вещества, и в нем наиболее ярко проявляются квантовые свойства света. Мы обсудим также и «классический» эффект *группировки* фотонов, не связанный с линейностью вещества и не требующий для объяснения квантования поля (эффект Брауна—Твисса). Эта группировка — почти случайная, пары фотонов в обычном свете встречаются всего в два раза чаще, чем в хаотическом пуассоновском потоке песчинок (это превышение связано с волновой природой света). Заметим, что двухфотонное поглощение, наоборот, приводит к равномерному распределению фотонов в прошедшем через вещество свете (эффект *антигруппировки*), а в лазерах нелинейность рабочего вещества (эффект насыщения) распределяет фотоны хаотически.

Кроме явлений параметрического рассеяния и двухфотонного распада, наблюдавшихся уже в лазерную эпоху оптики, бифотоны должны излучаться также и при давно известном спонтанном комбинационном рассеянии света. Как будет показано в этой книге, антистоксовы фотоны при низких температурах рассеивающего вещества излучаются лишь в паре со стоксовыми. К этому эффекту непосредственно примыкает четырехфотонное или *гиперпараметрическое* рассеяние, отличающееся от трехфотонного параметрического рассеяния участием в элементарном акте двух фотонов накачки. Мы рассмотрим также некоторые особенности эффекта рассеяния света на *поляритонах*, занимающего промежуточное положение между параметрическим рассеянием и комбинационным рассеянием на колебаниях ионов в решетке кристалла. Эти колебания сопровождаются колебаниями электромагнитного поля внутри кристалла. Поляритон — это квант макроскопического (усредненного) поля, т. е. *фотон в среде*, и поэтому рассеяние света на поляритонах, а также трех- и четырехфотонное параметрическое рассеяние, естественно называть *рассеянием света на свете в веществе* (последнее дополнение отличает его от *рассеяния света на свете в вакууме* — чрезвычайно слабом и еще не наблюдавшемся эффекте релятивистской квантовой электродинамики).

Параметрическое рассеяние дает уникальную возможность «изготовления» двухфотонных состояний поля и, кроме того, отличается рядом других интересных особенностей. Спектр рассеянного света почти сплошной от радиочастот до частоты накачки. Излучение происходит не независимо отдельными атомами, а когерентно всем образцом, что приводит к довольно резкой направленности излучения вперед, вдоль луча накачки. Фотоны одной пары разлетаются под определенными малыми углами друг к

другу и к лучу накачки, в соответствии с законом сохранения импульса при взаимодействии трех фотонов.

Рассматриваемые в книге эффекты заслуживают изучения не только в качестве неких «экзотических» проявлений квантового характера света и нелинейности вещества. Они уже нашли ряд полезных применений. Параметрическое рассеяние является основой нового спектроскопического метода измерения линейных и нелинейных оптических параметров кристаллов. При мощной импульсной накачке оно переходит в достаточно интенсивную *параметрическую сверхлюминесценцию*, которая служит источником плавно перестраиваемых по частоте коротких (до 10^{-12} с) импульсов света. Заметим, что интенсивность спонтанного трехфотонного параметрического рассеяния пропорциональна интенсивности накачки, и поэтому ее наблюдение возможно и с помощью нелазерных источников накачки, в отличие от четырехфотонного рассеяния, пропорционального квадрату накачки, и от параметрической сверхлюминесценции, по определению зависящей от накачки сверхлинейно (экспоненциально).

С точки зрения прикладной нелинейной оптики эффект параметрического рассеяния является источником шумов, ограничивающих чувствительность параметрических усилителей и преобразователей частоты света и предельную стабильность параметрических генераторов света. Однако квантовые шумы могут, в принципе, найти полезное применение в метрологии света, стать основой «квантовой фотометрии». Параметрический преобразователь частоты является одновременно абсолютным (не требующим калибровки) измерителем яркости света. Кроме того, одновременность и направленность вылета фотонов в парах при параметрическом рассеянии позволяет осуществить эталонный генератор фотонов, излучающий известное число фотонов.

Наконец, рассматриваемые явления имеют определенную эвристическую и педагогическую ценность. Они предоставляют возможность изучения на наглядном[1]) примере нерелятивистской квантовой электродинамики и освоения многих важных понятий теоретической физики — функций Грина, флуктуационно-диссипативной теоремы и т. д. Хотя непосредственная тема книги довольно узка, попутно затрагивается достаточно широкий круг методических вопросов теории взаимодействия света и вещества. Чтобы заинтересовать читателя, перечислим некоторые из них в умышленно парадоксальной форме: Может ли раскаленное прозрачное вещество излучать свет? Можно ли с помощью закона Кирхгофа описать эффект Брауна—Твисса? Может ли в тепловом излучении существовать не равный нулю средний куб электрического поля?

[1]) Заметим, что параметрическое рассеяние легко наблюдается невооруженным глазом при мощности накачки порядка 0,1 Вт в виде кольцеобразной радуги.

Можно ли измерить яркость флуктуаций электромагнитного вакуума и сделать источник света с известным числом вылетевших фотонов? Коррелируют ли стоксовы и антистоксовы компоненты при комбинационном рассеянии света? Возможно ли состояние поля с определенной энергией и неопределенным числом фотонов? На все эти вопросы ниже даются положительные ответы.

В настоящей книге делается попытка (по-видимому, первая) систематического описания перечисленных выше и некоторых близких к ним эффектов. Иначе книгу можно было бы назвать «Введение в квантовую нелинейную оптику». Надо сказать, что в известных монографиях по квантовой оптике [1—4] основное внимание уделяется статистике свободного поля без учета нелинейности вещества, приводящей к корреляции разночастотных компонент поля. При рассмотрении статистики лазерного излучения [4—6] учитывается только один из нелинейных эффектов — эффект насыщения, стабилизирующий амплитуду колебаний. Краткое описание параметрического рассеяния имеется лишь в книге Ахманова и Чиркина [7], посвященной в основном преобразованию статистики света за счет вынужденных нелинейных эффектов.

Основное внимание здесь уделяется феноменологическому описанию реально наблюдаемых оптических явлений и связям между независимо изменяемыми величинами, в частности, связям типа закона Кирхгофа. Установление таких связей позволяет при модельных вычислениях ограничиться вынужденными эффектами и полуклассическими теориями. В книге рассматриваются лишь простейшие качественные микромодели, поясняющие смысл и порядки величин феноменологических параметров. Более детальные расчеты различных оптических микро-и макропараметров можно найти в монографиях [8—17], вышедших за последние полтора десятилетия и посвященных взаимодействию света с веществом. В качестве общего вводного курса, охватывающего квантовую оптику и многофотонные процессы, можно рекомендовать книгу [18].

Автор стремился изложить материал на «промежуточном» (между учебным и монографическим) уровне и сделать его доступным студентам, только что изучившим основы квантовой механики, и физикам-экспериментаторам, успевшим их забыть. Большинство явлений описывается с помощью нескольких моделей, начиная с простейших. Книга начинается с вводной главы, в которой приводятся упрощенное качественное описание параметрического и поляритонного рассеяний, а также краткие историко-библиографические сведения. Далее, в главе 2 даются необходимые сведения из квантовой механики и статистики. В главе 3 описывается переход от классической к квантовой электродинамике.

Главы 4 и 5 посвящены соответственно одно- и двухфотонному тепловому излучению. Здесь установлены довольно общие соотношения между спонтанными и вынужденными эффектами, названные *обобщенными законами Кирхгофа*. Аналогичные соотношения используются и в следующих двух главах, посвященных процессам неупругого рассеяния. В главе 6 параметрическое и поляритонное рассеяние рассматриваются более подробно, чем в главе 1. Глава 7 содержит феноменологическое описание четырехфотонного (гиперпараметрического) рассеяния и связанного с ним когерентного комбинационного рассеяния. Наконец, в Приложении определяется спектральная функция Грина для поля в анизотропной поглощающей среде.

Настоящая книга основана на исследованиях, проводившихся автором на кафедре волновых поцессов физического факультета МГУ. Автору посчастливилось много лет работать под руководством выдающегося ученого и обаятельного человека — Рема Викторовича Хохлова, который вместе с С. А. Ахмановым создал школу нелинейной оптики в Московском университете. Р. В. Хохлов проявлял большой интерес к «фотонным» эффектам нелинейной оптики и первые планы этой книги получили его одобрение.

Автор хотел бы выразить признательность Н. И. Назаровой, Г. В. Венкину, В. С. Днепровскому, Д. П. Криндачу, А. Н. Пенину, Б. Ф. Полковникову, В. В. Фадееву и другим сотрудникам кафедры волновых процессов за помощь и поддержку. Автор благодарен также П. В. Елютину, Я. Б. Зельдовичу, Ю. А. Ильинскому и Р. Л. Стратоновичу, просмотревшим рукопись книги и сделавшим ценные замечания. Наконец, автор хотел бы переложить часть вины за появление на свет еще одной книги на В. Б. Брагинского, по инициативе которого она была написана.

Д. Н. Клышко

НЕКОТОРЫЕ ОБОЗНАЧЕНИЯ

A — сечение образца или луча
$\mathscr{A}$ — коэффициент поглощения
e — вектор поляризации электрического поля
E — напряженность электрического поля
$\mathscr{E}$ — энергия
F — плотность потока фотонов
$\mathscr{F}$ — коэффициент преобразования
G — функция Грина
$\mathscr{G}$ — коэффициент усиления или передачи
H — напряженность магнитного поля
$\mathscr{H}$ — гамильтониан
j — плотность тока
l — длина образца
L — длина нормировочного объема
M — число молекул
N — число фотонов в одной моде
$\mathscr{N}$ — равновесное число фотонов в моде
P — поляризация, вероятность
$\mathscr{P}$ — мощность
S — яркость или интенсивность света
$\mathscr{S}$ — оператор рассеяния
u — групповая скорость
U — матрица рассеяния
$\mathscr{U}$ — оператор эволюции
v — объем одной моды в пространстве ($v = 8\pi^3/L^3$)
V — объем образца
$\mathscr{V}$ — энергия возмущения
W — поток фотонов
Δ — волновая расстройка
η — квантовая эффективность
ϑ — угол рассеяния
ν — частота в $см^{-1}$
π — оператор проектирования на плоскость, перпендикулярную волновому вектору
ρ — угол между групповой и фазовой скоростями
χ — квадратичная восприимчивость, характеристическая функция
Ω — телесный угол

ГЛАВА 1

РАССЕЯНИЕ СВЕТА НА СВЕТЕ В ВЕЩЕСТВЕ

В этой главе дается предварительное качественное и по возможности наглядное описание основных свойств параметрического (трех- и четырехфотонного) и поляритонного рассеяний света (§§ 1.1—1.3), а также приводится краткая история открытия этих и некоторых близких многофотонных эффектов (§ 1.4). Более подробное феноменологическое рассмотрение процессов рассеяния содержится в главах 6 и 7.

§ 1.1. Параметрическое рассеяние (ПР)

При прохождении луча света через прозрачное однородное вещество — газ, чистую жидкость или совершенный кристалл — небольшая часть световой энергии рассеивается во все стороны из-за атомной структуры вещества. При низких температурах и при неучете квантовых флуктуаций атомы неподвижны, и свет при рассеянии изменяет лишь направление распространения (упругое рассеяние), а при высокой температуре тепловое движение атомов модулирует рассеиваемый свет, и поэтому изменяется не только направление, но и частота света (неупругое рассеяние). В результате частотный спектр рассеянного света повторяет со сдвигом в оптическую область спектр теплового движения вещества. Например, при обычном комбинационном рассеянии (КР) спектр рассеянного света состоит из нескольких дискретных компонент, отстоящих от частоты падающего света на величину, равную частоте одного из нормальных колебаний атомов в молекуле. Как правило, при КР частотный сдвиг не превышает нескольких процентов.

Спектр ПР. Характерная особенность ПР — сплошной спектр рассеянного излучения, который может с небольшими перерывами занимать весь интервал от радиочастот до частоты падающего света (накачки), причем свет с данной частотой ω_1 излучается веществом в определенном направлении (рис. 1), зависящем от дисперсии показателя преломления $n(\omega)$ согласно следующему уравнению:

$$\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 = \boldsymbol{k}_3, \tag{1}$$

где $\boldsymbol{k}_1$ — волновой вектор наблюдаемого рассеянного света, равный по величине $n_1\omega_1/c = 2\pi n_1/\lambda_1$ (λ_1 — длина волны в вакууме),

$\boldsymbol{k}_3$ — волновой вектор накачки, а $\boldsymbol{k}_2$ — волновой вектор так называемой *холостой* волны, имеющей частоту $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$. Поскольку импульс фотонов в среде равен $\hbar\boldsymbol{k}$ ($\hbar$ — постоянная Планка), то уравнение (1), которое относится к случаю трехфотонного ПР, можно интерпретировать как закон сохранения импульса при взаимодействии трех фотонов. Его называют также условием *пространственного синхронизма* или условием согласования фазовых скоростей.

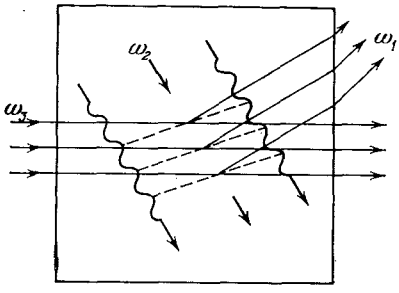

Рис. 1. Когерентное рассеяние света. Падающий слева на вещество свет частично отражается от волновых фронтов (пунктирные линии) «холостой» волны, бегущей сверху, и в результате вправо вверх рассеивается слабая «сигнальная» (наблюдаемая) волна с частотой $\omega_1 = \omega_3 - \omega_2$ и волновым вектором $\boldsymbol{k}_1 = \boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_2$. Холостые волны существуют в веществе из-за тепловых или квантовых флуктуаций, и они могут быть, например, звуковыми или световыми. В последнем случае происходит «рассеяние света на свете».

В случае четырехфотонного ПР (или гиперпараметрического рассеяния — ГПР) в правую часть (1) следует добавить $\boldsymbol{k}_3'$ — волновой вектор второго падающего луча света, который может иметь другое направление и частоту. Этот эффект интерпретируется как результат взаимодействия четырех фотонов. Его величина пропорциональна произведению интенсивностей двух падающих лучей.

Итак, ПР объясняется распадом одного или двух фотонов падающего света на пару фотонов с измененными частотами и направлениями. Единственное ограничение на частоты и направления — уравнение (1) является довольно мягким, что и приводит к квазинепрерывному спектру ПР.

Интенсивность ПР, как и других многофотонных оптических явлений, можно определить через нелинейность реакции (отклика) вещества на световое электрическое поле:

$$P(E) = \chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \ldots, \qquad (2)$$

где P — поляризация, т. е. дипольный момент единицы объема вещества. Линейная поляризуемость $\chi^{(1)}$ определяет показатель преломления, а квадратичная поляризуемость $\chi^{(2)}$, которая имеет заметную величину только в пьезокристаллах, приводит, помимо трехфотонного ПР, к удвоению частоты света и к другим аналогичным эффектам нелинейной оптики. Кубическая поляризуемость $\chi^{(3)}$ описывает утроение частоты света и ГПР. Эти же нелинейные параметры вещества определяют эффект параметрического усиления интенсивности света, который привел к созданию важного типа

перестраиваемых по частоте лазеров — параметрических генераторов света.

С радиофизической точки зрения рассеянный свет — это собственные шумы параметрического усилителя. Специфика оптического диапазона проявляется здесь лишь в замене шумовой температуры T, определяющей шумы радиоусилителей, на энергию кванта $\hbar\omega_1$, деленную на постоянную Больцмана $\varkappa$, и в «многомодовости» оптических систем. Иногда это явление называют «параметрической люминесценцией» или еще «оптическим параметрическим шумом», «параметрическим расщеплением частоты света».

Следует заметить, что эффект трехфотонного ПР является заметным в буквальном смысле слова — при мощности падающего синего света 0,1 Вт зелено-желто-красное свечение кристалла ниобата лития легко видно невооруженным глазом. Зеленому свечению в данном случае соответствуют холостые частоты ω_2, лежащие в инфракрасном (ИК) диапазоне. По мере приближения ω_2 к собственным частотам кристаллической решетки ПР непрерывно переходит в обычное КР на колебаниях ионов решетки кристалла. Промежуточный случай получил название «рассеяние света на поляритонах».

Когерентное рассеяние. Условие (1) приводит к направленности рассеянных волн данной частоты, которая может иметь место, лишь если отдельные излучающие элементы вещества сфазированы, когерентны. Эта пространственная когерентность является результатом нелокальности рассеивающей неоднородности, т. е. результатом распространения холостой волны.

Когерентность свойственна и другим видам рассеяния, если оно происходит на коллективных возбуждениях вещества, имеющих ненулевую скорость распространения. Например, рассеяние Мандельштама — Бриллюэна является результатом рассеяния падающего света на звуковых волнах. Оно также подчиняется уравнению (1), если в нем понимать под $\boldsymbol{k}_2$ волновой вектор звука.

Отличием ПР является одинаковая природа обеих волн — рассеивающей (холостой) и наблюдаемой (сигнальной), их равноправность. Кроме того, в отличие от звука световая холостая волна может распространяться без затухания на расстояние порядка и более 1 см внутри вещества, т. е. пересекать весь образец и выходить через его поверхность в вакуум.

Следует подчеркнуть, что при когерентном рассеянии складываются амплитуды парциальных волн, излучаемых отдельными молекулами образца, а поэтому интенсивность рассеяния с данной частотой и в данном направлении пропорциональна M^2, где M — число молекул, освещаемых накачкой. Кроме когерентного рассеяния, имеет место ненаправленное, некогерентное рассеяние на отдельных молекулах, пропорциональное M. Такое рассеяние, при котором фотон накачки превращается в результате взаимо-

действия с отдельными молекулами в пару фотонов, мы будем называть *трехфотонным релеевским*, так как оно аналогично обычному релеевскому рассеянию, при котором фотон накачки превращается в один фотон с другим направлением распространения. Существует еще *гиперрелеевское* рассеяние, при котором два фотона накачки превращаются в один фотон с двойной частотой.

Нулевые флуктуации вакуума. В случае рассеяния на звуке оптическая неоднородность появляется в результате теплового движения вещества. Но откуда в прозрачном кристалле берутся рассеивающие световые волны, ответственные за ПР? Их источником могло бы быть тепловое излучение (ТИ) окружающих непрозрачных на частоте ω_2 предметов — стен, воздуха,... Интенсивность ТИ на частоте ω при температуре T пропорциональна функции Планка

$$\mathcal{N}(x) = (e^x - 1)^{-1} \qquad \left(x \equiv \frac{\hbar\omega}{\varkappa T} \equiv \frac{C_2}{\lambda T}\right), \tag{3}$$

где $C_2 = 2\pi\hbar c/\varkappa = 1{,}4388$ см·К — так называемая вторая постоянная излучения. Однако при $\lambda_2 = 1$ мкм и комнатной температуре $x \sim 50$ и $\mathcal{N} \sim 10^{-22}$, так что для объяснения ПР необходимо использовать квантовую теорию излучения, согласно которой спонтанные эффекты можно рассчитывать, прибавляя к функции (3), имеющей смысл среднего числа фотонов в одной моде, единицу:

$$\mathcal{N}(x) \to \mathcal{N}(x) + 1 = -\mathcal{N}(-x). \tag{4}$$

Для наглядности можно полагать, что эта единица обусловлена нулевыми флуктуациями вакуума, заполняющими Вселенную. Однако эти квантовые флуктуации холостого поля не сказываются при антистоксовом ($\omega_1 > \omega_3$) рассеянии. Последовательное описание различия в стоксовом и антистоксовом рассеянии возможно лишь в рамках квантовой теории света.

Эффективная температура ПР. Рассеяние Мандельштама — Бриллюэна вызвано модуляцией диэлектрической проницаемости $\varepsilon = 1 + 4\pi\chi^{(1)}$ тепловой звуковой волной, имеющей амплитуду Q, за счет упругооптической константы $\partial\chi^{(1)}/\partial Q$. При ПР роль этой константы, нарушающей принцип суперпозиции световых волн в веществе, играет квадратичная поляризуемость $\chi^{(2)} \approx \partial\chi^{(1)}/\partial E_2$. Пусть амплитуды электрического поля в волне накачки и в холостой волне равны E_3 и E_2, тогда в веществе в точке $\boldsymbol{r}$ возникнет поляризация на наблюдаемой частоте

$$P_1(\boldsymbol{r}) = \chi^{(2)} E_3 E_2^* e^{i(\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_2)\cdot\boldsymbol{r}}. \tag{5}$$

Строго говоря, поляризуемость $\chi^{(2)}$ является тензором третьего ранга (так как она связывает три вектора), однако в этой главе мы не будем учитывать векторную природу электромагнитного поля. Заметим, однако, что тензоры третьего ранга имеют заметную ве-

личину лишь в нецентросимметричных средах. При отсутствии постоянной внешней силы этим свойством обладают пьезокристаллы, и поэтому до сих пор трехфотонное ПР наблюдалось лишь в них.

Из уравнений Максвелла следует, что поляризация, осциллирующая с частотой ω_1 и имеющая амплитуду P_1, излучает волну с амплитудой

$$E_1 = 2\pi i\omega_1 c^{-1} \int\limits_{-l/2}^{l/2} dz\, P_1 e^{i(p_z - k_{1z})z}, \tag{6}$$

где l — толщина образца (который, как здесь предполагается, имеет форму плоского слоя) и $\boldsymbol{p}$ — волновой вектор поляризации, равный согласно (5) $\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_2$ (в этой главе мы пренебрегаем коэффициентами порядка единицы). Из (6) следует, что сигнал имеет максимальную амплитуду при выполнении условия пространственного синхронизма (1) для продольных компонент волновых векторов (в случае слоя условие синхронизма для поперечных компонент волновых векторов должно выполняться строго), при этом поле пропорционально l:

$$E_1 = 2\pi i\omega_1 c^{-1} P_1 l. \tag{7}$$

При неточном синхронизме продольных компонент вместо l фигурирует «длина когерентности»:

$$l_\Delta \equiv \int\limits_{-l/2}^{l/2} dz\, e^{-iz\Delta} = \frac{\sin(l\Delta/2)}{\Delta/2}, \tag{8}$$

$$\Delta \equiv \Delta(\boldsymbol{k}_1) \equiv k_{1z} + k_{2z} - k_{3z}. \tag{9}$$

При заданных векторах $\boldsymbol{k}_1, \boldsymbol{k}_3$ условия $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ и поперечного синхронизма определяют холостой волновой вектор $\boldsymbol{k}_2$ с точностью до знака его проекции на ось z.

Чтобы использовать правило квантования (4), надо перейти от амплитуд полей к числу фотонов на моду $N \sim |E|^2/\hbar\omega$. В результате из (5) — (8) находим число фотонов на моду справа от слоя:

$$N_1' = \mathcal{F}(\boldsymbol{k}_1)(N_2 + 1), \tag{10}$$

$$\mathcal{F} \equiv \beta^2 l_\Delta^2 \equiv 4\pi^2 c^{-2}\omega_1\omega_2\chi^2 |E_3|^2 l_\Delta^2.$$

Здесь N_2 — число реальных холостых фотонов, падающих на образец слева в направлении $\boldsymbol{k}_2$. Эта фор ула при $N_2 \gg 1$ описывает вынужденный эффект вычитания часто ы. Функция $\mathcal{F}(\boldsymbol{k})$ определяет энергетический коэффициент преобразования холостых волн в сигнальные. Пусть $\lambda_1 = \lambda_2 = 2\lambda_3 = 1$ мкм, $\chi = 10^{-8}$ СГС,

$\Delta = 0$, $l = 1$ см и интенсивность накачки

$$S_3 = \frac{c}{2\pi} |E_3|^2 \tag{11}$$

равна 1 Вт/см^2, тогда

$$\mathcal{F} = \frac{(2\pi)^5}{c} \left(\frac{\chi l}{\lambda_1}\right)^2 S_3 = 3 \cdot 10^{-8}. \tag{12}$$

Эта оценка показывает, что эффективное преобразование частоты при трехфотонных процессах в пьезокристаллах возможно лишь при интенсивности накачки порядка сотен мегаватт на квадратный сантиметр, получаемой в импульсных лазерах.

При $N_2 = 0$ (т. е. в отсутствие на «входе» реальной холостой волны) формула (10) описывает ПР. В этом случае согласно оценке (12) число рассеянных фотонов на моду равно $N_1' = 3 \cdot 10^{-8}$. Определим с помощью (3) эффективную или яркостную температуру рассеянного в направлении $\boldsymbol{k}_1$ света следующим образом:

$$T_{\text{эф}}(\boldsymbol{k}_1) \equiv \frac{\hbar\omega_1}{\varkappa \ln(1 + 1/N_1')} \equiv \frac{C_2}{\lambda_1 x_{\text{эф}}}. \tag{13}$$

Таким образом, эффективная температура — это температура равновесного планковского поля, имеющего такое же число фотонов на моду с частотой ω_1. Из (12) и (13) следует, что в направлении синхронизма $x_{\text{эф}} = 17$ и $T_{\text{эф}} = 800$ К. Если же $\lambda_1 = 0{,}5$ мкм, то температура будет 1600 К, что соответствует уже вполне заметной простым глазом величине.

Число фотонов на моду и яркость света. Как связаны число фотонов в моде или эффективная температура с непосредственно наблюдаемыми величинами, например, с яркостью света или с числом импульсов в секунду W на выходе фотоэлектронного умножителя (ФЭУ)? Понятие *моды* при отсутствии реального объемного резонатора вводится с помощью мысленного выделения в пространстве параллелепипеда со сторонами L_x, L_y, L_z и объемом L^3, охватывающего интересующую нас область поля. Далее реальное пространственное распределение поля $E(\boldsymbol{r})$ (в фиксированный момент времени) заменяется на периодическую функцию $E_{\text{пер}}(\boldsymbol{r})$ с периодом L_x вдоль оси x, L_y вдоль y и L_z вдоль z. Внутри L^3 поле $E_{\text{пер}} = E$, а различие реального и периодического поля вне L^3 не имеет значения.

Периодическую функцию от x можно разложить в ряд Фурье (причем она содержит лишь гармоники, кратные величине $2\pi/L_x$), поэтому периодическое поле можно представить в виде тройной суммы:

$$E(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{k}} E_{\boldsymbol{k}} e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}, \tag{14}$$

где мы ввели волновой вектор

$$\boldsymbol{k} \equiv \left\{ \frac{2\pi m_x}{L_x}, \frac{2\pi m_y}{L_y}, \frac{2\pi m_z}{L_z} \right\}, \tag{15}$$

$$m_\alpha = 0, \pm 1, \pm 2, \ldots$$

Таким образом, распределение поля в пространстве теперь задается не непрерывным множеством чисел $E(\boldsymbol{r})$, а счетным множеством $E_{\boldsymbol{k}}$, пронумерованным целыми числами m_α. Векторы $\boldsymbol{k}$ образуют *$\boldsymbol{k}$-пространство*, которое разбивается условием периодичности (15) на ячейки или *моды* с «объемом» $(2\pi)^3/L_xL_yL_z \equiv v$.

Учтем теперь зависимость поля от времени. Из уравнений Максвелла следует (§ 3.1), что если в L^3 нет «источников» или «стоков» поля, то

$$E_{\boldsymbol{k}}(t) = E_{\boldsymbol{k}}^{(+)} e^{-i\omega_k t} + E_{\boldsymbol{k}}^{(-)} e^{i\omega_k t}, \tag{16}$$

где

$$\omega_k \equiv ck = 2\pi c \left[\left(\frac{m_x}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{m_y}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{m_z}{L_z} \right)^2 \right]^{1/2} \tag{17}$$

— собственная частота моды. Комплексные числа $E_{\boldsymbol{k}}^{(\pm)}$ являются амплитудами поля в моде.

Пусть детектор «видит» волны с одной поляризацией, принадлежащей какому-то объему в $\boldsymbol{k}$-пространстве, содержащему много мод,

$$\Delta^3 k = k^2 \Delta k \, \Delta\Omega = \omega^2 \, \Delta\omega \, \Delta\Omega / c^3 \gg v. \tag{18}$$

Здесь $\Delta\omega$ — полоса частот детектора и $\Delta\Omega = \sin\vartheta \, \Delta\vartheta \, \Delta\varphi$ — его угловая апертура. Введем обозначение

$$\Delta g \equiv \Delta^3 k / v \equiv g_{\omega\Omega} \, \Delta\omega \, \Delta\Omega \tag{19}$$

для числа мод, которые «видит» детектор.

Пусть в каждой моде имеется по N фотонов, тогда плотность фотонов в моде будет NL^{-3}, плотность потока фотонов в моде — $cNL^{-3} \equiv F$ и скорость счета фотонов —

$$W = \eta \, FA \cos\vartheta \, \Delta g, \tag{20}$$

где η — квантовая эффективность ФЭУ, A — его площадь и ϑ — угол падения фотонов на поверхность ФЭУ. Если наблюдаемые моды содержат неодинаковое число фотонов и квантовая эффективность также неравномерна, то вместо (20) следует, очевидно, писать

$$W = \sum_{\boldsymbol{k}} \int_A dA \, \eta_{\boldsymbol{k}} F_{\boldsymbol{k}} \cos\vartheta_{\boldsymbol{k}}. \tag{21}$$

Устремим L^3 к бесконечности, тогда можно перейти от суммирования к интегрированию по правилу

$$\lim_{v\to 0}\sum_{\boldsymbol{k}} f_{\boldsymbol{k}} = v^{-1}\int d\boldsymbol{k}\, f(\boldsymbol{k}) = \frac{\omega^2}{vc^3}\int\limits_0^\infty d\omega \int\limits_{4\pi} d\Omega\, f(\omega, \Omega), \tag{22}$$

и в результате (21) принимает вид ($A_\perp \equiv A\cos\vartheta$):

$$W = \int dA_\perp \int d\omega \int d\Omega\, \omega^2 \eta N/8\pi^3 c^2 \equiv \int dA_\perp\, d\omega\, d\Omega\, \eta S_{\omega\Omega}/\hbar\omega, \tag{23}$$

где мы ввели новую величину —*спектральную яркость* излучения $S_{\omega\Omega}$, равную энергии, переносимой через единицу поверхности детектора за единицу времени в единичных спектральном интервале и телесном угле. Эта величина часто называется просто интенсивностью, ее размерность эрг/(с·см²·ср·Гц).

В поглощающей, излучающей или рассеивающей среде яркость и число фотонов зависят и от пространственной координаты: $S_{\omega\Omega} = S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{r})$, где под $\boldsymbol{r}$ следует понимать координату центра объема квантования L^3. Здесь координата по оси x определена лишь с точностью до «фурье-неопределенности»:

$$\delta x \sim \pm\frac{L_x}{2} \equiv \pm\frac{\pi}{\delta k_x}, \tag{24}$$

где δk_x — интервал между соседними модами, т. е. функция $S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{r})$ постоянна в пределах одной ячейки с объемом $vL^3 = 8\pi^3$ в шестимерном фазовом пространстве $\boldsymbol{r}\times\boldsymbol{k}$. Если на пути l вдоль направления $\boldsymbol{k}$ излучения, поглощения и рассеяния нет, то

$$S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{r}) = S(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{r} + l\hat{\boldsymbol{k}}) \tag{25}$$

— яркость света в данном направлении не уменьшается при удалении от источника света вдоль этого направления ($\hat{\boldsymbol{k}} \equiv \boldsymbol{k}/k$).

В фотометрии яркость принято считать свойством источника света (а не пространства), т. е. функцией координаты $\boldsymbol{r}_A$, принадлежащей поверхности тела. В то же время при рассмотрении переноса световой энергии в мутных средах используется понятие интенсивности света в произвольной точке пространства $\boldsymbol{r}$. По существу эти понятия совпадают («яркость поверхности» переносится в любую точку пустого пространства согласно (25)), и мы будем говорить о «яркости света в точке $\boldsymbol{r}$». Строгое статистическое определение яркости будет дано ниже (см. (3.2.8)). Интенсивностью мы будем называть величину $S = \hbar\omega c N/L^3$, характеризующую плотность потока энергии в одной моде.

Итак, согласно (19) и (23) спектральная яркость света и число фотонов в моде связаны соотношением

$$S_{\omega\Omega} = \hbar\omega g_{\omega\Omega} N/L^3 = N S_{\omega\Omega}^{\text{вак}} \qquad (S_{\omega\Omega}^{\text{вак}} \equiv \hbar\omega^3/8\pi^3 c^2). \tag{26}$$

Если подставить сюда распределение Планка (3), то мы получим яркость ТИ (одной поляризации) абсолютно черного тела. Коэффициент пропорциональности в (26) можно назвать спектральной яркостью флуктуаций вакуума. Такую яркость будет иметь равновесное излучение, если в формуле Планка заменить $\mathcal{N}$ на еди-

ницу. Найдем эффективную «температуру вакуума», т. е. температуру равновесного излучения, имеющего по одному фотону на моду (при данной частоте). По определению $\mathcal{N}(T_{\text{вак}}) = 1$, и из (3) при $\lambda = 1$ мкм следует $T_{\text{вак}} = C_2/\lambda \ln 2 \sim 2\cdot 10^4$ К.

Иногда удобно относить энергию излучения к единичному интервалу длин волн. Очевидно, имеет место связь

$$S_{\lambda\Omega} = \left| \frac{d\omega}{d\lambda} \right| S_{\omega\Omega} = \frac{2\pi c}{\lambda^2} S_{\omega\Omega}. \tag{27}$$

Согласно (26), (27) «яркость вакуума» при $\lambda = 1$ мкм равна

$$S_{\lambda\Omega}^{\text{вак}} = \frac{C_1}{2\pi\lambda^5} = 0{,}5955 \text{ Вт/(Å}\cdot\text{см}^2\cdot\text{ср)}, \tag{28}$$

где $C_1 \equiv 4\pi^2\hbar c^2$ — так называемая первая постоянная излучения.

В фотометрии используются также интегральные величины, содержащие менее детальную информацию. Если ширина спектра излучения меньше полосы пропускания детектора, то последний измеряет

$$S_\Omega \equiv \int d\omega\, S_{\omega\Omega}. \tag{29}$$

Эта величина называется яркостью. Интеграл

$$S_\omega^{\mathbf{d}} \equiv \int d\Omega \cos\vartheta\, S_{\omega\Omega} \tag{30}$$

можно назвать спектральной освещенностью (или спектральной светимостью), а интеграл

$$S \equiv \int d\omega\, d\Omega \cos\vartheta\, S_{\omega\Omega} \tag{31}$$

— просто освещенностью (светимостью). Наконец, если детектор перехватывает все излучение, то измеряется мощность (или сила света) источника

$$\mathcal{P} = \int d\omega\, d\Omega\, dA_\perp\, S_{\omega\Omega}. \tag{32}$$

Иногда удобно использовать такие обозначения:

$$S_{\omega\Omega} = \frac{dS}{d\omega\, d\Omega} = \frac{d\mathcal{P}}{d\omega\, d\Omega\, dA_\perp} = \frac{d\mathcal{E}}{d\omega\, d\Omega\, dA_\perp\, dt}, \tag{33}$$

где $\mathcal{E}$ — полная энергия, переносимая через какую-либо плоскость.

Яркость ПР. Согласно (10), (11) и (26)

$$S_{\omega\Omega} = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}} \mathcal{F} = \hbar c^{-5} \omega_1^4 \omega_2 \chi^2 S_3 l_\Delta^2. \tag{34}$$

Мощность, рассеянная в единичные спектральный и угловой интервалы, в $A_3 \cos\vartheta_1$ раз больше $S_{\omega\Omega}$ и пропорциональна мощности

накачки:

$$\mathscr{P}_{\omega\Omega} \approx \hbar c^{-5}\omega_1^4\omega_2\chi^2 l_\Delta^2 \mathscr{P}_3, \tag{35}$$

где $\mathscr{P}_3 = S_3 A_3$ — мощность и A_3 — сечение луча накачки ($\vartheta_1 \approx \approx 0$). Отсюда находим, что дифференциальная вероятность превращения фотона накачки в фотон с частотой ω_1 и направлением $\hat{k}_1$ в пределах единичных интервалов при $\vartheta_1 \ll 1$ равна

$$\begin{gathered} P_{\omega\Omega} \equiv \frac{\omega_3 \mathscr{P}_{\omega\Omega}}{\omega_1 \mathscr{P}_3} = \hbar c^{-5}\omega_1^3\omega_2\omega_3\chi^2 l_\Delta^2, \\ P_{\lambda\Omega} = \frac{(2\pi)^6 \hbar c \chi^2 l_\Delta^2}{\lambda_1^5\lambda_2\lambda_3} \sim 4\cdot 10^{-7}\ \text{нм}^{-1}\cdot\text{ср}^{-1}. \end{gathered} \tag{36}$$

Последняя оценка сделана для тех же условий, что и (12). Введем также дифференциальный поток сигнальных фотонов, имеющий размерность ср^{-1}:

$$W_{\omega\Omega} \equiv \frac{\mathscr{P}_{\omega\Omega}}{\hbar\omega_1} = c^{-5}\omega_1^3\omega_2\chi^2 l_\Delta^2 \mathscr{P}_3. \tag{37}$$

Параметрическая сверхлюминесценция. До сих пор мы не учитывали обратного влияния сигнальной волны на холостую. Для последней также имеют место соотношения (5), (6) с переставленными индексами 1, 2. Вместе такие соотношения образуют систему линейных дифференциальных уравнений, которые описывают взаимное усиление сигнальной и холостой волн по мере их распространения в нелинейном слое. Эта система легко решается, при этом коэффициент преобразования оказывается равным

$$\mathscr{F}_k = \beta^2 \frac{\operatorname{sh}^2 l\sqrt{\beta^2 - \Delta^2/4}}{\beta^2 - \Delta^2/4}, \tag{38}$$

где показатель усиления β определен в (10). Если на слой, кроме накачки, падает слабое некогерентное излучение с числами фотонов в модах N_k, то слой будет излучать по N_k' фотонов, где

$$N_k' = \mathscr{G}_k N_k + \mathscr{F}_k (N_{\tilde{k}} + 1) = \tag{39}$$

$$= \mathscr{G}_k (N_k + {}^1/_2) + \mathscr{F}_k (N_{\tilde{k}} + {}^1/_2) - {}^1/_2, \tag{40}$$

$$\mathscr{G}_k = \mathscr{F}_k + 1 \tag{41}$$

($\tilde{k}_\perp \equiv -k_\perp$, $\omega_{\tilde{k}} = \omega_3 - \omega_k$). Из (39) следует, что спонтанные и вынужденные эффекты тесно связаны и описываются одной формулой. Формулы такого типа мы будем называть обобщенным законом Кирхгофа (ОЗК).

Заметим, что в силу (41) интенсивность спонтанного излучения можно учесть в классических формулах добавлением α фотонов на вход сигнального канала, $1 - \alpha$ — на вход холостого и вычи-

танием α фотонов из числа сигнальных фотонов на выходе. Например, при $\alpha = 1/2$ получаем симметричную формулу (40). Это правило является обобщением (4), и оно также справедливо лишь для стоксовых частот.

Пусть падающее поле отсутствует ($N_i = 0$, на входе — вакуум), тогда по (39) в каждой выходной моде будет по $\mathcal{F}_k$ фотонов. В направлениях и на частотах, удовлетворяющих условию синхронизма (1), излучение будет максимальным, и если мощность накачки или толщина слоя достаточно велики (так что $\beta l \gg 1$), то N'_k будет зависеть от E_3 и l экспоненциально:

$$N'_k = \operatorname{sh}^2 \beta l \approx e^{2\beta l}/4. \tag{42}$$

Это явление получило название *параметрической сверхлюминесценции* (по аналогии со *сверхлюминесценцией* — усиленным спонтанным излучением в оптических квантовых усилителях с инверсией населенностей).

Формулы (13), (34) для эффективной температуры и яркости излучения остаются в силе и в случае сверхлюминесценции, если в них использовать исправленный коэффициент преобразования (38) (или заменить в (8) $\Delta/2$ на $\sqrt{\Delta^2/4 - \beta^2}$ и воспользоваться формулой $\sin ix = i \operatorname{sh} x$). При этом если, например, $\mathcal{F} = 10$, то $T_{\text{эф}} \approx \hbar\omega\mathcal{F}/\varkappa \sim 10^5$ К.

Следует заметить, что модель плоского слоя имеет смысл для описания сверхлюминесценции лишь в узком конусе направлений вдоль луча накачки, удовлетворяющих условию $\vartheta_i \ll a/l$ (ϑ_i — углы рассеяния для сигнальной и холостой волн, т. е. углы между $\boldsymbol{k}_i$ и $\boldsymbol{k}_3$, a — радиус луча накачки). Если с помощью зеркал создать обратную связь, то усилитель превратится в параметрический генератор света. Нулевые флуктуации при этом выполняют роль «затравки», вызывающей автоколебания.

Перестроечные кривые. Пропорциональность интенсивности ПР (с данной частотой и направлением) «функции синхронизма» l_Δ (см. (8)) определяет довольно своеобразную конусную структуру рассеянного поля, напоминающую структуру черенковского излучения. Условие синхронизма $\Delta = 0$, которое можно трактовать как следствие законов сохранения энергии и импульса при взаимодействии трех фотонов, определяет в $\boldsymbol{k}_1$-пространстве (т. е. в пространстве, образованном возможными волновыми векторами сигнала) «поверхность синхронизма», на которой излучение максимально.

В оптически изотропных средах синхронизм возможен, лишь если между частотами ω_1 и ω_2 имеется участок с аномальной дисперсией показателя преломления ($dn/d\omega < 0$), так как в противном случае $k_1 + k_2 < k_3$ из-за нормальной дисперсии. В частности, аномальная дисперсия может быть вызвана резонансом частоты света с собственными колебаниями кристаллической решетки.

Частота этих колебаний $\nu_\mu = \omega_\mu/2\pi c$ лежит в ИК-диапазоне и имеет порядок сотен или нескольких тысяч обратных сантиметров. Частота накачки обычно соответствует видимой области спектра ($\nu_3 \sim 2\cdot 10^4$ см$^{-1}$, $\lambda_3 = \nu_3^{-1} \sim 0{,}5$ мкм), так что синхронизм в изотропных кристаллах имеет место лишь в узком интервале частот, примыкающих к частоте накачки. Резонанс холостой частоты с частотами решетки приводит, кроме увеличения k_2, к поглощению света на длине $1/\alpha_2$, много меньшей размеров рассеивающей области l, и в результате холостые фотоны практически не излучаются. Этот случай мы будем относить не к ПР, а к комбинационному рассеянию (КР) на поляритонах (подробнее см. § 1.2 и гл. 6).

Однако в двупреломляющих кристаллах синхронизм возможен и в случае, когда все три частоты принадлежат одному «окну» прозрачности, лежащему между решеточными и электронными ($\nu_\mu \sim 10^5$ см$^{-1}$) частотами. В таких кристаллах монохроматический падающий свет возбуждает две волны, отличающиеся скоростью распространения c/n (т. е. длиной волны $n/\nu = 2\pi/k$) и направлением поляризации электрического поля $\boldsymbol{e}$ относительно кристаллографических осей кристалла.

В случае одноосных кристаллов волна с полем $\boldsymbol{e}E$, перпендикулярным оси кристалла $\boldsymbol{c}$, называется обыкновенной ($n = n^o$),

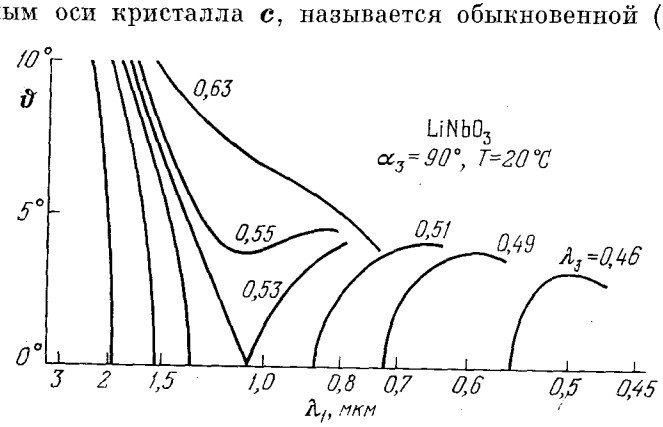

Рис. 2. Связь между углом рассеяния и длиной волны сигнала при различных длинах волн накачки.

а вторая, независимая волна, у которой $\boldsymbol{e}$ и $\boldsymbol{c}$ компланарны,— необыкновенной ($n = n^e$). В большинстве пьезокристаллов, используемых в прикладной нелинейной оптике, $n^o(\omega) > n^e(\omega)$ и возможны два типа синхронизма: $\boldsymbol{k}_1^o + \boldsymbol{k}_2^o = \boldsymbol{k}_3^e$ и $\boldsymbol{k}_1^o + \boldsymbol{k}_2^e = \boldsymbol{k}_3^e$. В первом случае поверхность синхронизма имеет ось симметрии вдоль $\boldsymbol{k}_3$ и определяет перестроечную кривую $\omega_1(\vartheta_1)$, где ϑ_1 — угол рассеяния, т. е. угол между $\boldsymbol{k}_1$ и $\boldsymbol{k}_3$. На рис. 2 изо-

бражены зависимости $\lambda_1(\vartheta_1)$ для ниобата лития при $\boldsymbol{k}_3 \perp \boldsymbol{c}$ для различных длин волн накачки. Из графиков следует, что при $\lambda_3 \lesssim 0{,}52$ мкм возможен необходимый для сверхлюминесценции коллинеарный синхронизм ($\vartheta_1 = \vartheta_2 = 0$). Если направления $\boldsymbol{k}_3$ и $\boldsymbol{c}$ составляют угол α_3, меньший 90°, то коллинеарный синхронизм имеется и при больших длинах волн накачки.

При удалении $\boldsymbol{k}_1$ от поверхности синхронизма функция l_Δ быстро уменьшается по закону $\frac{\sin x}{x} = \operatorname{sinc} x$, где $x = l\Delta/2$, $\Delta = \Delta(\boldsymbol{k}_1)$. Найдем частотную ширину $\Delta\omega$ перестроечной кривой при изменении ω_1 из условия $l\Delta = 2\pi$. Зависимость $\Delta(\omega_1)$ при малом изменении ω_1, как правило, можно считать линейной:

$$\Delta(\omega_1) = \frac{\partial\Delta}{\partial\omega_1}(\omega_1 - \omega_1^0),$$
$$\frac{\partial\Delta}{\partial\omega_1} = \frac{\partial k_{1z}}{\partial\omega_1} + \frac{\partial k_{2z}}{\partial\omega_1} \approx \frac{1}{u_1} - \frac{1}{u_2}, \tag{43}$$

где $u = d\omega/dk$ — групповая скорость, и мы приняли $\vartheta_i \ll 1$. Отсюда

$$\Delta\omega_1 = \frac{2\pi}{l}\left|\frac{\partial\Delta}{\partial\omega_1}\right|^{-1} \approx \frac{2\pi}{|\tau_1 - \tau_2|} \quad \left(\tau_i \equiv \frac{l}{u_i}\right). \tag{44}$$

Таким образом, ширина спектра, излучаемого в данном направлении, определяется взаимным запаздыванием $\tau_1 - \tau_2$ холостой и сигнальной волн на длине взаимодействия l. Аналогично определяется угловая ширина перестроечной кривой:

$$\Delta\vartheta_1 = \frac{2\pi}{l}\left|\frac{\partial\Delta}{\partial\vartheta_1}\right|^{-1} \approx \frac{\lambda_3}{l\vartheta_2} \qquad (\vartheta_i \ll 1). \tag{45}$$

В ниобате лития при $\lambda_3 = 0{,}48$ мкм, $\lambda_1 = 0{,}67$ мкм и $l = 1$ см ширины имеют следующие порядки величины: $\Delta\nu_1 \sim 8$ см$^{-1}$, $\Delta\vartheta_1 \sim 0{,}5'$.

Интегральные интенсивности ПР. Произведение эффективной ширины спектра (44) на дважды дифференциальную вероятность рассеяния (36) при $\Delta = 0$ дает вероятность рассеяния в единичный телесный угол в данном направлении:

$$P_\Omega = \frac{2\pi\hbar\omega_1^3\omega_2\omega_3\chi^2 l}{c^5|u_1^{-1} - u_2^{-1}|} \sim 3\cdot 10^{-7}\ \text{ср}^{-1}. \tag{46}$$

Такой же порядок величины имеет и вероятность распада фотона накачки на стоксов фотон и фонон при обычном КР в конденсированных средах. Заметим, что в (46) величины $\omega_{1,2}$ и $u_{1,2}$, а также χ являются функциями угла рассеяния ϑ_1, из-за связи $\Delta = 0$. В некоторых «вырожденных» направлениях $u_1 = u_2$, и P_Ω резко возрастает. В этих направлениях крутизна перестроечной кри-

вой $|d\omega_1/d\vartheta_1| \to \infty$ и линейная аппроксимация функции $\Delta(\omega_1)$ недостаточна.

Из рис. 2 видно, что все рассеянное излучение видимого диапазона сосредоточено в довольно узком конусе с раствором порядка нескольких градусов (это результат малого отличия n^o от n^e). Энергия, излучаемая внутри этого конуса на данной частоте ω_1, при $\vartheta_i \neq 0$ пропорциональна интегралу

$$\int_0^{2\pi} d\varphi_1 \int_0^{\pi} d\vartheta_1 \sin\vartheta_1 l_\Delta^2 \approx \frac{4\pi^2 l k_2}{k_1 k_3} \tag{47}$$

(мы использовали (45) и связь $k_1 \sin\vartheta_1 = k_2 \sin\vartheta_2$, следующую из условия поперечного синхронизма). Из (47) и (36) находим вероятность рассеяния в единичный спектральный интервал (независимо от направления):

$$P_\omega = \hbar l\,(2\pi\omega_1\omega_2\chi/c^2)^2,$$
$$P_\lambda = (2\pi)^7 \hbar c \chi^2 l\ \ \lambda_1^{-4}\lambda_2^{-2} \sim 10^{-10}\ \text{нм}^{-1}. \tag{48}$$

Отсюда при накачке с мощностью $\mathcal{P}_3 = 1$ Вт ($W_3 = 3\cdot 10^{18}\text{с}^{-1}$) спектральная мощность сигнала составляет

$$\mathcal{P}_\lambda = \lambda_3 P_\lambda \mathcal{P}_3/\lambda_1 \sim 5\cdot 10^{-11}\ \text{Вт/нм}. \tag{49}$$

Полная вероятность распада фотона накачки на пути l при наличии синхронизма во всем интервале частот $0 - \omega_3$ будет иметь порядок

$$P = \int_0^{\omega_3} d\omega_1 P_\omega \sim \hbar c^{-4}\omega_3^5\chi^2 l \sim 10^{-7}. \tag{50}$$

Использованная здесь идеализированная модель предполагает прозрачный и оптически однородный кристалл, безграничный в поперечном сечении, и монохроматическую плоскую волну накачки. При нарушении этих условий формула (8), описывающая детальную частотно-угловую форму спектра, будет неверна. Например, если расходимость накачки $\Delta\vartheta_3$ много больше $\Delta\vartheta_1$ (см. (45)), то угловая ширина излучения с данной частотой будет иметь порядок $\Delta\vartheta_3$, а интенсивность излучения в направлении синхронизма будет пропорциональна не l^2, а $ll_{\text{ког}}$, где *длина когерентности* имеет порядок

$$l_{\text{ког}} \sim l\,\frac{\Delta\vartheta_1}{\Delta\vartheta_3} \sim \frac{\lambda_3}{\vartheta_2\,\Delta\vartheta_3}. \tag{51}$$

Аналогично, непрозрачность кристалла на холостой частоте приводит к замене l в формулах (44), (45) на длину пробега холостого фотона: $l_{\text{ког}} \sim 1/\alpha_2$, где α_2 — коэффициент поглощения. Обычно при этом $u_2 \ll u_1$, так что из (44) при замене l на $l_{\text{ког}}$ следует $\Delta\omega_1 \sim 1/\alpha_2 u_2 = 1/\tau$, где τ — время жизни поляритона.

Существенно, что уменьшение длины когерентности не меняет площади спектральной линии $\int d\omega\, l_\Delta^2$ или $\int d\vartheta\, l_\Delta^2$, пропорциональной длине кристалла, и поэтому интегральные соотношения (46), (48), (49) остаются в силе.

§ 1.2. Рассеяние на поляритонах (РП)

Поляритоны и закон дисперсии. По мере приближения частоты сигнала ω_1 к частоте накачки ω_3 холостая частота ω_2 приближается к собственным частотам кристаллической решетки ω_μ, расположенным в диапазоне 10^2—10^3 см$^{-1}$. При этом ПР переходит непрерывно в рассеяние на поляритонах (РП), а при точном совпадении ω_2 с одной из частот ω_μ — в комбинационное рассеяние (КР) на оптических фононах. Поляритон—это квант смешанных электромагнитно-механических волн, возникающих в ионных кристаллах при падении на них ИК-света [1]). Электрическое поле световой волны при $\omega \sim \omega_\mu$ резонансно раскачивает заряженные ионы решетки, которые в свою очередь излучают свет. В результате групповая скорость волны u резко уменьшается (почти до нуля при точном резонансе), а ее фазовая скорость становится немонотонной функцией частоты (так называемая аномальная дисперсия). Функции $u(\omega) = d\omega/dk$ и $n(\omega) = kc/\omega$ однозначно связаны с законом дисперсии поляритонов, т. е. зависимостью $\omega(k)$ (рис. 3). Вследствие закона сохранения импульса при рассеянии связь $\omega_2(k_2)$ определяет по формулам тригонометрии наблюдаемую перестроечную кривую $\omega_1(\vartheta_1)$.

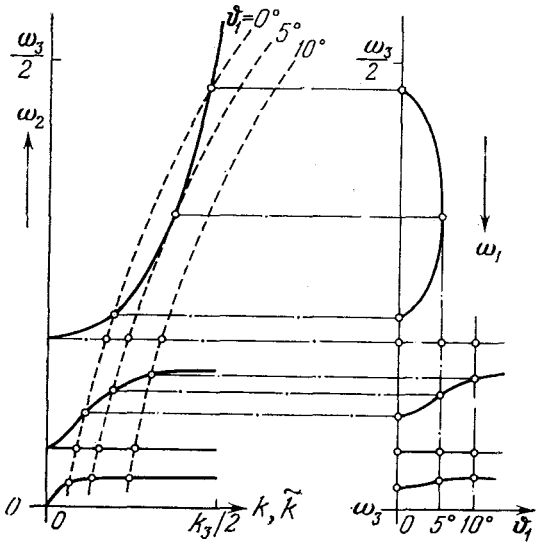

Рис. 3. Дисперсия света $k(\omega_2)$ в ИК-области (сплошные линии на левом графике) и функция $k(\omega_2, \vartheta_1) \equiv |\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}(\omega_3 - \omega_2)|$ (пунктирные линии). Точки пересечения графиков k и $\tilde{k}$ соответствуют условию синхронизма и определяют наблюдаемую зависимость угла рассеяния от частоты $\vartheta_1(\omega_1)$ (правый график).

[1]) Часто поляритоном (или «светоэкситоном») называют также смешанные возбуждения в области электронных частот.

Таким образом, эффект РП позволяет изучать динамику решетки в трудно доступной для изучения другими методами области k-пространства (центр зоны Бриллюэна).

Сравнение ПР и РП. В чем отличие рассеяния на поляритонах и параметрического рассеяния (т. е. рассеяния на фотонах в среде)? Ведь понятия поляритона и фотона в среде по существу идентичны.

Можно их формально разграничивать, приняв, например, что в случае фотонов более 50% энергии возбуждения содержится в поперечном электромагнитном поле. Или, так как экспериментально удобнее измерять групповую скорость, можно назначить границу условием замедления $c/u = n + \omega dn/d\omega$, скажем, в 3 или 10 раз. Рассеяние на фотонах и поляритонах можно, кроме того, отличать по механизму нелинейной поляризуемости. Вблизи собственных частот решетки к чисто электронной нерезонансной нелинейности $\chi_{\infty}^{(2)}$ добавляется резонансная смешанная (электронно-колебательная) нелинейность $\chi_{\text{рез}}^{(2)}$, связанная с взаимодействием между колебаниями атомов в целом и движением электронов (этой нелинейностью обусловлено и обычное КР на большие углы на частотах $\omega_1 = \omega_3 - \omega_\mu$). Наконец, часто под «параметрическим» понимают просто рассеяние на поляритонах «верхней» ветви (см. рис. 3).

Однако нам представляется целесообразным сохранение специального термина для ПР на основании критерия прозрачности образца для холостой волны: $\alpha_2 l \ll 1$ (условия $\alpha_{1,3} l \ll 1$, как правило, в экспериментах выполняются). В этом случае сигнальные и холостые волны равноправны, и они проходят через образец без ослабления, т. е. они являются общими возбуждениями всего пространства как внутри, так и вне образца. В результате интенсивность ПР в отличие от РП не должна зависеть непосредственно (через функцию Планка (1.1.3)) от температуры образца даже при $\hbar\omega_2 \ll \varkappa T$. Критерий прозрачности удобен и для разграничения четырехфотонного ПР (ГПР) и гиперкомбинационного рассеяния на поляритонах (§ 1.3). При нашем определении граница между ПР и РП зависит от условий эксперимента — от размеров образца и коэффициента поглощения (зависящего в свою очередь от температуры).

Предлагаемое разграничение ПР и РП оправдано необычными статистическими свойствами света, излучаемого образцом при ПР. Как отмечалось в предисловии, коррелированные (по направлению, частоте и времени излучения) пары сигнальных и холостых фотонов («бифотоны») могут представлять интерес с прикладной точки зрения для создания эталонного генератора фотонов и абсолютной калибровки ФЭУ (§ 6.4). Возможность абсолютного измерения яркости света при сравнении преобразованного по частоте излучения с рассеянным также обусловлена прозрачностью образца на холостой частоте.

Интенсивность РП. Согласно нашему определению при РП падающее извне холостое излучение не проникает вглубь кристалла

из-за сильного поглощения в ИК-области. Однако при $\alpha_2 l \gg 1$ внутри кристалла существует планковское равновесное излучение, связанное с тепловыми колебаниями ионов. Это поле E_2 «бьется» с полем накачки E_3 за счет квадратичной нелинейности $\chi^{(2)}$ и порождает поляризацию (см. (1.1.5)), которая и является источником наблюдаемого поля рассеяния. В стоксовом случае к равновесному числу фотонов $\mathcal{N}_2$ опять добавляется единица, учитывающая флуктуации внутрикристаллического «поляритонного вакуума». Таким образом, РП объясняется флуктуациями холостого поля внутри рассеивающего вещества, а ПР — снаружи. В промежуточном случае полупрозрачного образца интенсивность рассеяния зависит от двух температур—образца и падающего поля.

РП удобно описывать феноменологически, если ввести приращение диэлектрической проницаемости $\Delta\varepsilon$ на частоте сигнала, появляющееся при включении накачки. Как легко показать (§ 6.6), $\Delta\varepsilon$ в случае $\alpha_2 l \gg 1$ имеет следующий вид:

$$\Delta\varepsilon(\omega_1, \boldsymbol{k}_1) = 4\pi\,|E_3|^2 \left[\chi^{(3)} + \frac{4\pi\chi^{(2)2}}{n_2^2 - \varepsilon^*(\omega_2)}\right], \tag{1}$$

где $n_2 \equiv c\,|\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1|/\omega_2$. Через этот параметр можно выразить как вынужденный эффект параметрического усиления сигнала, так и интенсивность РП. В § 6.6 будет показано, что коэффициент рассеяния (см. (1.1.37)) равен

$$W_{\omega\Omega}(\boldsymbol{k}_1) = -\Delta\varepsilon_1''(\mathcal{N}_2 + 1)V/\lambda_1^3, \tag{2}$$

где V — рассеивающий объем и мнимая часть $\Delta\varepsilon_1''$ отрицательна, что соответствует эффекту параметрического и комбинационного усиления в стоксовой области.

Частотно-угловой спектр РП. В резонансной области линейная и нелинейная поляризуемости испытывают сильную дисперсию вида

$$\chi^{(n)} \sim (\omega_\mu - \omega_2 - i\gamma/2)^{-1} \tag{3}$$

(здесь γ — ширина резонанса), поэтому функция $W_{\omega\Omega}(\boldsymbol{k}_1)$, определяемая формулами (1), (2), имеет довольно сложный вид.

Первое слагаемое в (1) дает вклад, пропорциональный $\chi^{(3)''}$ и заметный поэтому лишь в непосредственной близости к резонансу ($\omega_2 \sim \omega_\mu \pm \gamma$). Это слагаемое соответствует обычному КР на «механическом» (или «кулоновском» [8]) фононе с частотой ω_μ, и оно описывает максимум рассеяния, не зависящий от направления наблюдения. Таким образом, в частотно-угловом спектре должна наблюдаться горизонтальная прямая линия («перемычка») (рис. 4), что и имеет место в эксперименте.

Но, с другой стороны, понятие механического фонона является идеализацией (пригодной лишь в области $k_2 \gg \omega_2/c$, где можно пренебречь взаимодействием колебаний ионов с поперечным элект-

ромагнитным полем), и поэтому области перемычки не соответствуют реальные возбуждения вещества.

Противоречие в теории разрешается при учете второго слагаемого в (1), которое в точности компенсирует первое в области перемычки (§ 6.6). Экспериментальные же перемычки объясняются рассеянием на 180° и отражениями накачки и сигнала на гранях кристалла.

Нормальная и аномальная дисперсия. Учет совместного действия обоих слагаемых в (1) разрешает еще один парадокс. Если использовать обычное выражение для волнового вектора в области поглощения:

$$\left(\frac{ck_2}{\omega_2}\right)^2 = \varepsilon'(\omega_2) \sim \frac{\omega_\mu - \omega_2}{(\omega_\mu - \omega_2)^2 + \gamma^2/4}, \tag{4}$$

следующее из условия минимума знаменателя второго слагаемого, то величина k_2 будет ограничена и условие синхронизма будет выполняться лишь для малых углов рассеяния. При этом перестроечная кривая $\vartheta_1(\omega_1)$, как и функция $k_2(\omega_2)$, в области резонанса содержит участок с «аномальной» дисперсией (см. рис. 4).

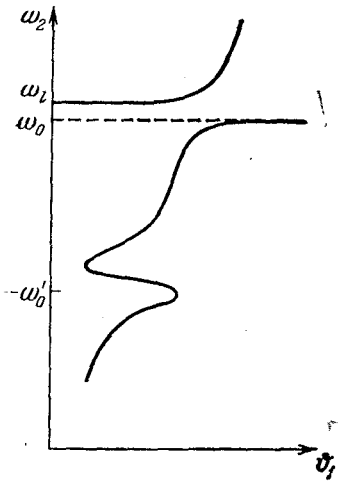

Рис. 4. Нормальный (вверху) и аномальный типы наблюдаемых дисперсионных кривых. Рассеяние при $\vartheta_2 \approx 0°$, $\omega_2 = \omega_0$ (пунктирная линия) может наблюдаться за счет отражения на 180° накачки или сигнала на гранях кристалла.

В эксперименте же дисперсия обычно имеет «нормальный» вид, соответствующий связи (4) при $\gamma = 0$, и лишь некоторые колебания дают аномальную дисперсию перестроечных кривых. Оба типа наблюдаемых резонансов описываются формулой (1) при различных соотношениях между резонансной и нерезонансной частями квадратичной поляризуемости. Оказывается, что колебания, не активные в обычном КР при $\vartheta_1 \sim 90°$, могут проявляться в рассеянии на малые углы ($\vartheta_1 \lesssim 5°$) за счет $\chi_\infty^{(2)}$ в виде «аномального» изгиба и локального уширения перестроечной кривой. Эти ИК-активные колебания не дают вклада в $\chi^{(3)}$, и согласно (1), (2) им соответствует коэффициент рассеяния

$$W_{\omega\Omega} = \frac{V}{\lambda_1^3}(\mathcal{N}_2 + 1)\,\chi_\infty^{(2)2}\,\mathrm{Im}\,\frac{1}{n_2^2 - \varepsilon(\omega_2)}, \tag{5}$$

имеющий максимум при обычной связи (4). Выражение (5) имеет ясный физический смысл — тепловые флуктуации ИК-поля

внутри кристалла, пропорциональные (см. (4.2.16))

$$(E^2)_{\omega k} \sim \mathcal{N}_2 \operatorname{Im} \frac{1}{n_2^2 - \varepsilon(\omega_2)}, \tag{6}$$

преобразуются в видимую область за счет квадратичной поляризуемости $\chi_\infty^{(2)}$, обусловленной электронной нелинейностью или соседними по частоте колебаниями решетки. В последнем случае можно провести аналогию с резонансом Ферми, при котором слабое колебание «проявляется» за счет взаимодействия с близким по частоте сильным (обычно этот термин применяют в случае, когда слабое колебание является двухфононным и его частота равна $\omega_\mu + \omega_{\mu'}$). Формула (6) показывает, что РП позволяет измерять не только закон дисперсии поляритонов (по положению максимума рассеяния в четырехмерном ωk-пространстве), но и их время жизни τ (или длину пробега $u\tau$), связанное с $\varepsilon''(\omega)$ (по ширине максимума).

Следует отметить, что характер наблюдаемой дисперсии (нормальный или аномальный) может зависеть также и от экспериментальной процедуры. Если измерять положение максимумов интенсивности рассеяния $\omega_1^{\max}$ в зависимости от частоты при различных углах рассеяния ϑ_1, то функция $\omega_1^{\max}(\vartheta_1)$ даже при $\chi^{(3)} = 0$ согласно (6) будет иметь «нормальный» вид двух отталкивающихся гипербол.

Эффект линеаризации. Феноменологические формулы (1), (2) описывают еще один эффект. Уже в первых экспериментах по наблюдению ПР в кристаллах ниобата лития было замечено исчезновение рассеяния при приближении холостой частоты к области ИК-поглощения ($\nu_2 \sim 1400$ см$^{-1}$). Было естественным объяснить это явление отрицательным влиянием затухания холостой волны на эффективность параметрического взаимодействия. Однако согласно флуктуационно-диссипативной теореме (§ 2.4) при увеличении поглощения растут и флуктуации, так что должно происходить лишь уширение перестроечной кривой $\omega_1(\vartheta_1)$ при сохранении интегральной (по ω_1 или ϑ_1) интенсивности. Это явление описывается формулой (6). Действительно, в дальнейших экспериментах было замечено восстановление рассеяния после «провала» на частоте 1400 см$^{-1}$, хотя α_2 продолжало расти. Сейчас уже ясно, что «провал» объясняется интерференцией между электронной $\chi_\infty^{(2)}$ и электронно-колебательной $\chi_{\text{рез}}^{(2)}$ нелинейностями, приводящей к «линеаризации» восприимчивости кристалла ($\chi_\infty^{(2)} + \chi_{\text{рез}}^{(2)} = 0$) на определенных частотах. Такие же «провалы» на перестроечных кривых наблюдаются вблизи многих решеточных резонансов ω_μ. Этот эффект аналогичен прохождению через нуль линейной диэлектрической проницаемости на частотах продольных резонансов.

§ 1.3. Четырехфотонное рассеяние и нелинейная спектроскопия

В большинстве случаев вещество — газы, жидкости, стекла, центросимметричные кристаллы — не имеет выделенного полярного направления, поэтому макроскопическая квадратичная поляризуемость равна нулю и трехфотонные эффекты, включая параметрическое (ПР) и поляритонное (РП) рассеяние, невозможны или имеют ничтожную величину (за счет магнитных взаимодействий). Однако в следующем порядке теории возмущения по амплитуде накачки появляются четырехфотонные эффекты, которые феноменологически описываются кубической поляризуемостью $\chi^{(3)}$. Эта величина связывает четыре полярных вектора и является тензором четвертого ранга, на существование которого симметрия среды не накладывает общих запретов.

Как и в случае ПР и РП, четырехфотонные элементарные процессы удобно классифицировать на основании критерия прозрачности (по отношению к однофотонным процессам, т. е. в первом порядке по интенсивности падающего поля). Кубическая поляризуемость является функцией трех независимых частотных аргументов, и в зависимости от соотношений между этими частотами и собственными (боровскими) частотами молекул можно различать довольно много процессов или, как принято говорить, переходов. На рис. 5 различные многофотонные переходы изображены графически. Видно, что все переходы делятся на два класса — одни изменяют состояние и молекулы, и поля, а другие (называемые параметрическими или когерентными) — только поля. На языке поляризуемостей непараметрическим n-фотонным переходам соответствуют мнимые части $\chi^{(2n-1)}$.

Гиперпараметрическое рассеяние (ГПР). В этом случае по определению вещество прозрачно на всех частотах, относящихся к процессу рассеяния. ГПР или рассеяние света на свете (последний термин естественно применять и к трехфотонному ПР) можно интерпретировать как результат распада двух фотонов накачки на пару фотонов с другими частотами, направлениями и поляризациями. При этом должны выполняться законы сохранения:

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4, \quad \boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 = \boldsymbol{k}_3 + \boldsymbol{k}_4. \tag{1}$$

Как правило, используют вырожденную накачку ($\omega_3 = \omega_4$, $\boldsymbol{k}_3 = \boldsymbol{k}_4$), при этом рассеяние должно наблюдаться и в антистоксовой области. Условие (1) вместе с дисперсией показателя преломления определяет частотно-угловой спектр рассеянного света. Если пренебречь линейной дисперсией, то (1) определяет поверхность синхронизма в виде эллипсоида вращения с расстоянием между фокусами $|\boldsymbol{k}_3 + \boldsymbol{k}_4|$. При $\boldsymbol{k}_3 \parallel \boldsymbol{k}_4$ свет рассеивается только вперед, при $\boldsymbol{k}_3 = -\boldsymbol{k}_4$ рассеяние изотропное и упругое.

Интенсивность ГПР легко оценить с помощью соотношений, полученных в § 1.1, если в них сделать замену

$$\chi^{(2)} \to \chi^{(3)} E_4, \quad \Delta \to k_{1z} + k_{2z} - k_{3z} - k_{4z}. \tag{2}$$

В первом неисчезающем приближении интенсивность ГПР пропорциональна квадрату интенсивности накачки ($S_1 \sim S_3 S_4$),

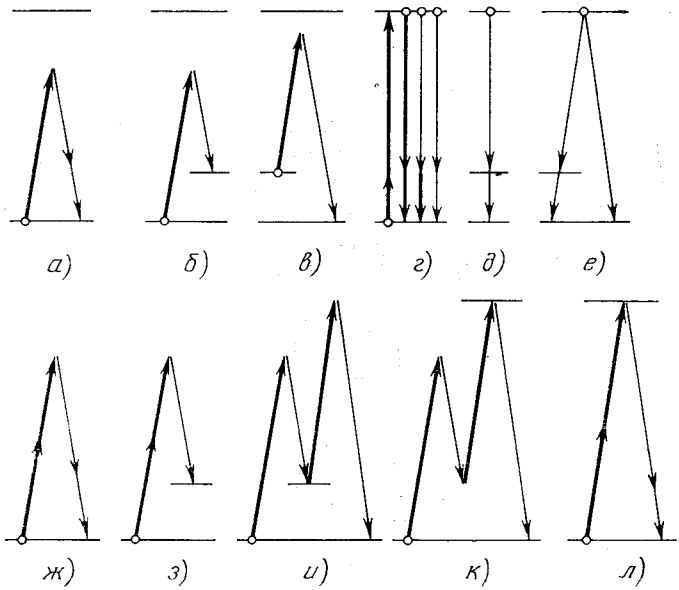

Рис. 5. Условное изображение некоторых эффектов нелинейной оптики в виде элементарных многофотонных процессов.

Горизонтальные линии соответствуют энергетическим уровням молекул, точки — начальным состояниям, стрелки — фотонам. Стрелка, направленная вверх, изображает поглощение фотона, а направленная вниз — излучение; спонтанное излучение изображается тонкими стрелками. Процессы *а*, *ж*, *и*, *к*, *л* — параметрические, они приводят к квантовой корреляции между разночастотными компонентами поля (этот же эффект дает двухфотонное излучение *г*, *д*, *е*); *а*, *ж* — параметрическое и гиперпараметрическое рассеяния; *б*, *в*, *и* — стоксово, антистоксово и когерентное комбинационные рассеяния; *г* — вынужденные, спонтанные и спонтанно-вынужденные двухфотонные переходы; *д* — каскадный переход; *е* — интерференция одно- и двухфотонного переходов, которая приводит к появлению у поля третьего момента; *з* — гиперкомбинационное рассеяние; *к* и *л* — одно- и двухфотонная резонансная флуоресценция.

и поэтому для его наблюдения надо использовать импульсную и (или) сфокусированную накачку. В случае очень мощной накачки наблюдается четырехфотонная параметрическая сверхлюминесценция, направленная, в основном, вперед и перекрывающая почти без перерывов весь спектр вплоть до двойной частоты накачки.

Каскадное ГПР. В нецентросимметричных кристаллах квадратичное по интенсивности накачки рассеяние может иметь место также и за счет двухступенчатых (каскадных) процессов, при которых свет обычного ПР до выхода из кристалла взаимодействует с накачкой еще раз:

$$\omega_3 \to \omega_2 + \omega_1', \quad \omega_3 + \omega_1' \to \omega_1. \tag{3}$$

Такой процесс легко наблюдать в случае двойного синхронизма, когда

$$\boldsymbol{k}_3 = \boldsymbol{k}_2 + \boldsymbol{k}_1', \quad \boldsymbol{k}_3 + \boldsymbol{k}_1' = \boldsymbol{k}_1, \tag{4}$$

который выполняется лишь в исключительных случаях. Однако, в принципе, каскадное ГПР может иметь заметную величину и при несинхронном первом этапе и синхронном втором (или наоборот). Такие процессы приводят к принципиальному ограничению чувствительности трехфотонных преобразователей частоты и квантовых счетчиков. Отметим, что роль второй накачки может выполнять акустическая волна.

Гиперкомбинационное рассеяние (ГКР) [186]. Кубическая восприимчивость среды имеет порядок $\chi^{(3)} \sim \gamma M_0$, где γ — кубическая гиперполяризуемость отдельной молекулы и M_0 — концентрация молекул. При совпадении собственных частот вещества ω_μ (коллективных или индивидуальных) с частотами фотонов нелинейность вещества резко возрастает.

Так, при $\omega_2 \to \omega_\mu$, где ω_μ — частота молекулярных колебаний, ГПР непрерывно переходит в ГКР. Этот эффект, который иногда называют также трехфотонным рамановским рассеянием, объясняется распадом двух фотонов накачки на стоксов фотон с частотой $\omega_1 = 2\omega_3 - \omega_\mu$ и фонон с частотой ω_μ. Если колебания ядер в молекуле сопровождаются изменением дипольного момента, то должно наблюдаться ГКР на поляритоне, пропорциональное мнимой части (ср. (1.2.1)) величины

$$\Delta\varepsilon_1^{(4)} = 4\pi\,|E_3|^4 \left[\chi^{(5)} + \frac{4\pi\chi^{(3)2}}{n_2^2 - \varepsilon^*(\omega_2)}\right], \tag{5}$$

где $\chi^{(5)}$ — поляризуемость пятого порядка по полю.

Излучение бифотонов при КР. Если $\omega_2 \to \omega_3 \pm \omega_\mu$, то ГПР непрерывно переходит в комбинационное рассеяние (КР). Комбинационный резонанс кубической поляризуемости описывает, кроме КР, еще ряд других интересных явлений, например, обращенное КР, при котором наблюдается не рассеяние, а соответствующий вынужденный эффект усиления стоксовой волны или ослабления антистоксовой. Другим примером является резонансное преобразование частоты $2\omega_3 - \omega_2 \to \omega_1$ (вынужденное *когерентное антистоксово рассеяние* — КАРС), которое служит основой так называемой *активной спектроскопии* [139].

Эти вынужденные эффекты можно описывать с помощью полуклассической теории излучения. Квантовая оптика предсказывает новую, еще не обнаруженную особенность КР под малыми углами, при которых выполняется условие синхронизма (1). В § 7.3 показывается, что при $\hbar\omega_\mu \gg \varkappa T$ антистоксовы фотоны излучаются только одновременно со стоксовыми. Этот эффект можно интерпретировать как резонансное ГПР.

Резонансная люминесценция. Возможен еще один тип однократного резонанса кубической поляризуемости: при $\omega_3 \sim \omega_\mu$, где $\hbar\omega_\mu$ — энергия возбуждения электрона в атоме или молекуле. При этом одновременно возрастает и линейная восприимчивость, и релеевское рассеяние, что приводит к *резонансной люминесценции* [13].

Учет резонансной кубической поляризуемости позволяет описать эффекты насыщения и излучения пар фотонов с частотами

$$\omega_2 = \omega_\mu \equiv \omega_3 - \delta, \quad \omega_1 = 2\omega_3 - \omega_\mu = \omega_3 + \delta. \tag{6}$$

Однако, как и при РП, холостые фотоны быстро перепоглощаются, и поэтому бифотоны могут излучаться лишь поверхностными слоями образца. В следующих порядках теории возмущения появляется излучение на частотах $\omega_3 \pm 2\delta$ и т. д. Аналогичные эффекты генерации высших компонент наблюдаются при вынужденном КР. Излучение частоты ω_1 в (6) можно считать результатом ГКР на электронном возбуждении.

Отметим, что обычный эффект насыщения, также описываемый в первом приближении кубической поляризуемостью, используется в одном из вариантов *бездопплеровской* спектроскопии — так называемой *спектроскопии насыщения* [12].

Двухфотонная резонансная люминесценция. Наконец, четвертый тип резонанса кубической поляризуемости имеет место при $2\omega_3 \sim \omega_\mu$. При этом наблюдается двухфотонное поглощение накачки, а также должно наблюдаться резонансное ГПР и излучение бифотонов. Использование при наблюдении двухфотонного поглощения в газах стоячей волны накачки ($\boldsymbol{k}_3 = -\boldsymbol{k}_4$) избавляет от допплеровского уширения спектральных линий [12]. Аналогичный эффект сужения линии должен наблюдаться и при двухфотонной резонансной люминесценции в случае близких частот ω_1 и ω_2. Чувствительность этого варианта бездопплеровской спектроскопии может быть повышена с помощью детектора совпадений.

Нелинейная спектроскопия. Из изложенного ясно, что измерение трехмерной частотной дисперсии кубической поляризуемости $\chi^{(3)}_{\mathrm{t}}(\omega_2, \omega_3, \omega_4)$ дает обширную спектроскопическую информацию. Выбор типа резонанса и типа эффекта — спонтанного или вынужденного — позволяет оптимизировать разрешение и чувствительность метода. Интересные примеры вынужденных одно- и двухрезонансных кубических эффектов наблюдались в парах

щелочно-галлоидных металлов [15]. Как и в линейной спектроскопии, можно использовать реактивные (фазовые) эффекты, описываемые действительной частью $\chi^{(3)}$, а также изменение поляризации выходных полей при резонансе.

§ 1.4. Многофотонные эффекты — историко-библиографический очерк

Приведенный ниже обзор литературы не претендует на полноту и содержит в основном лишь ссылки на первые и последние работы и обзоры. Его цель — дать общее представление об истории исследования спонтанных многофотонных эффектов.

Каменный (долазерный) век. Первый двухфотонный эффект — релеевское рассеяние солнечного света в воздухе люди наблюдали миллионы лет назад в виде голубого цвета неба. Заметим, однако, что упругое релеевское рассеяние света является линейным эффектом. Другой давно известный оптический эффект — фотолюминесценцию — в простейших случаях можно объяснить каскадным трехфотонным процессом $\omega_3 \to \omega_2 + \omega_1$ (обычно энергия $\hbar\omega_2$ теряется безызлучательно и идет на нагрев вещества). Хотя история излучения фотолюминесценции началась много веков назад, закон Стокса ($\omega_1 < \omega_3$) получил объяснение лишь после появления квантовой теории и понятий фотона и энергетических уровней.

В 1926 г. Вавилов и Лёвшин экспериментально исследовали первое нелинейно-оптическое явление, называемое теперь эффектом насыщения и связанное с изменением населенностей уровней (библиографию см. в [19]). Вавилов предпринял в 1928 г. героическую по тем временам попытку обнаружить нарушение принципа суперпозиции при пересечении лучей света — т. е., по современной терминологии, рассеяние света на свете в вакууме. Широко известны и эксперименты Вавилова с сотр., проведенные в 30-х годах, в которых визуально наблюдались флуктуации интенсивности света.

Первый «настоящий» двухфотонный нелинейный эффект — комбинационное или рамановское рассеяние — был обнаружен в 1928 г. одновременно Ландсбергом и Мандельштамом и Раманом и Кришнаном (подробная история этого открытия описана в [20]). Когерентное рассеяние на тепловых акустических волнах предсказали Бриллюэн (1922 г.) и Мандельштам (1926 г.) и обнаружил Гросс (1930 г.). Квантовую теорию этого явления рассмотрел Тамм (1930 г.).

В 1929 г. Мейер-Гепперт рассмотрела возможность двухфотонного спонтанного излучения [21] (ссылки на последующие работы в этом направлении см. в [16]). Экспериментально одновременное излучение двух оптических фотонов было обнаружено лишь в

в 1965 г. Лайпелесом и др. [22] методом совпадений фотоотсчетов. Статистические свойства спонтанных двухфотонных полей были рассмотрены недавно Соколовым [178]. Интересными особенностями должно обладать излучение двухфотонного лазера (см., например, [179, 180]). Каскадные двухфотонные переходы, при которых неодновременность излучения фотонов в парах определяется временем жизни промежуточного состояния, имеют много большую вероятность. Такие переходы в оптическом диапазоне наблюдались Каулем в 1966 г. [23] и впоследствии использовались для определения границ применимости полуклассической теории излучения (библиографию см. в [23а, б]). В γ-диапазоне каскадные переходы были обнаружены еще в 1947 г. Бреди и Дейчем [24], и сейчас они широко используются в ядерной физике для исследования промежуточных состояний (метод γ — γ-корреляции).

В рентгеновском диапазоне неупругое рассеяние света обнаружил еще в 1923 г. Комптон. В 1934 г. Гейтлер и Нордхейм [25] вычислили вероятность двойного эффекта Комптона, при котором фотон накачки при взаимодействии со свободным электроном превращается в два фотона. Этот процесс аналогичен трехфотонному релеевскому или — при учете отдачи электрона — комбинационному рассеянию и отличается от ПР некогерентностью вкладов отдельных рассеивающих частиц. Когерентное ПР в рентгеновском диапазоне было обнаружено лишь в 1971 г. Айзенбергером и Макколом [26].

В противоположной — радиочастотной — области спектра многофотонное поглощение на вращательных уровнях газов наблюдали Юз и Грабнер в 1950 г. [27]. Множество различных вынужденных многофотонных эффектов в радиодиапазоне вскоре было обнаружено на зеемановских подуровнях в твердых электронных парамагнетиках. В двухуровневых спиновых системах благодаря малости энергии фотонов удалось наблюдать такие явления, как рамановское усиление [28], удвоение [29] и утроение частоты [30], пятиквантовое поглощение [31]. Каскадное удвоение [32] и вычитание [33] частоты наблюдалось на трех спиновых подуровнях основного состояния рубина. На вращательных и спиновых двухуровневых системах исследовался эффект «усиления при насыщении» [34—36]. Соответствующие ему спонтанные эффекты наблюдались позже в оптическом диапазоне [142].

В 50-е годы в связи с появлением парамагнитных и параметрических усилителей СВЧ-диапазона возникла задача о предельной чувствительности таких устройств. Квантовые шумы простейшей модели параметрического усилителя были рассмотрены в 1961 г. Люиселлом и др. [37] (см. также [3]). В этой работе исследовалось изменение во времени состояния двух мод объемного резонатора в случае гармонической модуляции накачкой диэлектрической проницаемости среды, заполняющей резонатор, и была

получена формула (ср. (1.1.39))

$$N_1(t) = \mathcal{G}(t) N_1(0) + \mathcal{F}(t) [N_2(0) + 1], \tag{1}$$
$$\mathcal{F}(t) = \mathcal{G}(t) - 1 = \mathrm{sh}^2\gamma t.$$

В середине 50-х годов были выполнены первые эксперименты, в которых играла роль корреляция интенсивностей света (т. е. четвертый момент поля или когерентность второго порядка) и которые поэтому можно отнести к квантовой оптике. Форрестер с сотр. [38] в 1955 г. наблюдал вычитание частоты света при фотоэффекте [1]), а Браун и Твисс [39] в следующем году обнаружили корреляцию интенсивностей света в двух точках пространства (§ 4.7). Эти явления легли в основу нового направления спектроскопии [164, 165].

Лазерный век. Первый эксперимент Франкена и др. [40] по удвоению частоты света положил в 1961 г. начало лазерной нелинейной оптики. По оптическим многоквантовым переходам имеется обширная библиографическая литература (например, [7, 9—18]), и мы далее остановимся, в основном, только на работах, связанных с излучением бифотонов.

В 1964 г. Робль [41] рассмотрел прямое и каскадное ГПР в среде с оптической нелинейностью, исходя из эффективной энергии возмущения $\chi^{(2)}E^3 + \chi^{(3)}E^4$. «Квантовый шум», возникающий в среде с модулируемой проницаемостью, а также ГПР в среде с кубической нелинейностью были исследованы Кроллем в 1964 г. [42]. Гринберг и Крамер в 1966 г. [43] провели аналогию между рассеянием света на свете в вакууме за счет виртуального рождения электрон-позитронных пар и в твердом теле за счет виртуальных электронов и дырок. Так как ширина «запрещенной зоны» вакуума ($2mc^2 \sim 1$ МэВ) много больше запрещенной зоны полупроводников (~ 1 эВ), то следует ожидать резкого увеличения вероятности четырехфотонных процессов в веществе по сравнению с вакуумом.

Трехфотонное параметрическое рассеяние. Первая численная оценка интенсивности трехфотонного ПР в пьезокристаллах (§ 1.1), сделанная автором в 1967 г. [44], дала неожиданно большую величину с эффективной температурой $\sim 10^3$ К (см. (1.1.13)) даже при накачке мощностью 1 Вт, и было непонятно, почему эффект не был замечен раньше в экспериментах по вычитанию частоты и по параметрическому усилению. В результате экспериментаторы, к которым обращался автор, не верили в реальность этих таинственных квантовых шумов, и они были обнаружены в Московском университете [45] случайно в ходе экспериментов с параметрическим генератором света. В том же 1967 г. ПР было

---

[1]) Различные интерпретации этого эффекта см. в [38а].

независимо обнаружено Хариссом с сотр. [46] в Стенфордском университете и Мегди и Марром [47] в Корнельском университете.

В первых экспериментальных работах [45—47] излучение трактовалось не как результат рассеяния, а как шумовое излучение параметрического усилителя (отметим, что здесь также спонтанный эффект был обнаружен позже соответствующего ему вынужденного процесса усиления). Однако если исключить случай мегаваттных накачек, то согласно оценке (1.1.12) фактический коэффициент усиления сигнала $\mathcal{G}$ при учете неизбежных потерь будет меньше единицы, и говорить о «шумах усилителя» не имеет смысла. С другой стороны, аналогия с рассеянием Мандельштама — Бриллюэна на звуковых холостых волнах позволяет рассматривать эффект ПР как результат *рассеяния* на световых холостых волнах. Заметим, что при $\mathcal{G} \sim 1$ неколлинеарное рассеяние ($\vartheta_{1,2} \neq 0$) имеет ту же интенсивность, что и коллинеарное.

Термин «параметрическое рассеяние» был впервые использован в [47а]. Другие авторы применяли названия параметрическая люминесценция или флуоресценция, оптический параметрический шум, параметрическое расщепление частоты света и др. Надо, впрочем, заметить, что эффект ПР все-таки не совсем обычное рассеяние, его можно определить также как результат *нелинейной дифракции*. Термин рассеяние подразумевает необратимый процесс, сопровождающийся увеличением энтропии электромагнитного поля, в то время как ПР можно описывать с помощью эффективного гамильтониана (гл. 6), определяющего обратимую эволюцию замкнутой системы. В [181] рассмотрена возможность частичного восстановления когерентной накачки из поля рассеяния с помощью второго пьезокристалла.

Дальнейшие эксперименты по ПР описаны в работах [48—86]. Отметим работу Вейнберга [61], в которой для накачки использовалась ртутная лампа. Чемла и Батифолд [80] наблюдали рассеяние на встречной холостой волне. Бернхем и Вейнберг [60] исследовали методом совпадений фотоотсчетов одновременность излучения сигнальных и холостых фотонов. В серии работ Пенина с сотр. [57, 71, 76—78, 81—85] эффекты ПР и рассеяния на поляритонах (РП) использовались для определения дисперсии линейной и квадратичной поляризуемостей ряда кристаллов в ИК-диапазоне, для измерения коэффициента поглощения, для анализа нестехиометричности их состава, а также для исследования фазовых переходов и слабых двухфононных возбуждений. В работе Криндача и автора [53] ПР было обнаружено визуально, и была отмечена связь ПР и РП. Одновременно эти виды рассеяния наблюдались в работе [57]. Параметрическая сверхлюминесценция наблюдалась в работах [62, 67, 69, 72].

Теория ПР развивалась в работах [87—99]. Феноменологическое описание, охватывающее и ПР, и РП, дано в [57, 71, 97].

Влияние поглощения холостой волны исследовалось также в [89, 94]. Нестационарная параметрическая сверхлюминесценция рассматривалась Назаровой и автором [96].

Статистика поля при ПР и взаимная корреляция сигнальных и холостых фотонов изучалась Зельдовичем [90] и Моллоу [95]. В [99] было предложено использовать эту корреляцию для создания эталонных источников света с известными моментами вылета и известным числом фотонов, а также для абсолютной калибровки ФЭУ (§ 6.4). В [99, 187] исследуется возможность использования ПР для абсолютного измерения яркости света по отношению сигнал/шум при преобразовании частоты (§ 6.4).

В ряде работ (см., например, [100, 101]) было продолжено исследование временной эволюции статистики поля в рамках двухмодовой модели Люиселла и др. [37].

Другие виды рассеяния. Впервые рассеяние на поляритонах (РП) наблюдалось в кристалле фосфида галлия Генри и Хопфилдом в 1965 г. [102], на два года раньше ПР. Заметим, что в 1966 г. при исследовании РП в окиси цинка [103] была сделана неудачная попытка обнаружить рассеяние на поляритонах верхней ветви дисперсионной кривой (т. е. по нашей терминологии ПР, которое в этом кристалле удалось обнаружить лишь в 1975 г. [79]). Обзор обширной литературы по РП можно найти в [104, 105].

Как отмечалось в [44], кроме когерентного ПР за счет макроскопической квадратичной поляризуемости $\chi^{(2)}$, должно иметь место почти изотропное некогерентное рассеяние на флуктуациях плотности и ориентации отдельных частиц среды, обладающих квадратичной гиперполяризуемостью β. Теория такого трехфотонного релеевского рассеяния на отдельных молекулах или микронеоднородностях, которое аналогично двойному эффекту Комптона [25], рассматривалась Соколовским [106] и Барановой и Зельдовичем [98]. Соответствующий эксперимент описан в [107]. Несинхронное ($\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3 \neq 0$) рассеяние возможно и в однородном образце за счет краевых эффектов [88, 98, 108, 182]. В сплошной среде при $\chi^{(2)} = 0$ возможно трехфотонное рассеяние Мандельштама — Бриллюэна, при котором фотон накачки распадается на два фотона и акустический фонон с частотой Ω и волновым вектором $\boldsymbol{K}$:

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 + \Omega, \quad \boldsymbol{k}_3 = \boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 + \boldsymbol{K}. \tag{2}$$

Соответствующий вынужденный процесс, при котором акустическая волна создается внешним источником, был рассмотрен в [109]. Заметим, что если в (2) положить $\Omega = 0$, а под $\boldsymbol{K}$ понимать один из векторов обратной решетки кристалла, то (2) будет описывать трехфотонное брегговское рассеяние рентгеновских волн или ПР с участием вектора обратной решетки [26].

Одновременно с рассеянием «дробных» фотонов с частотами ω_1 и $\omega_2 = \omega_3 \pm \Omega$ ($\Omega \ll \omega_i$) вещество излучает свет с частотами $2\omega_3 \pm \Omega$, близкими к частоте второй гармоники накачки (гиперрелеевское или гиперкомбинационное рассеяние — ГКР). Это явление было предсказано независимо Берсоном [110], Келихом [111], Ли [112] в 1964 г. и Ахмановым и автором [113] в 1965 г. Оно было обнаружено Мейкером и др. [114] в 1965 г. Из последних работ по ГКР укажем [115—117, 186], в которых можно найти более подробную библиографию. Вынужденное ГКР наблюдали Днепровский с сотр. [118] и Кайзер с сотр. [119] (см. также [174]).

Гиперпараметрическое рассеяние. ГПР или четырехфотонное параметрическое рассеяние (его называют также рассеянием света на свете в веществе), которое удобно описывать с помощью кубической поляризуемости [41, 42, 89], впервые было зафиксировано Гринбергом и др. в кристалле сульфида кадмия в 1968 г. [120]. Дальнейшие эксперименты описаны в [121—125]. Антистоксовы квантовые шумы преобразователей частоты (т. е. каскадное ГПР в пьезокристаллах — см. § 7.1) изучались теоретически в работах [41, 129—133] и экспериментально в [126—128].

Как отмечалось в § 1.3, ГПР при изменении частоты наблюдаемого сигнала непрерывно переходит в ГКР или в когерентное комбинационное рассеяние (ККР), которое было обнаружено Терхьюном [134] в первых экспериментальных исследованиях вынужденного комбинационного рассеяния в виде направленного по образующим конуса антистоксова излучения. Углы преимущественного рассеяния антистоксовых компонент в случае малой расходимости накачки хорошо согласуются с условием четырехфотонного синхронизма (библиографию см. в [135]; в этой работе дается объяснение наблюдаемых иногда отклонений от обычных условий синхронизма, а также обсуждаются причины неизотропности высших компонент ККР). До сих пор ККР наблюдалось в вынужденном режиме при накачке мощными импульсными лазерами. В спонтанном режиме эффект ККР квадратичен по накачке и объясняется [136] квантовыми флуктуациями стоксова поля, а также тепловыми или квантовыми флуктуациями молекул (§ 7.2). В 1977 г. в работе [137] было теоретически показано, что спонтанное ККР в случае низкой температуры образца сопровождается излучением бифотонов (§ 7.3).

Спонтанному ККР соответствует вынужденный эффект резонансного преобразования частоты $2\omega_3 - \omega_2 \to \omega_1$, $\omega_3 - \omega_1 \sim \omega_\mu$, нашедший важные спектроскопические приложения (метод активной спектроскопии или КАРС). Впервые его применили Мейкер и Терхьюн в 1965 г. [138] (см. обзор [139]).

В 1974 г. Харрис и Майлс [140] предложили использовать другой вариант резонансного преобразования частоты — при двухфотонном резонансе накачки с электронным переходом $2\omega_3 \pm$

$\pm\,\omega_2 \to \omega_1$, $2\omega_3 \sim \omega_\mu$ — для генерации ультрафиолетового (УФ) излучения (подробнее см. [15—17]). Ранее этот вынужденный эффект был обнаружен в радиодиапазоне [30]. Соответствующий спонтанный процесс (рис. 5, *л*), который можно назвать двухфотонной резонансной флуоресценцией, еще не наблюдался.

Наконец, при однофотонном резонансе накачки с электронным переходом $\omega_3 \sim \omega_\mu$ имеет место резонансная люминесценция, исследовавшаяся Вудом еще в 1905 г. В высших приближениях по интенсивности накачки следует учитывать эффекты насыщения, расщепления резонанса и ГКР на электронном переходе $\omega_1 = 2\omega_3 - \omega_\mu$ (рис. 5, *к*) или, что то же самое, резонансное ГПР, рассмотренное Моллоу в 1969 г. [175] и Соколовским в 1970 г. [141]. Экспериментально эти эффекты впервые исследовали Шуда и др. [142]. Ссылки на дальнейшие работы и более подробное описание см. в [13, 15—17, 176]. Отметим, что соответствующий вынужденный эффект исследовался раньше в 60-х годах в радиодиапазоне [34—36].

ГЛАВА 2

НЕКОТОРЫЕ СВЕДЕНИЯ ИЗ КВАНТОВОЙ МЕХАНИКИ И СТАТИСТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

В этой главе дается краткая сводка некоторых понятий и формальных правил вычислений квантовой механики и статистики, которые понадобятся в дальнейшем для описания процессов излучения и рассеяния света веществом. В § 2.1 дается рецепт перехода от классических уравнений движения к квантовым и обсуждается связь наблюдаемых и вычисляемых величин. В § 2.2 вводятся удобные обозначения Дирака и геометрическая интерпретация квантовой механики. В § 2.3 рассматриваются представление взаимодействия и теория возмущений. § 2.4 посвящен важной закономерности статистической физики, называемой флуктуационно-диссипативной теоремой (ФДТ). Наконец, в § 2.5 вводятся понятия релаксации и термостата и выводится простейшее кинетическое уравнение, отличающееся от динамических уравнений учетом взаимодействия с термостатом. Это взаимодействие приводит к затуханию и тепловым шумам, которые при $T \neq 0$ добавляются к квантовым шумам.

§ 2.1. Переход от классического описания к квантовому

Квантование уравнений движения. Пусть нам известны классические уравнения движения рассматриваемой системы. Например, классическая динамика одномерного линейного осциллятора определяется вторым законом Ньютона:

$$m\ddot{q} = -kq + F(t). \tag{1}$$

Процедура перехода к квантовой динамике включает следующие четыре основных этапа.

1. Выбор наиболее удобной системы координат $\{q_i(t)\}$, определяющих вместе со скоростями $\{\dot{q}_i(t)\}$ состояние системы (т. е. дающих полную информацию о системе).

2. Подбор функции Лагранжа $\mathscr{L}(q, \dot{q}, t)$, приводящей при использовании системы уравнений Лагранжа

$$\frac{d}{dt}\frac{\partial \mathscr{L}}{\partial \dot{q}_i} - \frac{\partial \mathscr{L}}{\partial q_i} = 0 \tag{2}$$

к исходным уравнениям движения. Так, легко проверить, что уравнению (1) соответствует лагранжиан

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} m\dot{q}^2 - \frac{1}{2} kq^2 + qF(t). \tag{3}$$

3. Замена переменных — переход к обобщенным (каноническим) импульсам $\{p_i(t)\}$ (вместо скоростей) и нахождение функции Гамильтона по формулам

$$p_i \equiv \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i}, \qquad \mathcal{H}(p, q, t) \equiv \sum_i p_i \dot{q}_i - \mathcal{L}. \tag{4}$$

В случае гармонического осциллятора из (3) находим

$$p = m\dot{q}, \quad \mathcal{H} = \frac{p^2}{2m} + \frac{kq^2}{2} - qF(t). \tag{5}$$

В новых переменных уравнения (2) переходят в уравнения Гамильтона

$$\dot{q}_i = \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial p_i}, \quad \dot{p}_i = -\frac{\partial \mathcal{H}}{\partial q_i}. \tag{6}$$

Уравнения (6) позволяют составить уравнение движения любой динамической переменной (называемой в квантовой механике *наблюдаемой* величиной), т. е. произвольной функции обобщенных координат и импульсов $f(q, p, t)$:

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + \{f, \mathcal{H}\}, \tag{7}$$

где фигурные скобки (скобки Пуассона) обозначают следующую операцию:

$$\{f, g\} \equiv \sum_i \left(\frac{\partial f}{\partial q_i} \frac{\partial g}{\partial p_i} - \frac{\partial g}{\partial q_i} \frac{\partial f}{\partial p_i} \right) \tag{8}$$

(здесь все переменные берутся в один и тот же момент времени). Например, скорость изменения гамильтониана (5) равна

$$\frac{d\mathcal{H}}{dt} = \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial t} = -q\dot{F}. \tag{9}$$

4. Переход от обычной алгебры к алгебре некоммутирующих величин, в которой

$$fg - gf \equiv [f, g] \neq 0. \tag{10}$$

Разность (10), которая называется коммутатором или перестановочным соотношением наблюдаемых f и g, определяется следующим правилом:

$$[f, g] = i\hbar \{f, g\}. \tag{11}$$

Например,

$$[q_i, p_j] = i\hbar\delta_{ij}, \quad [f(q_i), p_j] = i\hbar \frac{\partial f}{\partial q_j}. \tag{12}$$

Согласно (7) и (11) квантовое уравнение движения произвольной наблюдаемой можно записать в следующем виде, называемом уравнением Гейзенберга:

$$\frac{df}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{1}{i\hbar}[f, \mathscr{H}]. \tag{13}$$

При переходе к некоммутативной алгебре произведения наблюдаемых должны быть симметризованы: $fg \to (fg + gf)/2$. Найдем, например, коммутатор операторов q^2 и p^2. Из (11) и (8) следует $[q^2, p^2] = 4\, i\hbar qp \to 2\, i\hbar\, (qp + pq)$. Как легко проверить, такие же перестановочные соотношения имеют место для операторов умножения на q и дифференцирования — $i\hbar\partial/\partial q$ по отношению к произвольной функции $\psi(q)$.

Выбор представления. При решении динамических задач в квантовой механике можно использовать различные *представления*, которые носят имена Шредингера, Гейзенберга и Дирака. Переход от одного из этих представлений к другому аналогичен в некоторой степени переходу от неподвижной системы координат к вращающейся системе в классической механике. Представление Дирака, которое называется также представлением взаимодействия, будет рассмотрено позже, в § 2.3.

В более наглядном и близком к классике представлении Гейзенберга задача сводится к решению уравнений Гейзенберга с учетом некоммутативности некоторых переменных. В результате интересующие нас величины $f(t)$, $g(t)$,. . . в произвольный момент времени t выражаются через начальные условия, и остается лишь усреднить эти решения, полагая $f(t_0)$, $g(t_0)$,. . . случайными величинами.

В представлении Шредингера динамика системы также определяется гамильтонианом, однако изменение состояния со временем описывается не с помощью набора функций $f(t)$, $g(t)$, . . ., а с помощью волновой функции $\psi(q, t)$, которая удовлетворяет уравнению Шредингера

$$i\hbar \frac{\partial\psi}{\partial t} = \mathscr{H}_{\text{Ш}}\psi, \tag{14}$$

где $\mathscr{H}_{\text{Ш}}$ теперь является линейным оператором, преобразующим волновую функцию по определенным правилам (которые можно вывести из коммутационных соотношений (12)). Оператор Гамильтона $\mathscr{H}_{\text{Ш}}$ и другие операторы в представлении Шредингера могут зависеть от времени лишь явно, т. е. при наличии заданных внешних сил $F(t)$. Связь между $\mathscr{H}_{\text{Ш}}$ и $\mathscr{H}$ будет рассмотрена в § 2.2.

Сравнение теории и эксперимента. Остается выяснить нетривиальный вопрос о взаимосвязи вычисляемых и измеряемых величин. В квантовой механике постулируется, что с экспериментальными числами надо сравнивать не сами переменные f, g, . . ., а лишь усредненные значения, которые мы будем обозначать с помощью угловых скобок $\langle f\rangle$, $\langle g\rangle$, . . . Операция усреднения производится не с помощью вещественных функций распределения, как это делается в обычной теории вероятностей, а с помощью комплексных волновых функций по следующему правилу:

$$\langle f(t)\rangle = \int dq\, \psi^*(qt_0)\, f(t)\, \psi(qt_0) = \int dq\, \psi^*(qt)\, f_{\text{Ш}}(t)\, \psi(qt), \quad (15)$$

где $f(t)$ считается линейным оператором, преобразующим расположенную справа функцию ψ.

Начальная волновая функция в (15) считается известной — предполагается, что «источник» фотонов (или электронов, атомов, молекул,...) «изготавливает» их в заданном состоянии $\psi(t_0)$, зависящем от свойств источника. Другая часть любой экспериментальной установки — «детектор» — определяет, какую именно динамическую переменную надо выбрать в качестве наблюдаемой величины f, а также момент времени t. Эволюция системы от t_0 до t определяется уравнениями Шредингера или Гейзенберга, т. е. внешними силами $F(t)$ и внутренними свойствами самой системы, задаваемыми ее гамильтонианом $\mathscr{H}(t)$.

При изучении рассеяния света веществом электромагнитное поле, вообще говоря, надо квантовать и считать частью «системы». При этом $\psi(t_0)$ задает начальные свойства образца и падающего на образец излучения. Однако часто без большой погрешности можно полагать падающее поле (или часть этого поля — накачку) классическим полем (детерминированным или случайным с заданной классической статистикой на входе). В этом приближении влияние накачки учитывается добавлением переменного возмущения в гамильтониан, который при этом становится зависящим явно от времени.

Строго говоря, «детектор» всегда оказывает обратное влияние на «систему», а «система» — на «источник». Поэтому под «системой» следовало бы понимать всю экспериментальную установку, включая «наблюдателя»! Эта древняя философская проблема разделения объекта и субъекта приобрела особую остроту в квантовой механике. Однако поразительные успехи квантовых расчетов показывают, что до сих пор всегда удавалось провести границы между источником, системой и детектором и выбрать $\psi(t_0)$, $\mathscr{H}(t)$ и $f(t)$ так, что теоретические предсказания по формуле (15) согласуются с наблюдениями.

Экспериментальная процедура. Экспериментальное значение $\langle f(t)\rangle_{\text{эксп}}$ определяется арифметическим усреднением по некото-

рому числу N отдельных наблюдений f_i, производимых в идентичных условиях и при одинаковых $t - t_0$:

$$\langle f(t)\rangle_{\text{эксп}} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} f_i, \tag{16}$$

и адекватная эксперименту теория должна давать $\langle f\rangle_{\text{эксп}} \to \langle f\rangle$ при $N \to \infty$.

Квантовая теория (как и теория вероятностей или статистическая физика) не претендует в общем случае на предсказание результата отдельного измерения, она лишь позволяет рассчитывать средние по ансамблю величины вида $\langle f\rangle$, $\langle f^n\rangle$, $\langle f^n g^m\rangle$,. . . Набор *моментов* $\langle f^n(t)\rangle$ случайной функции $f(t)$ известным образом определяет *плотность распределения* $P(f, t)$ (или ее фурье-образ $\chi(\mu, t)$, называемый характеристической функцией), т. е. определяет полную статистическую информацию о величине f в момент времени t.

Если волновая функция системы $\psi(t_0)$ — *собственная функция* (§ 2.2) оператора $f(t)$, т. е. $f(t)\,\psi(t_0) = f_c(t)\psi(t_0)$, где $f_c(t)$ — обычная или, как говорят, «c-числовая» функция, то согласно (15)

$$\langle f^n(t)\rangle = f_c^n(t), \quad P(f, t) = \delta[f - f_c(t)], \tag{17}$$

и поэтому результаты отдельных наблюдений должны совпадать: $f_i = f_c$. В противном случае числа f_i будут флуктуировать со статистикой, стремящейся при больших N к теоретической. Таким образом, результат одного отдельного измерения f_1 можно предсказать, лишь если нам удалось «приготовить» систему в собственном состоянии оператора f.

Итак, чтобы перейти от классической теории к квантовой, в представлении Гейзенберга надо просто рассматривать динамические переменные системы q, p, f,. . . в классических уравнениях движения случайными и некоммутирующими величинами, а сами уравнения — стохастическими. Решение этих уравнений определяет некоторое преобразование случайной переменной $f(t_0) \to f(t)$, в котором время играет роль параметра преобразования. Отличие от классической теории случайных процессов проявляется «лишь» в использовании некоммутативной алгебры и в процедуре усреднения (15), которая производится с помощью комплексной функции $\psi(t_0)$.

С другой точки зрения, можно считать, что реальный «источник» квантовых объектов задает не начальную ψ-функцию, а начальные моменты $\langle f^n(t_0)\, g^m(t_0) \ldots\rangle \equiv c_{nm\ldots}$ (которые в случае рассеяния света можно измерить тем же «детектором», убрав «образец» и возмущающие поля). При этом волновая функция и процедура усреднения выпадают из описания, и надо лишь выразить с помощью уравнения Гейзенберга наблюдаемые

переменные через начальные значения:

$$f(t) = \Phi\{f(t_0), g(t_0), \ldots\} = \sum U_{nm\ldots}(t, t_0) f^n(t_0) g^m(t_0) \ldots, \quad (18)$$

так что в случае адекватной теории результаты измерений удовлетворяют связи

$$\langle f(t)\rangle_{\text{эксп}} = \sum U_{nm\ldots}(t, t_0) c_{nm\ldots} \quad (19)$$

Набор коэффициентов $U_{nm\ldots}$ можно назвать матрицей рассеяния.

§ 2.2. Обозначения Дирака и геометрическая интерпретация квантовой механики

Функции как векторы. Рассмотрим непрерывную функцию $\psi(q)$, аргумент которой изменяется в ограниченном интервале значений. Мы можем сколь угодно точно задать эту функцию с помощью пронумерованного набора из N чисел: $\psi_n \equiv \psi(q_n)$ $(n = 1, 2, \ldots, N)$, разбив интервал изменения q на достаточно большое число отрезков. Будем считать, что эти числа являются декартовыми компонентами некоторого радиуса-вектора в N-мерном пространстве. Обозначим этот вектор символом $|\psi\rangle = \{\psi_1, \ldots, \psi_N\}$. Если $\psi(q)$ — комплексная функция, нам понадобится $2N$ чисел и измерений. Функции $\psi^*(q)$ будет соответствовать комплексно-сопряженный вектор, который мы обозначим через $\langle\psi| = |\psi\rangle^*$. Различным функциям $\psi(q)$, $\varphi(q)$, ... будут соответствовать различные наборы чисел, т. е. различные векторы в этом пространстве, называемом гильбертовым.

Число

$$\sum_{n=1}^{N} \psi_n^* \varphi_n \equiv \langle\psi|\varphi\rangle = \langle\varphi|\psi\rangle^* \quad (1а)$$

назовем скалярным произведением векторов $|\psi\rangle$ и $\langle\varphi|$. Если отказаться от дискретности переменной q, то надо считать наше воображаемое пространство бесконечномерным $(N \to \infty)$, и (1а) переходит в

$$\int dq\, \psi^*(q)\, \varphi(q) \equiv \langle\psi|\varphi\rangle. \quad (1б)$$

Будем называть длиной или нормой вектора $|\psi\rangle$ корень квадратный из суммы (интеграла):

$$\langle\psi|\psi\rangle = \sum_n |\psi_n|^2 \text{ или } \int dq\, |\psi(q)|^2. \quad (2)$$

Орты координатных осей в гильбертовом пространстве также являются векторами: $|q_1\rangle, \ldots, |q_N\rangle$ или, короче, $|1\rangle, \ldots, |N\rangle$. Условие их ортогональности и нормированности имеет следующий

вид:

$$\langle n \mid n' \rangle = \delta_{nn'} \tag{3а}$$

или, в случае непрерывной переменной,

$$\langle q \mid q' \rangle = \delta (q - q'), \tag{3б}$$

где $\delta(x)$ — дельта-функция Дирака, отличная от нуля лишь при $x = 0$. Система ортов $\mid n \rangle$ составляет, как говорят, *базис* пространства. Компонента данного вектора $\mid \psi \rangle$ вдоль какой-либо координатной оси равна скалярному произведению $\mid \psi \rangle$ на орт от этой оси, т. е.

$$\psi_n = \langle n \mid \psi \rangle. \tag{4}$$

Итак, произвольным квадратично интегрируемым функциям мы поставили в соответствие векторы, которые можно представить в виде взвешенной суммы базисных векторов:

$$\mid \psi \rangle = \sum_n \mid n \rangle \langle n \mid \psi \rangle. \tag{5}$$

Преобразования функций и тензоры. Пусть функции ψ и φ связаны каким-либо линейным преобразованием, например, интегральным или дифференциальным:

$$\psi(q) = \hat{f}\varphi(q), \qquad \hat{f} = -i\hbar \frac{d}{dq}. \tag{6}$$

В гильбертовом пространстве эту связь функций обозначим векторным равенством [1])

$$\mid \psi \rangle = \boldsymbol{f} \mid \varphi \rangle, \tag{7}$$

согласно которому операторам, совершающим линейные преобразования функций, в гильбертовом пространстве соответствуют тензоры, изменяющие длины и направления векторов. Определим обратный к $\boldsymbol{f}$ тензор $\boldsymbol{f}^{-1}$ равенством

$$\mid \varphi \rangle = \boldsymbol{f}^{-1} \mid \psi \rangle,$$

из которого следует $\boldsymbol{f}\boldsymbol{f}^{-1} = \boldsymbol{I}$, где $\boldsymbol{I}$ обозначает тождественное преобразование. Определим также эрмитово-сопряженный к $\boldsymbol{f}$ оператор $\boldsymbol{f}^{+}$ равенством

$$\langle \psi \mid = \{\boldsymbol{f} \mid \varphi \rangle\}^* = \langle \varphi \mid \boldsymbol{f}^{+}$$

(в последнем выражении оператор или тензор действует «налево»). Умножим вектор (7) на какой-либо другой вектор:

$$\langle \chi \mid \psi \rangle = \langle \chi \mid \cdot \{\boldsymbol{f} \mid \varphi \rangle\} \equiv \langle \chi \mid \boldsymbol{f} \mid \varphi \rangle, \tag{8}$$

---

[1]) В настоящем параграфе операторы будут выделяться полужирным шрифтом.

это число называется матричным элементом оператора $\boldsymbol{f}$. Согласно (1) и (8)

$$\langle\chi \mid \boldsymbol{f} \mid \varphi\rangle^* = \{\boldsymbol{f} \mid \varphi\rangle\}^* \cdot \mid \chi\rangle \equiv \langle\varphi \mid \boldsymbol{f}^+ \mid \chi\rangle. \tag{8a}$$

Компоненты преобразованного вектора ψ_n равны $\langle n \mid \psi\rangle = \langle n \mid \boldsymbol{f} \mid \varphi\rangle$ или, с учетом *представления* (5),

$$\langle n \mid \psi\rangle = \sum_{n'} \langle n \mid \boldsymbol{f} \mid n'\rangle \langle n' \mid \varphi\rangle. \tag{9}$$

Таким образом, чтобы по числам φ_n, задающим функцию $\varphi(q)$, найти числа ψ_n, т. е. преобразованную функцию $\psi(q)$, надо знать N^2 чисел $\langle n \mid \boldsymbol{f} \mid n'\rangle \equiv f_{nn'}$, образующих матрицу. Эта матрица *представляет* оператор $\boldsymbol{f}$ в данном базисе $\mid n\rangle$. Обратно, любые N^2 чисел определяют некоторый оператор; например, из компонент двух векторов можно образовать оператор (называемый *диадой*) по правилу

$$\langle n \mid \boldsymbol{f} \mid n'\rangle \equiv \langle n \mid \varphi\rangle \langle\psi \mid n'\rangle \tag{10}$$

где $f_{nn'} = \overset{*}{\varphi}_n \psi_{n'}$. Оператор-диаду с матрицей (10) удобно обозначить так:

$$\boldsymbol{f} \equiv \mid \varphi\rangle \langle\psi \mid. \tag{11}$$

Частным случаем диадного оператора является оператор $\boldsymbol{P}_\varphi \equiv \mid \varphi\rangle\langle\varphi \mid$, который, действуя на любой вектор, выделяет его компоненту вдоль «направления» $\mid \varphi\rangle$:

$$\boldsymbol{P}_\varphi \mid \psi\rangle = \mid\varphi\rangle\langle\varphi \mid \psi\rangle, \tag{12}$$

и поэтому называется *проекционным* (при условии $\langle\varphi \mid \varphi\rangle = 1$).

Разложение единицы. Векторная сумма всех компонент вектора составляет снова тот же вектор, т. е.

$$\mid \psi\rangle = \sum_n \mid n\rangle \langle n \mid \psi\rangle = \Big\{\sum_n \mid n\rangle \langle n \mid\Big\} \mid \psi\rangle.$$

Это свойство базисных векторов можно записать так:

$$\boldsymbol{I} = \sum \mid n\rangle \langle n \mid \quad \text{или} \quad \int dq \mid q\rangle \langle q \mid, \tag{13}$$

где $\boldsymbol{I}$ — единичный оператор с матричными элементами $\delta_{nn'}$ или $\delta(q - q')$. Равенство (13) называется *разложением единицы*, и оно означает, что система базисных векторов (ортов) $\mid n\rangle$ является полной, т. е. достаточной для представления любого вектора или тензора.

Заметим, что разложение (5) мы можем теперь легко получить, подействовав на $\mid \psi\rangle$ единичным оператором с учетом (13). Далее, умножим произвольный оператор слева и справа на $\boldsymbol{I}$, тогда согласно (13)

$$\boldsymbol{f} = \sum_{nn'} \mid n\rangle \langle n \mid f \mid n'\rangle \langle n' \mid = \sum f_{nn'} \mid n\rangle \langle n' \mid. \tag{14}$$

Это равенство является разложением оператора по диадам, составленным из ортов данного базиса. Двум последовательным операциям $\boldsymbol{f}$ и $\boldsymbol{g}$ соответствует третий оператор, являющийся «произведением» операторов: $\boldsymbol{fg} = \boldsymbol{h}$; его матричные элементы определяются по обычному правилу умножения квадратных матриц

$$h_{nn'} = \langle n | \boldsymbol{fg} | n' \rangle = \sum_{n''} \langle n | \boldsymbol{f} | n'' \rangle \langle n'' | \boldsymbol{g} | n' \rangle \tag{15}$$

или согласно (13) $\boldsymbol{h} = \boldsymbol{f}\,\boldsymbol{I}\,\boldsymbol{g} = \sum \boldsymbol{f} | n \rangle \langle n | \boldsymbol{g}$. Некоммутирующим операциям (например, умножение $\psi(q)$ на q и дифференцирование $\partial\psi/\partial q$ «не равно» дифференцированию и умножению) соответствуют некоммутирующие матрицы.

Различные представления. В обычном пространстве при повороте системы декартовых координат на какой-то угол компоненты векторов и тензоров изменяются. В гильбертовом пространстве аналогичная процедура называется изменением представления или базиса.

Всевозможные базисы (системы координат) можно классифицировать с помощью операторов, не изменяющих направления ортов. Определим собственные векторы и собственные значения оператора равенством

$$\boldsymbol{f} \,|\, \psi_n \rangle = f_n \,|\, \psi_n \rangle, \tag{16}$$

где индекс $n = 1, \ldots, N$ нумерует различные собственные функции-векторы. Набор чисел f_n (среди которых могут быть одинаковые) составляет *спектр* данного оператора. Условие (16) определяет лишь «направление» собственных векторов, и мы можем дополнительно потребовать, чтобы $\langle \psi_n | \psi_n \rangle = 1$. Легко показать, что если $\boldsymbol{f}$ — эрмитов (самосопряженный) оператор (т. е. $\boldsymbol{f} = \boldsymbol{f}^+$), то набор его собственных функций $|\psi_n\rangle \equiv |n\rangle$ составляет полную ортогональную систему:

$$\langle n | n' \rangle = \delta_{nn'}, \qquad \sum_n | n \rangle \langle n | = \boldsymbol{I} \tag{17}$$

(в случае вырожденных собственных значений можно с помощью алгоритма Шмидта составить ортогональные суперпозиции векторов $|\psi_n\rangle$).

С помощью различных эрмитовых операторов мы можем определить множество равноправных базисов гильбертова пространства. Для экономии символов иногда удобно обозначить все три типа величин — оператор, его базис и спектр — одной буквой, так что (16) принимает вид: $\boldsymbol{f} | f \rangle = f | f \rangle$. Заметим, что неэрмитовы операторы порождают неортогональные базисы, которые также можно использовать для представления векторов и операторов (см. Приложение и § 3.3).

Легко проверить, что матрица данного оператора в собственном представлении диагональна и ее элементы совпадают с собственными значениями, (14) принимает вид $\boldsymbol{f} = \sum_f f \mid f\rangle\langle f \mid$. Отсюда следует, что

$$\boldsymbol{f}^k = \sum f^k \mid f\rangle \langle f \mid, \qquad F(\boldsymbol{f}) = \sum F(f) \mid f\rangle\langle f \mid. \tag{18}$$

Удобство обозначений Дирака наиболее ярко проявляется при разложении данного вектора (или тензора) по различным представлениям; для этого надо просто приписать слева (и в случае тензора справа) единицу в виде суммы проекционных диад (13):

$$\begin{gathered} \mid\psi\rangle = \sum_f \mid f\rangle\langle f \mid \psi\rangle = \sum_g \mid g\rangle\langle g \mid \psi\rangle = \ldots, \\ \boldsymbol{f} = \sum_f \mid f\rangle f \langle f \mid = \sum_{gg'} \mid g\rangle\langle g \mid \boldsymbol{f} \mid g'\rangle\langle g' \mid = \ldots \end{gathered} \tag{19}$$

Определим, как связаны проекции одного и того же вектора в двух различных базисах $\mid n\rangle$ и $\mid m\rangle$, образованных некоммутирующими операторами с дискретными спектрами. Опять, используя разложение единицы (17), легко находим

$$\langle n \mid \psi\rangle = \sum_m \langle n \mid m\rangle\langle m \mid \psi\rangle. \tag{20}$$

Набор чисел $\langle n \mid m\rangle$ аналогичен направляющим косинусам для двух декартовых систем координат. Этот набор можно расположить в виде матрицы, которую мы обозначим буквой $\mathcal{W}$. Обратному преобразованию соответствует матрица $\mathcal{W}^+$ с компонентами $\langle m \mid n\rangle$. Из (17) следует

$$\sum_n \langle m \mid n\rangle\langle n \mid m'\rangle = \delta_{mm'}, \qquad \sum_m \langle n \mid m\rangle\langle m \mid n'\rangle = \delta_{nn'}.$$

Таким образом, матрица преобразования базиса *унитарна*: $\mathcal{W}^+\mathcal{W} = \mathcal{W}\mathcal{W}^+ = I$.

Матрица $\mathcal{W}$ определяет также закон преобразования компонент операторов при смене представления:

$$\langle n \mid \boldsymbol{f} \mid n'\rangle = \sum_{mm'} \langle n \mid m\rangle\langle m \mid \boldsymbol{f} \mid m'\rangle\langle m' \mid n'\rangle. \tag{21}$$

Скаляры не изменяются при замене базиса:

$$\langle \varphi \mid \psi\rangle = \sum_n \langle \varphi \mid n\rangle\langle n \mid \psi\rangle = \sum_m \langle \varphi \mid m\rangle\langle m \mid \psi\rangle. \tag{22}$$

Заметим, что матрица преобразования базиса определена с помощью индексов двух различных базисов, и поэтому она в общем случае (когда, например, один базис — дискретный, а другой — непрерывный) не представляет какого-либо оператора.

Унитарные преобразования. Рассмотрим случай, когда между индексами n и m можно установить взаимно однозначное соот-

ветствие (этот случай наиболее близок к поворотам декартовых координат). При этом можно полагать, что поворачивается не система координат $|m\rangle \to |n\rangle$ относительно неподвижных векторов $|\psi\rangle$, а, наоборот, векторы поворачиваются на какой-то угол относительно ортов: $|\psi\rangle \to |\psi'\rangle$. Повороту векторов можно поставить в соответствие некоторый оператор:

$$|\psi'\rangle = \mathcal{U}\,|\psi\rangle, \quad \langle\psi'| = \langle\psi\,|\,\mathcal{U}^+. \tag{23}$$

Чтобы скаляры при вращениях векторов оставались инвариантными, оператор $\mathcal{U}$ должен быть унитарным:

$$\langle\varphi'\,|\,\psi'\rangle = \langle\varphi\,|\,\mathcal{U}^+\mathcal{U}\,|\,\psi\rangle = \langle\varphi\,|\,\psi\rangle, \qquad \mathcal{U}^+\mathcal{U} = \boldsymbol{I}.$$

Пусть $|\varphi\rangle = \boldsymbol{f}\,|\psi\rangle$; потребовав, чтобы $|\varphi'\rangle = \boldsymbol{f}'\,|\psi'\rangle$, мы получим закон изменения операторов при унитарном преобразовании:

$$\boldsymbol{f}' = \mathcal{U}\boldsymbol{f}\mathcal{U}^+. \tag{24}$$

При этом если $\boldsymbol{fg} = \boldsymbol{h}$, то и $\boldsymbol{f}'\boldsymbol{g}' = \boldsymbol{h}'$.

Все введенные выше определения и соотношения имеют чисто математический характер, и отличаются от обычной линейной алгебры и теории матриц лишь обозначениями, использующими асимметричные угловые скобки. Заметим, что этот формализм, устанавливающий однозначное соответствие между функциями и операциями над ними, с одной стороны, и векторами и матрицами, с другой, без труда переносится на функции нескольких переменных. Например, если $\psi = \psi(x, y)$, то надо просто перенумеровать в любом порядке узлы координатной сетки на плоскости (xy) и принять за компоненты вектора $|\psi\rangle$ числа

$$\psi(x_1y_1) \equiv \langle 1\,|\,\psi\rangle, \quad \psi(x_1y_2) \equiv \langle 2\,|\,\psi\rangle, \ldots, \quad \psi(x_Ny_N) \equiv \langle N^2\,|\,\psi\rangle$$

(размерность пространства при удвоении числа переменных возводится в квадрат).

Связь с физикой. Физическое содержание этого формализма устанавливается постулатами квантовой механики, ставящими в соответствие классическим параметрам объекта наблюдения q, p, $f(q, p), \ldots$ операторы $\boldsymbol{q}$, $\boldsymbol{p}$, $f(\boldsymbol{q}, \boldsymbol{p}), \ldots$ Основную роль играет «постулат измерения» (2.1.15), связывающий результаты многократных измерений величины f_i в системах с идентичной историей с матричным элементом оператора $\boldsymbol{f}$, вычисленным с помощью волновой функции $\psi(qt)$; при этом в случае q-представления оператор канонического импульса $\boldsymbol{p}$ принимается в виде (6), а действие оператора координаты $\boldsymbol{q}$ сводится к умножению на число q. В силу свойства инвариантности (21) средние величины можно рассчитывать в любом представлении, в том числе — в собственном:

$$\langle\boldsymbol{f}\rangle \equiv \langle\psi|\,\boldsymbol{f}\,|\psi\rangle = \sum_n f_n\,|\langle n\,|\,\psi\rangle|^2 = \sum_{mm'} \langle\psi\,|\,m\rangle\langle m\,|\,\boldsymbol{f}\,|\,m'\rangle\langle m'\,|\,\psi\rangle, \tag{25}$$

где $f_n = \langle n | \boldsymbol{f} | n \rangle$ — собственные значения $\boldsymbol{f}$. При разложении по непрерывным базисам (т. е. по базисам, принадлежащим операторам с непрерывным спектром собственных значений) суммирование заменяется интегрированием; например,

$$\langle \boldsymbol{f} \rangle = \int df \, |\langle f | \psi \rangle|^2 f = \iint \langle \psi | q \rangle \, dq \, \langle q | \boldsymbol{f} | q' \rangle \, dq' \, \langle q' | \psi \rangle.$$

Можно сказать, что квантовая механика в общем случае предсказывает лишь плотность распределения $P(f)$ результатов измерения:

$$\langle \boldsymbol{f} \rangle = \sum_n f_n P(f_n) \quad \text{или} \quad \int df P(f) f,$$

где согласно (25) $P(f)$ равна квадрату модуля проекции вектора состояния системы $|\psi\rangle \equiv |\,\rangle$ на «направление» $|f\rangle$:

$$P(f) = \langle\, | f \rangle \langle f | \,\rangle = \langle \boldsymbol{P}_f \rangle, \qquad \boldsymbol{P}_f = | f \rangle \langle f |. \tag{26}$$

Можно считать, что проекционный оператор $| f_1 \rangle \langle f_1 |$ соответствует наблюдаемой особого рода — ее среднее $P(f_1)$ есть *населенность* [1]) состояния $| f_1 \rangle$, т. е. относительное число систем (в квантовом ансамбле тождественных измерений), дающих при измерении величины f частное значение f_1.

Итак, если известно, что вектор состояния системы равен $|\,\rangle$, то плотность распределения результатов измерения какой-либо величины f равна «среднему» $\langle \boldsymbol{P}_f \rangle$ от оператора проектирования на направление $| f \rangle$. Если вектор $|\,\rangle$ параллелен одному из собственных векторов наблюдаемой $\boldsymbol{f}$, например, $| f_1 \rangle$, то $P(f) = \delta(f - f_1)$.

Пусть, например, вектор состояния $|\,\rangle$ задан в координатном представлении: $\psi(q) = \langle q | \psi \rangle$, тогда плотность распределения импульса можно найти по формуле

$$P(p) = \langle\, | p \rangle \langle p |\, \rangle = \left| \int dq \, \langle p | q \rangle \langle q | \,\rangle \right|^2 = \frac{1}{2\pi\hbar} \left| \int dq \, e^{-ipq/\hbar} \psi(q) \right|^2, \tag{27}$$

где последнее равенство следует из (см. [3], с. 71) $\langle p | q \rangle = \exp(-ipq/\hbar)/\sqrt{2\pi\hbar}$. Из сравнения плотности распределения координаты $P(q)$, равной в собственном представлении просто $|\psi(q)|^2$, с $P(p)$ по (27) следует принцип неопределенности $\Delta q^2 \Delta p^2 \geqslant \hbar^2/4$ для дисперсий распределений координаты и импульса.

Время как параметр. Момент измерения t в нерелятивистской квантовой механике играет роль параметра распределения вероятностей, от которого в представлении Шредингера зависит вектор состояния $|\psi(t)\rangle \equiv | t \rangle$, а в представлении Гейзенберга —

---

[1]) Этот термин используют обычно в случае, когда наблюдаемая $\boldsymbol{f}$ является энергией.

оператор наблюдаемой $\boldsymbol{f}(t)$ и, следовательно, собственные векторы $|f(t)\rangle$ и плотность распределения:

$$P(f, t) = |\langle t \mid \boldsymbol{f}_{\text{Ш}}(t)\rangle|^2 = |\langle t_0 \mid \boldsymbol{f}(t)\rangle|^2. \tag{28}$$

В частности (ср. (2.1.15)),

$$\langle \boldsymbol{f}(t)\rangle = \langle t \mid \boldsymbol{f}_{\text{Ш}}(t) \mid t\rangle = \langle t_0 \mid \boldsymbol{f}(t) \mid t_0\rangle. \tag{29}$$

Напомним, что при экспериментальном определении средних величин надо в общем случае каждое измерение производить над «новыми» системами, приготовленными в идентичных условиях. Если же мы производим два или большее число измерений над одной и той же системой, то мы должны учесть возможное возмущение системы детекторами. Для этого надо добавить в гамильтониан подходящие слагаемые. Согласно ортодоксальной теории измерений детектор, показавший, что величина $\boldsymbol{f}$ равна f_1, превращает исходный вектор состояния $|\,\rangle$ в $|f_1\rangle$ (так называемая «редукция волнового пакета»). Такой детектор одновременно служит «источником», изготавливающим системы в чистом состоянии $|f_1\rangle$. Иначе, обратное действие детектора на систему соответствует проекционному оператору $|f_1\rangle\langle f_1|$.

С другой стороны, два измерения могут и не влиять друг на друга, например, если гамильтониан взаимодействия $\mathcal{V}$ системы с каким-либо детектором коммутирует с величиной f, то согласно уравнению Гейзенберга (2.1.13) этот детектор не влияет на $\boldsymbol{f}(t)$ и, следовательно, на показания других детекторов, измеряющих f (так называемые невозмущающие измерения) [177].

Изменение волновой функции во времени (в соответствии с уравнением Шредингера (2.1.14)) можно представить как движение вектора $|t\rangle$ в гильбертовом пространстве, состоящее из непрерывной последовательности поворотов (длина вектора при этом не меняется: $\langle t \mid t\rangle = 1$). С другой стороны, поворот векторов в гильбертовом пространстве описывается «действием» операторов. Таким образом, мы подошли к понятию оператора эволюции

$$|t\rangle = \mathcal{U}(t, t_0)\,|t_0\rangle, \tag{30}$$

который согласно (2.1.14) должен удовлетворять операторному ($\mathcal{H}\mathcal{U} \neq \mathcal{U}\mathcal{H}$) уравнению

$$i\hbar \frac{d}{dt}\mathcal{U} = \mathcal{H}_{\text{Ш}}(t)\,\mathcal{U}, \qquad \mathcal{U}(t_0, t_0) = \boldsymbol{I}, \tag{31}$$

а также — для сохранения нормировки — условию унитарности.

Обратим внимание на то, что явная зависимость оператора энергии в представлении Шредингера от времени — результат действия переменной внешней (классической) силы. В случае изолированной системы $\mathcal{H}_{\text{Ш}}(t) = \mathcal{H}(t) = \text{const}$, и (31) имеет

формальное решение

$$\mathcal{U} = \exp\left[-i\mathcal{H}(t-t_0)/\hbar\right]. \tag{32}$$

С другой, гейзенберговской, точки зрения, в процессе эволюции изменяются не векторы состояния, а операторы:

$$f(t) = \mathcal{U}^+(t, t_0)\, f_{\text{Ш}}(t)\, \mathcal{U}(t, t_0). \tag{33}$$

Пусть $\mathcal{H} = \text{const}$ и $\mathscr{E}_n$, $\psi_n(t_0) \equiv |n\rangle$ — собственные значения и векторы $\mathcal{H}$, тогда

$$\begin{aligned} \mathcal{U}_{nn'} &= \delta_{nn'} \exp\left[-i\mathscr{E}_n(t-t_0)/\hbar\right], \\ \psi_n(t) &= |n\rangle \exp\left[-i\mathscr{E}_n(t-t_0)/\hbar\right], \end{aligned} \tag{34}$$

так что согласно (19)

$$\begin{gathered} f(t) = \sum_{nn'} f^{nn'} \exp\left[i\omega_{nn'}(t-t_0)\right], \\ f^{nn'} \equiv f_{nn'}\sigma^{nn'}, \quad \omega_{nn'} \equiv (\mathscr{E}_n - \mathscr{E}_{n'})/\hbar, \end{gathered} \tag{35}$$

где мы ввели операторы $\sigma^{nn'} \equiv |n\rangle\langle n'|$, переводящие систему с уровня n' на уровень n и обладающие свойствами

$$\sigma^{12}|3\rangle = |1\rangle\langle 2|3\rangle = |1\rangle\,\delta_{23}, \quad \sigma^{12}\sigma^{34} = \sigma^{14}\delta_{23}. \tag{36}$$

Определим также фурье-образ $f(\omega)$ гейзенберговского оператора:

$$f(\omega) \equiv \frac{1}{2\pi}\int dt\, e^{i\omega t} f(t), \qquad f(t) = \int d\omega\, e^{-i\omega t} f(\omega), \tag{37}$$

тогда согласно (35)

$$f(\omega) = \sum_{nn'} f^{nn'}\delta(\omega + \omega_{nn'}). \tag{38}$$

Квантовые функции корреляции. В квантовой статистической физике, кроме «одновременных» функций (29), рассматриваются также средние от произведения нескольких наблюдаемых, взятых в определенной последовательности и в разные моменты времени, например:

$$\langle f(t_1) g(t_2)\rangle = \langle t_0 | f(t_1)\; g(t_2) | t_0\rangle. \tag{39}$$

Заметим, что функция корреляции (39) определена с помощью гейзенберговских величин, и ее нельзя непосредственно выразить через шредингеровские функции и операторы.

Смешанные состояния и матрица плотности. Идеальный «источник» в случае многократных измерений с новыми системами должен изготавливать их в одинаковых состояниях $|t_0\rangle$. Можно в качесте примера указать следующий способ изготовления атомов в состояниях, принадлежащих дискретному спектру. Сперва атом переводится в основное состояние $|0\rangle$ с помощью холодного термостата, а потом подвергается действию сильного когерент-

ного поля с определенной амплитудой, длительностью и частотой, равной одной из боровских частот атома ω_{10} (поле в когерентном состоянии можно, в принципе, приготовить с помощью лазера). В результате атом переводится в состояние вида $\alpha \mid 0\rangle + \beta \mid 1\rangle$ с известными коэффициентами α, β, зависящими от параметров поля.

Однако обычно источник является макроскопическим устройством с огромным числом возбужденных степеней свободы, и поэтому векторы $\mid t_0\rangle_i$ флуктуируют от раза к разу (i — номер испытания). В результате показания детектора $f_i = \langle t_0 \mid f(t) \mid t_0\rangle$ испытывают дополнительные флуктуации, которые можно описать, введя вероятности изготовления того или иного состояния ρ_n. В таких случаях состояние системы называют *смешанным* (в отличие от рассматривавшихся до сих пор *чистых* состояний с определенной волновой функцией).

Более строго надо рассматривать общую волновую функцию $\mid \rangle$ системы и источника. Пусть интересующая нас система A взаимодействует или взаимодействовала с другой системой B (например, с термостатом или источником), тогда отдельной волновой функции для A не существует. Легко показать, что все свойства A можно задать с помощью некоторого оператора, называемого *оператором плотности* (или *статистическим оператором*). Пусть наблюдаемая $\boldsymbol{f}$ относится к системе A, и нас интересует $\langle \boldsymbol{f}\rangle = \langle \mid \boldsymbol{f} \mid \rangle$. Разложим вектор $\mid \rangle$ по собственным векторам $\mid nN\rangle = \mid n\rangle \mid N\rangle$ каких-либо операторов (например, гамильтонианов $\mathscr{H}_A$ и $\mathscr{H}_B$, относящихся соответственно к системам A и B), тогда

$$\langle \boldsymbol{f}\rangle = \sum_{nn'NN'} \langle \mid nN\rangle \langle nN \mid \boldsymbol{f} \mid n'N'\rangle \langle n'N' \mid \rangle =$$

$$= \sum_{nn'N} f_{nn'} \langle n'N \mid \rangle \langle \mid nN\rangle \equiv \mathrm{Sp}_A(\boldsymbol{f}\boldsymbol{\rho}), \quad (40)$$

где мы определили матрицу плотности системы A

$$\rho_{n'n} \equiv \sum_N \langle n'N \mid \rangle \langle \mid nN\rangle \quad (41)$$

(Sp означает сумму диагональных элементов). Этой матрице соответствует оператор

$$\boldsymbol{\rho} \equiv \sum_N \langle N \mid \rangle \langle \mid N\rangle = \mathrm{Sp}_B \mid \rangle \langle \mid. \quad (42)$$

При $\boldsymbol{f} = \boldsymbol{I}$ из (40) следует условие нормировки $\mathrm{Sp}_A\, \boldsymbol{\rho} = 1$.

Таким образом, для вычисления наблюдаемых системы A нет необходимости знать волновую функцию всей замкнутой системы (которая может зависеть от большого числа не интересующих нас переменных и содержать избыточную информацию), а достаточно определить лишь матрицу плотности системы A. Полагая,

что система B имеет большое число переменных и является термостатом, мы приходим к понятию квантового ансамбля Гиббса, в котором матрица плотности диагональна в энергетическом представлении:

$$\rho_{nn'} = \delta_{nn'} Z^{-1} \exp(-\beta \mathscr{E}_n), \tag{43}$$
$$Z \equiv \sum_n \exp(-\beta \mathscr{E}_n), \quad \beta \equiv 1/\varkappa T.$$

Итак, в случае смешанных состояний, описываемых матрицей плотности, наблюдаемые вычисляются по правилу (индекс A опускаем):

$$\langle f(t) \rangle = \mathrm{Sp}\,[f(t)\,\rho(t_0)] = \mathrm{Sp}\,[f_{\text{Ш}}(t)\,\rho(t)]. \tag{44}$$

В соответствии с определением статистический оператор (как и волновая функция) в представлении Шредингера зависит от времени, а в представлении Гейзенберга не зависит. Функция корреляции вместо (39) определяется теперь формулой

$$\langle f(t)\, g(t') \rangle = \mathrm{Sp}\,[f(t)\, g(t')\, \rho(t_0)]. \tag{45}$$

Матрицу плотности удобно использовать и для описания чистых состояний, при этом

$$\rho = \rho^k = |\rangle\langle|. \tag{46}$$

§ 2.3. Представление взаимодействия и теория возмущений

Пусть в гамильтониане системы можно выделить малую часть:

$$\mathscr{H} = \mathscr{H}_0 + \mathscr{V}, \qquad \mathscr{V} \ll \mathscr{H}_0. \tag{1}$$

Энергия возмущения $\mathscr{V}$ может быть, например, энергией взаимодействия слабо связанных подсистем — молекул в кристалле или электронов в металле; при этом $\mathscr{H}_0 = \sum \mathscr{H}_{0i}$ и $\mathscr{V}$ не зависит от времени. В другом типе задач $\mathscr{V}$ — дополнительная энергия системы во внешнем (т. е. заданном, классическом) поле, статическом или переменном. В последнем случае энергия системы не постоянна: $\mathscr{H} = \mathscr{H}(t)$.

Представление взаимодействия. При условии (1) удобно использовать представление взаимодействия (его называют также представлением Дирака), которое занимает промежуточное положение между представлениями Шредингера и Гейзенберга.

Определим сперва унитарный оператор «невозмущенной» эволюции:

$$\mathscr{U}_0 \equiv \exp[-i\mathscr{H}_0^{\text{Ш}} \cdot (t - t_0)/\hbar], \tag{2}$$

где t_0 — фиксированный момент времени. С помощью этого оператора определим операторы и вектор состояния системы в представлении взаимодействия (мы их будем отличать верхним индек-

сом «0») через шредингеровские величины $f^{\text{Ш}}(t)$, $|t\rangle$ следующим образом:

$$f^0(t) \equiv \mathcal{U}_0^+ f^{\text{Ш}}(t)\,\mathcal{U}_0, \qquad |t\rangle^0 \equiv \mathcal{U}_0^+ |t\rangle. \tag{3}$$

Это каноническое преобразование унитарно: $\mathcal{U}_0\mathcal{U}_0^+ = I$. Оператор $\mathcal{U}_0$ удовлетворяет уравнению

$$i\hbar\dot{\mathcal{U}}_0 = \mathcal{H}_0^{\text{Ш}}\mathcal{U}_0, \qquad \mathcal{U}_0(t_0) = I. \tag{3a}$$

С другой стороны, гейзенберговские операторы [1]) $f^{\Gamma}(t)$ и начальный вектор состояния $|t_0\rangle$ выражаются через шредингеровские операторы и векторы с помощью полного (точного) оператора эволюции:

$$f^{\Gamma}(t) = \mathcal{U}^+ f^{\text{Ш}}(t)\,\mathcal{U}, \qquad |t_0\rangle = \mathcal{U}^+ |t\rangle. \tag{4}$$

Оператор эволюции определен уравнением

$$i\hbar\dot{\mathcal{U}} = \mathcal{H}^{\text{Ш}}\mathcal{U}, \qquad \mathcal{U}(t_0) = I. \tag{4a}$$

Из сравнения (3) и (4) можно найти связь представлений Дирака и Гейзенберга:

$$f^0(t) = \mathcal{S}\, f^{\Gamma}(t)\,\mathcal{S}^+, \qquad |t\rangle^0 = \mathcal{S}\,|t_0\rangle, \tag{5}$$

где мы определили еще один унитарный оператор $\mathcal{S}$, называемый оператором рассеяния (при $t - t_0 = \infty$):

$$\mathcal{S} \equiv \mathcal{U}_0^+\mathcal{U}, \qquad i\hbar\dot{\mathcal{S}} = \mathcal{V}^0\mathcal{S}. \tag{5a}$$

Здесь энергия возмущения в представлении взаимодействия $\mathcal{V}^0$ определяется по правилу (3), а уравнение для $\mathcal{S}$ находится с помощью (3а) и (4а) следующим образом:

$$i\hbar\frac{d}{dt}\mathcal{U}_0^+\mathcal{U} = \mathcal{U}_0^+\mathcal{H}^{\text{Ш}}\mathcal{U} - \mathcal{H}^{\text{Ш}}\mathcal{U}_0^+\mathcal{U} = \mathcal{U}_0^+\mathcal{V}^{\text{Ш}}\mathcal{U}_0.$$

Сравнение (3) и (4) показывает, что гейзенберговские операторы в нулевом порядке теории возмущения (когда $\mathcal{V} = 0$, $\mathcal{U} = \mathcal{U}_0$, $\mathcal{S} = I$) совпадают с дираковскими:

$$f^{\Gamma}(t) = f^0(t) + f^1(t) + \ldots$$

Дифференцируя (3), найдем с помощью (3а) уравнения движения для операторов и векторов состояния в представлении взаимодействия:

$$\frac{df^0}{dt} = \frac{\partial f^0}{\partial t} + \frac{1}{i\hbar}[f^0, \mathcal{H}_0^{\text{Ш}}], \tag{6}$$

$$\frac{d|t\rangle^0}{dt} = \frac{1}{i\hbar}\mathcal{V}^0|t\rangle^0. \tag{7}$$

---

[1]) Мы иногда будем отмечать операторы в представлении Гейзенберга индексом «Г».

Отсюда легко найти и уравнение для матрицы плотности (2.2.42) в представлении взаимодействия:

$$\frac{d\rho^0}{dt} = -\frac{1}{i\hbar}[\rho^0, \mathcal{V}^0]. \tag{8}$$

Таким образом, в представлении взаимодействия операторы зависят от времени «тривиально», без учета возмущения, которое влияет лишь на движение векторов.

Другие представления. Можно, наоборот, перенести тривиальную зависимость от времени на вектор состояния. Такое представление образуется из шредингеровского с помощью унитарного оператора

$$\mathcal{R} \equiv \mathcal{U}\mathcal{U}_0^+ = \mathcal{U}_0\mathcal{S}\mathcal{U}_0^+. \tag{9}$$

Аналогично (3) или (4) имеем

$$\begin{aligned} f' &\equiv \mathcal{R}^+ f^{\text{Ш}} \mathcal{R} = \mathcal{U}_0 f^{\text{Г}} \mathcal{U}_0^+, \\ |t\rangle' &\equiv \mathcal{R}^+ |t\rangle = \mathcal{U}_0 |t_0\rangle, \\ \frac{df'}{dt} &= \frac{\partial f'}{\partial t} + \frac{1}{i\hbar}[f', \mathcal{H}' - \mathcal{H}_0^{\text{Ш}}], \\ i\hbar \frac{d|t\rangle'}{dt} &= \mathcal{H}_0^{\text{Ш}} |t\rangle'. \end{aligned} \tag{10}$$

Иногда удобно использовать представление «медленно-меняющихся амплитуд» ($\mathcal{Q} \equiv \mathcal{S}^+\mathcal{U}_0\mathcal{S}$):

$$\begin{aligned} f^{\text{М}} &\equiv \mathcal{S}^+ f^{\text{Ш}} \mathcal{S} = \mathcal{Q} f^{\text{Г}} \mathcal{Q}^+, \\ |t\rangle^{\text{М}} &\equiv \mathcal{S}^+ |t\rangle = \mathcal{Q} |t_0\rangle, \\ \frac{df^{\text{М}}}{dt} &= \frac{\partial f^{\text{М}}}{\partial t} + \frac{1}{i\hbar}[f^{\text{М}}, \mathcal{V}^{\text{Г}}]. \end{aligned} \tag{11}$$

Итак, динамику квантовой системы можно описывать в различных эквивалентных представлениях, связанных унитарными преобразованиями:

$$f^{\text{Ш}} = \mathcal{U} f^{\text{Г}} \mathcal{U}^+ = \mathcal{U}_0 f^0 \mathcal{U}_0^+ = \mathcal{R} f' \mathcal{R}^+ = \mathcal{S} f^{\text{М}} \mathcal{S}^+, \tag{12}$$

$$|t\rangle = \mathcal{U}|t_0\rangle = \mathcal{U}_0|t\rangle^0 = \mathcal{R}|t\rangle' = \mathcal{S}|t\rangle^{\text{М}}. \tag{13}$$

В § 3.3 эти преобразования будут рассмотрены на простом примере линейного осциллятора, возбуждаемого классической переменной силой.

Напомним, что при смене представления векторные и тензорные равенства типа $|\varphi\rangle = f|\psi\rangle$, $f = gh$ сохраняют свой вид, и поэтому в них можно не писать индексы представлений (это не относится к равенствам между операторами, взятыми в различные моменты времени или содержащими производные по времени от операторов). Унитарные преобразования сохраняют также и ска-

лярные величины, например, «длины» векторов, матричные элементы и шпуры тензоров.

Заметим, что оператор $\mathcal{H}_0$ коммутирует с $\mathcal{U}_0$, и поэтому

$$\mathcal{H}_0^0 = \mathcal{H}_0^{\text{Ш}}, \quad \mathcal{H}_0^{\text{м}} = \mathcal{H}_0^{\text{Г}} = \mathcal{U}_0^+ \mathcal{H}_0' \mathcal{U}_0; \tag{14}$$

операторы $\mathcal{U}_0$, $\mathcal{U}$ определены через шредингеровские операторы $\mathcal{H}_0^{\text{Ш}}$ и $\mathcal{H}^{\text{Ш}}$.

Теория возмущений для оператора рассеяния. Будем искать оператор $\mathcal{S}$ с помощью теории возмущений:

$$\mathcal{S} = \sum_{m=0}^{\infty} \mathcal{S}^{(m)}, \qquad \mathcal{S}^{(m)} \sim \mathcal{V}^m. \tag{15}$$

Подстановка этого ряда в (5а) дает

$$i\hbar \dot{\mathcal{S}}^{(m)} = \mathcal{V}^0 \mathcal{S}^{(m-1)}, \tag{16}$$

так что при $m \geqslant 1$

$$\mathcal{S}^{(m)}(t) = (i\hbar)^{-m} \int_{t_0}^{t} dt_1 \ldots \int_{t_0}^{t_{m-1}} dt_m \, \mathcal{V}^0(t_1) \ldots \mathcal{V}^0(t_m). \tag{17}$$

Обозначим

$$\mathcal{V}^0(t_k) \equiv \mathcal{V}_k, \quad \theta(x > 0) = 1, \quad \theta(x < 0) = 0, \quad \theta(t_m - t_k) \equiv \theta_{mk},$$

тогда

$$\begin{aligned} \mathcal{S}^{(m)} &= (i\hbar)^{-m} \int_{t_0}^{t} dt_1 \ldots dt_m \, \theta_{12} \ldots \theta_{m-1,\, m} \mathcal{V}_1 \ldots \mathcal{V}_m, \\ \mathcal{S}^{(m)+} &= (-i\hbar)^{-m} \int_{t_0}^{t} dt_1 \ldots dt_m \, \theta_{21} \ldots \theta_{m,\, m-1} \mathcal{V}_1 \ldots \mathcal{V}_m \end{aligned} \tag{18}$$

(в последнем равенстве (18) мы сделали перестановку (t_1, t_m), (t_2, t_{m-1}), ...). Можно убедиться, что (18) удовлетворяет условиям унитарности оператора $\mathcal{S}$:

$$\mathcal{S}^{(1)} + \mathcal{S}^{(1)+} = 0, \quad \mathcal{S}^{(2)} + \mathcal{S}^{(2)+} - \mathcal{S}^{(1)2} = 0, \ldots \tag{19}$$

Формула (18) дает алгоритм для определения действия возмущения на наблюдаемые величины. Например, подставив (18) в (5), мы выразим произвольный оператор в представлении Гейзенберга через невозмущенные операторы системы:

$$f^{(m)}(t) = \sum_{p=0}^{\infty} f_p^{(m)}, \tag{20}$$

$$\begin{aligned} f_p^{(m)} = \mathcal{S}^{(p)+} f^0 \mathcal{S}^{(m-p)} = (-1)^p (i\hbar)^{-m} \int_{t_0}^{t} dt_1 \ldots \int_{t_0}^{t} dt_m \, \times \\ \times \theta_{21} \ldots \theta_{p,\, p-1} \theta_{p+1,\, p+2} \ldots \theta_{m-1,\, m} \mathcal{V}_1 \ldots \mathcal{V}_p f^0(t) \mathcal{V}_{p+1} \ldots \mathcal{V}_m. \end{aligned} \tag{21}$$

Можно показать, что это выражение эквивалентно следующему:

$$f^{(m)}(t) = (i\hbar)^{-m} \int_{t_0}^{t} dt_1 \ldots \int_{t_0}^{t_{m-1}} dt_m [\ldots [f^0(t), \mathscr{V}_1], \ldots, \mathscr{V}_m]. \quad (22)$$

Формула (20) удобнее для вычислений второго и более высоких порядков теории возмущений, так как она содержит $m+1$ слагаемых (вместо 2^m в многократном коммутаторе в (22)).

До сих пор мы нигде не использовали условия $t > t_0$. Уравнения движения предсказывают как настоящее по прошлому, так и прошлое по настоящему. Но обычно предполагается, что $t > t_0$ и что до начального момента t_0 возмущение отсутствовало. Удобно полагать, что $t_0 = -\infty$ и что возмущение плавно («адиабатически») включается,— например, по экспоненциальному закону:

$$\mathscr{V}(t) \to \lim_{\varepsilon \to +0} e^{\varepsilon t} \mathscr{V}(t). \quad (23)$$

Вероятность перехода. Важным понятием квантовой механики является вероятность перехода. Рассмотрим сперва замкнутую систему, в которой $\mathscr{V}$ — энергия взаимодействия между ее частями. Пусть $|n\rangle \equiv \psi_n(t_0)$ — собственные невырожденные состояния невозмущенного гамильтониана: $(\mathscr{H}_0 - \mathscr{E}_n)|n\rangle = 0$ и пусть при $t = t_0$ система находилась в одном из этих состояний: $|t_0\rangle = |n_0\rangle$. Заметим, что так как $|n\rangle$ — не точные энергетические состояния, то тем самым мы предполагаем, что энергия всей системы не имеет определенного значения, т. е. флуктуирует (вообще для замкнутой системы обязана сохраняться лишь средняя энергия $\langle\mathscr{H}\rangle$, а дисперсия $\langle\mathscr{H}^2\rangle - \langle\mathscr{H}\rangle^2$ может быть и не равна нулю).

В момент t состояние системы согласно (4) будет

$$|t\rangle = \mathscr{U}_0 \mathscr{S} |t_0\rangle = \sum_n |n, t\rangle^0 \langle n|\mathscr{S}|n_0\rangle, \quad |n, t\rangle^0 \equiv \mathscr{U}_0 |n\rangle. \quad (24)$$

Согласно этой формуле матричные элементы оператора рассеяния $\mathscr{S}$ (составляющие *матрицу рассеяния*) определяют, с каким весом в состоянии системы $|t\rangle$ представлены энергетические состояния $|n\rangle$ (в представлении взаимодействия, т. е. с учетом невозмущенной эволюции). Квадрат модуля элемента матрицы рассеяния $\mathscr{S}_{nn_0}$ равен вероятности P_{nn_0} того, что невозмущенная энергия системы в момент t равна $\mathscr{E}_n$, или, как говорят, вероятности перехода за время $t - t_0$ с уровня n_0 на уровень n:

$$P_{nn_0} \equiv |\mathscr{S}_{nn_0}|^2 = |\langle t|n, t\rangle^0|^2 = |\langle n|t\rangle^0|^2. \quad (25)$$

Согласно последнему равенству можно сказать, что вероятность перехода есть среднее значение оператора населенности (2.2.26). Подчеркнем, что речь идет об условной вероятности, так что в более подробных обозначениях $P_{nn_0} \equiv P(n, t \mid n_0, t_0)$.

В случае незамкнутой системы, когда $\mathscr{V}$ — энергия ее взаимодействия с заданной силой и средняя энергия $\langle\mathscr{H}\rangle$ не постоянна, говорят о вероятности *вынужденного* перехода. Заметим, что такой подход имеет смысл в случаях, когда по каким-либо соображениям можно пренебречь обратным влиянием исследуемой системы на источник силы.

Обычно при вычислении вероятности перехода приходится прибегать к теории возмущения:

$$P_n = \sum_{m=0}^{\infty} P_{nk}^{(m)} = (\delta_{kn} + \mathscr{S}_{kn}^{(1)+} + \mathscr{S}_{kn}^{(2)+} + \ldots)(\delta_{nk} + \mathscr{S}_{nk}^{(1)} + \mathscr{S}_{nk}^{(2)} + \ldots). \tag{26}$$

В § 5.3 мы увидим, что возможна ситуация, когда высшие порядки теории возмущения компенсируют низшие:

$$P^{(2)} + P^{(3)} + P^{(4)} = 0. \tag{27}$$

Здесь $P^{(2)}$ может быть вероятностью однофотонного вынужденного перехода, $P^{(4)}$ — двухфотонного, а $P^{(3)}$ — интерференционный член, пропорциональный кубу вынуждающего поля.

При $t - t_0 = \infty$ из (18) в случае замкнутой ($\mathscr{V}^{\text{Ш}}(t) = \text{const}$) системы следует

$$\mathscr{S}_{nn_0}^{(m)} = (i\hbar)^{-m} \int_{-\infty}^{\infty} dt_m \ldots \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \sum_{n_1\ldots n_{m-1}} \mathscr{V}_{nn_{m-1}} \ldots \mathscr{V}_{n_1 n_0} \times$$
$$\times \exp(i\omega_{nn_{m-1}} t_m + \ldots i\omega_{n_1 n_0} t_1) = -i2\pi\delta(\mathscr{E}_n - \mathscr{E}_{n_0}) T_{nn_0}^{(m)}, \tag{28}$$

где

$$T_{nn_0}^{(m)} \equiv \sum_{n_1\ldots n_m} \frac{\langle n \mid \mathscr{V} \mid n_{m-1}\rangle \ldots \langle n_1 \mid \mathscr{V} \mid n_0\rangle}{\hbar^{m-1}(\omega_{n_0 n_{m-1}} + i\varepsilon)\ldots(\omega_{n_0 n_1} + i\varepsilon)} \tag{29}$$

и мы использовали формулу

$$\lim_{t\to\infty} \int_{-t}^{t} dt'\, e^{i\omega t'} = 2\pi\,\delta(\omega). \tag{30}$$

Согласно (28) матрица рассеяния диагональна по энергии, т. е. переходы возможны лишь между вырожденными состояниями с одинаковой энергией.

Скорость перехода. Определим также вероятность перехода в единицу времени, т. е. скорость перехода, которая при некоторых условиях не зависит от времени:

$$W_{nk} \equiv \frac{d}{dt} P_{nk}. \tag{31}$$

Из (25) и (28) следует

$$W_{nk} = 2\pi\hbar^{-2}\delta(\omega_{nk}) \mid T_{nk} \mid^2, \tag{32}$$

где мы воспользовались следующим из (30) правилом:

$$[\delta(\omega)]^2 = (t - t_0)\,\delta(\omega)/2\pi. \tag{33}$$

Формула (32), содержащая δ-функцию, имеет смысл лишь при ее последующем интегрировании по непрерывному множеству вырожденных конечных (и/или начальных) состояний $|n\rangle$. При этом δ-функция переходит в число этих состояний, приходящихся на единичный интервал частоты $dg/d\omega$ (так называемая *плотность состояний*), и формулу (32) называют «золотым правилом Ферми».

§ 2.4. Флуктуационно-диссипативные теоремы (ФДТ)

До сих пор речь шла о замкнутых системах или о системах, на которые действует классическая детерминированная сила. Более реалистичными часто оказываются «открытые» модели, в которых выделяется подсистема с небольшим числом степеней свободы, взаимодействующая с термостатом, имеющим бесконечное число степеней свободы и непрерывный энергетический спектр. В простейшем случае предполагается, что система и термостат находятся в термодинамическом равновесии (нулевое приближение по детерминированной силе), и ставится задача о вычислении равновесных моментов параметров системы.

Линейная ФДТ является по существу обобщением теоремы Найквиста, произведенным в основном в работах Каллена, Вельтона и Кубо. Она связывает флуктуации $\langle f^2\rangle$ внутренних параметров равновесной системы с ее линейной восприимчивостью $\chi^{(1)}$ по отношению к слабой силе (которая предполагается заданной и классической). ФДТ, таким образом, связывает статистические и кинетические характеристики системы и является одной из наиболее общих теорем неравновесной термодинамики. В литературе (см., например, [143, 144]) [1]) линейная ФДТ и смежные вопросы (симметрия и аналитические свойства $\chi^{(1)}$, правила сумм и т. д.) освещены достаточно подробно, и мы здесь приведем лишь ее краткий вывод и попутно введем некоторые обозначения и названия, необходимые для дальнейшего.

Меньше исследованы связи между высшими моментами $\langle f^3\rangle$, $\langle f^4\rangle$ и квадратичной и кубической восприимчивостями $\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$. Лишь сравнительно недавно Ефремов [148] и в более полной форме Стратонович [149], вывели «трехиндексную» или «квадратичную» ФДТ, которую мы приведем ниже. В [149] получен ряд связей между четырехиндексными величинами и показано, что $\langle f^4\rangle$ в общем случае не выражается через $\chi^{(3)}$.

Ранее Файн и Ящин [145] (см. также [146, 147]) при рассмотрении комбинационного рассеяния света получили связь между

[1]) См. также работы [183, 189], посвященные обобщению ФДТ на неравновесные системы.

$\langle f^2 \rangle$ и $\chi^{(3)}$ в неравновесной системе, возбуждаемой классической накачкой при условии, что ее частота ω_L и комбинационные частоты $\omega_L + \omega_{nm}$ лежат в окнах прозрачности системы. Это и аналогичные соотношения, которые можно назвать «приближенными кубическими» ФДТ, также будут рассмотрены ниже.

Следует отметить, что использование ФДТ (как линейной, так и нелинейной) для определения спектра теплового излучения при учете оптического ангармонизма вещества требует некоторой осторожности (гл. 5).

Линейная ФДТ. Пусть энергию возмущения можно представить в билинейном виде:

$$\mathscr{V} = -\sum_j f_j F_j(t) \equiv -\boldsymbol{f}\cdot\boldsymbol{F}, \tag{1}$$

где f_j — операторы системы (например, дипольный момент j-й молекулы образца) и F_j — обобщенные силы (электрическое поле в центре j-й молекулы).

Согласно (2.3.22) произвольный одновременный гейзенберговский оператор в линейном приближении по F выражается через невозмущенные операторы системы следующим образом:

$$f_i^{(1)}(t) = \frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt' \,[f_i^0(t),\ f_j^0(t')]\, F_j(t'). \tag{2}$$

Пусть наблюдаемой величиной является среднее значение (см. (2.2.44)) $\langle f_i^{(1)}(t)\rangle = \mathrm{Sp}\,\{f_i^{(1)}(t)\,\rho(t_0)\}$, определяемое через начальную (до включения силы) матрицу плотности, которая в представлении Гейзенберга не зависит от t. Если начальное состояние системы было равновесным, то $\rho(t_0)$ определяется формулой (2.2.43) с единственным параметром — температурой. Соотношение (2) после усреднения определяет матрицу линейной восприимчивости системы:

$$\langle \boldsymbol{f}^{(1)}(t)\rangle = \int dt' \,\boldsymbol{\chi}(t, t')\cdot\boldsymbol{F}(t'), \tag{3}$$

$$\chi_{ij}(t_1, t_2) \equiv \frac{i}{\hbar}\,\theta(t_1 - t_2)\,\langle [f_i(t_1),\ f_j(t_2)]\rangle, \tag{4}$$

$$\theta(x > 0) = \lim_{\varepsilon\to+0} e^{-\varepsilon x}, \quad \theta(x < 0) = 0.$$

Мы здесь дополнительно постулируем бесконечно малое затухание ($\varepsilon = +0$) коммутатора гейзенберговских операторов для достаточно удаленных моментов времени. Это предположение, повидимому, эквивалентно гипотезе о затухании корреляций или условию адиабатичности включения взаимодействия (2.3.23), и оно представляется естественным следствием релаксации, т. е. неучитываемого явно взаимодействия с термостатом. Ступенчатая функ-

ция $\theta(t_2 - t_1)$ обеспечивает причинность — будущие значения силы (при $t_2 > t_1$) не влияют на наблюдаемую величину. Заметим, что в (4) опущены индексы представления взаимодействия, так как шпур инвариантен по отношению к унитарным преобразованиям.

Как будет показано ниже, средние по равновесному состоянию зависят лишь от разностей временных аргументов, поэтому $\chi(t_1, t_2) = \chi(t_1 - t_2, 0) \equiv \chi(t_1 - t_2)$. Введем функцию взаимной корреляции параметров f_i и f_j невозмущенной системы

$$\varphi_{ij}(t) \equiv \langle f_i(t_1) f_j(t_1 - t)\rangle = \langle f_i(0) f_j(-t)\rangle = \langle f_i(t) f_j(0)\rangle. \quad (5)$$

Фурье-образ этой функции определяет спектр взаимных флуктуаций f_i и f_j. Набор всех функций $\varphi_{ij}(t)$ образует матрицу вторых моментов системы: $\boldsymbol{\varphi}(t) = \langle \boldsymbol{f}(t) \boldsymbol{f}(0)\rangle$. Если $f_i(t)$ и $f_j(0)$ не коммутируют для каких-то i, j и t, то матрица моментов несимметрична:

$$\langle [f_i(t), f_j(0)]\rangle \equiv \Phi_{ij}(t) \neq 0,$$

или $\boldsymbol{\Phi}(t) = \boldsymbol{\varphi}(t) - \tilde{\boldsymbol{\varphi}}(-t) \neq 0$, где $\tilde{\varphi}_{ij} \equiv \varphi_{ji}$. Образуем из функции $\boldsymbol{\varphi}(t)$ две «усеченные» функции, отличные от нуля лишь при положительных аргументах:

$$\boldsymbol{\varphi}^{(\pm)}(t) \equiv \theta(t)\, \boldsymbol{\varphi}(\pm t). \quad (6)$$

В этих обозначениях (4) принимает вид

$$-i\hbar\boldsymbol{\chi} = \boldsymbol{\varphi}^{(+)} - \tilde{\boldsymbol{\varphi}}^{(-)} = \theta\boldsymbol{\Phi}. \quad (7)$$

Восприимчивость $\boldsymbol{\chi}$ называют также запаздывающей функцией Грина, а функцию $\tilde{\boldsymbol{\chi}}(-t)$ — опережающей функцией Грина. Иногда используют еще причинную функцию Грина, равную $\{\boldsymbol{\varphi}^{(+)}(t) + \tilde{\boldsymbol{\varphi}}^{(-)}(-t)\}/i\hbar$.

Формула (7) выражает $\boldsymbol{\chi}$ через усеченные функции корреляции, а мы хотим выразить полную функцию корреляции через $\boldsymbol{\chi}$. Прежде всего, избавимся от θ-функции. Для этого вычтем из матричного равенства (7) транспонированное равенство при обратном знаке времени:

$$-i\hbar\{\boldsymbol{\chi}(t) - \tilde{\boldsymbol{\chi}}(-t)\} = \boldsymbol{\Phi}(t). \quad (8)$$

Далее, в равновесной системе существует однозначная связь между $\boldsymbol{\varphi}$ и $\tilde{\boldsymbol{\varphi}}$ и, следовательно, между $\boldsymbol{\varphi}$ и $\boldsymbol{\Phi}$. Чтобы ее найти, распишем с помощью (2.2.35) функцию корреляции в энергетическом представлении:

$$\langle f_1(t_1) f_2(t_2)\rangle = \\ = Z^{-1} \sum_{nm} f_{1nm} f_{2mn} \exp\{i\mathscr{E}_n(t_1 - t_2 + i\beta) + i\mathscr{E}_m(t_2 - t_1)\}, \quad (9)$$

где $\beta \equiv 1/\varkappa T$ и $\hbar = 1$. Отсюда следует, что все равновесные моменты стационарны (т. е. зависят лишь от разностей временных аргументов). Положив в (9) $t_1 = t$, $t_2 = 0$, найдем

$$\varphi_{12}(t) = Z^{-1} \sum_{nm} f_{1nm} f_{2mn} \exp\{i\mathscr{E}_n(t + i\beta) - i\mathscr{E}_m t\}. \tag{10}$$

Отсюда при переставленных индексах n, m следует

$$\varphi_{21}(t) = Z^{-1} \sum_{nm} f_{1nm} f_{2mn} \exp\{i\mathscr{E}_m(t + i\beta) - i\mathscr{E}_n t\}. \tag{11}$$

Сравнивая (10) и (11), видим, что если расширить область определения функции $\varphi(t)$ на комплексную плоскость, то

$$\varphi(-t) = \tilde{\varphi}(t - i\beta). \tag{12}$$

Введем оператор сдвига во времени

$$\begin{gathered} \hat{R}(\tau) \equiv e^{\tau \frac{\partial}{\partial t}} = 1 + \tau \frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{2} \tau^2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \ldots, \\ \hat{R}(\tau) e^{i\omega t} = e^{i\omega(t+\tau)}, \quad \hat{R}(\tau) f(t) = f(t + \tau); \end{gathered} \tag{13}$$

тогда (12) примет форму

$$\varphi(-t) = \hat{\mathscr{R}} \tilde{\varphi}(t), \qquad \hat{\mathscr{R}} \equiv \hat{R}(-i\beta) = e^{-i\beta\partial/\partial t}. \tag{14}$$

Таким образом, оператор $\hat{\mathscr{R}}_n = \exp(-i\beta\partial/\partial t_n)$ переставляет гейзенберговы операторы под знаком среднего в равновесной системе:

$$\hat{\mathscr{R}}_1 \langle f(t_1)\, g(t_2)\rangle = \langle g(t_2)\, f(t_1)\rangle, \tag{15}$$

$$\langle [f(t_1),\ g(t_2)]\rangle = (1 - \mathscr{R}_1) \langle f(t_1)\, g(t_2)\rangle. \tag{16}$$

Вводя обратный оператор, можно выразить функцию корреляции двух величин через среднее от их коммутатора:

$$\langle f(t_1)\, g(t_2)\rangle = (1 - \hat{\mathscr{R}}_1)^{-1} \langle [f(t_1),\ g(t_2)]\rangle, \tag{17}$$

$$\varphi(t) = (1 - \hat{\mathscr{R}})^{-1} \Phi(t). \tag{18}$$

Подставляя сюда (8), находим ФДТ во временной форме:

$$\varphi(t) = i\hbar\, (\hat{\mathscr{R}} - 1)^{-1} \{\chi(t) - \tilde{\chi}(-t)\}. \tag{19}$$

Заметим, что согласно определению (13)

$$(\hat{\mathscr{R}} - 1)^{-1} e^{i\omega t} = \mathscr{N}(\omega)\, e^{i\omega t}, \tag{20}$$

$$\mathscr{N}(\omega) \equiv (e^{\beta\omega} - 1)^{-1} = -[\mathscr{N}(-\omega) + 1] = \frac{1}{2}\left[\operatorname{cth}\frac{\beta\omega}{2} - 1\right]. \tag{21}$$

Функция $\mathscr{N}(\omega)$ называется функцией Планка или фактором вырождения фотонов с энергией $\hbar\omega$. Обычно ФДТ формулируют для симметризованной функции корреляции $(\varphi + \tilde{\varphi})/2$, однако в оп-

тике наблюдаются несимметричные нормально-упорядоченные величины (§ 4.3).

Спектральная форма. Перейдем к фурье-образам введенных выше функций:

$$f(\omega) \equiv \frac{1}{2\pi}\int dt e^{i\omega t} f(t), \quad \chi(\omega) \equiv \int dt e^{i\omega t}\chi(t),$$
$$\tilde{\theta}(\omega) \equiv \frac{1}{2\pi}\int_0^\infty dt\, e^{i\omega t - \varepsilon t} = -\frac{1}{2\pi(i\omega - \varepsilon)} = \frac{\delta(\omega)}{2} + \frac{i\mathcal{P}}{2\pi\omega}, \tag{22}$$

где $\mathcal{P}$ означает главное значение интеграла; отметим, что

$$\tilde{\theta}(-\omega) = \tilde{\theta}^*(\omega), \quad \tilde{\theta}(\omega) + \tilde{\theta}^*(\omega) = \delta(\omega). \tag{23}$$

Функция $\varphi(\omega)$ называется *спектральной функцией*. Перепишем приведенные выше соотношения в спектральной форме:

$$\langle f(\omega)\rangle^{(1)} = \chi(\omega)\cdot F(\omega), \tag{3a}$$

$$\varphi^{(\pm)}(\omega) = \int d\omega' \tilde{\theta}(\omega \mp \omega')\varphi(\omega') = \frac{i}{2\pi}\int d\omega' \frac{\varphi(+\omega')}{\omega - \omega' + i\varepsilon}, \tag{6a}$$

$$\chi(\omega) = \frac{2\pi i}{\hbar}\int d\omega' \tilde{\theta}(\omega - \omega')\Phi(\omega') = \frac{1}{\hbar}\int d\omega' \frac{\Phi(\omega')}{\omega' - \omega} + i\frac{\pi}{\hbar}\Phi(\omega), \tag{7a}$$

$$\varphi_{12}(\omega) = \sum_{mn} \rho_n f_{1nm} f_{2mn}\delta(\omega + \omega_{nm}), \tag{10a}$$

$$\varphi(\omega) = e^{-\beta\omega}\tilde{\varphi}(-\omega) = -\mathcal{N}(-\omega)\Phi(\omega) = \tag{18a}$$

$$= \frac{i\hbar}{2\pi}\mathcal{N}(-\omega)\{\chi(\omega) - \tilde{\chi}(-\omega)\} \tag{19a}$$

(здесь $\rho_n \equiv Z^{-1}\exp(-\mathscr{E}_n/\varkappa T)$ — относительные населенности). Последняя формула является ФДТ в спектральной форме. В более подробной записи она имеет вид

$$\langle f_i(\omega) f_j(\omega')\rangle = \frac{i\hbar}{2\pi}\delta(\omega + \omega')\mathcal{N}(\omega')\{\chi_{ij}(\omega) - \chi_{ji}(\omega')\}. \tag{24}$$

Перепишем также более подробно формулу (18а), связывающую моменты и коммутаторы в равновесной системе:

$$\langle f(\omega)\, g(\omega')\rangle = -\mathcal{N}(\omega')\langle[f(\omega),\ g(\omega')]\rangle. \tag{25}$$

Надо отметить, что вывод линейной ФДТ сразу в спектральной форме проще [143, 144], однако временной формализм, по-видимому, компактнее при выводе квадратичной ФДТ.

Симметрия моментов и восприимчивостей. Рассмотрим симметрию функций f, φ, χ по отношению к изменению знака их аргументов — времени или частоты. Пусть операторы f_j — вещественные или чисто мнимые:

$$f_j^* = \pm f_j = s f_j; \tag{26}$$

например, если f_1 и f_2 — координата и скорость частицы, то $s_1 = +1$ и $s_2 = -1$. Волновые функции замкнутой ориентированной системы обладают следующим свойством: $\psi_n^*(-\boldsymbol{B}) = \psi_n(\boldsymbol{B})$ ([143], с. 462), так что

$$f_{jnm}(\boldsymbol{B}) = s_j f_{jnm}^*(-\boldsymbol{B}), \tag{27}$$

где $\boldsymbol{B}$ — внешнее постоянное магнитное поле. Из (27), (10) и (7) следует

$$\varphi_{12}(t, \boldsymbol{B}) = s_1 s_2 \varphi_{12}^*(-t, -\boldsymbol{B}) \equiv \overline{\varphi}_{12}(t, \boldsymbol{B}), \tag{28}$$

$$\chi_{12}(t, \boldsymbol{B}) = s_1 s_2 \chi_{21}^*(t, -\boldsymbol{B}). \tag{29}$$

Отсюда при учете определений фурье-образов (22) находим

$$\varphi_{12}(\omega, \boldsymbol{B}) = s_1 s_2 \varphi_{12}^*(\omega, -\boldsymbol{B}), \tag{30}$$

$$\chi_{12}(\omega, \boldsymbol{B}) = s_1 s_2 \chi_{21}^*(-\omega, -\boldsymbol{B}). \tag{31}$$

Эрмитовость операторов f_i приведет к дальнейшим ограничениям:

$$\boldsymbol{f}(\omega) = \boldsymbol{f}^+(-\omega), \quad \varphi(t) = \widetilde{\varphi}^*(-t), \quad \chi(t) = \chi^*(t). \tag{32}$$

Формулы (29), (31) выражают принцип симметрии Онсагера.

Аналогичной симметрией обладают, как нетрудно убедиться, и высшие (неусеченные) моменты:

$$\varphi_{1\ldots N} \equiv \langle f_1(t_1)\ldots f_N(t_N)\rangle_{\boldsymbol{B}}^{\mathrm{T}} = \overline{\varphi}_{1\ldots N} \equiv \pm\langle f_1(-t_1)\ldots f_N(-t_N)\rangle_{-\boldsymbol{B}}^*. \tag{33}$$

Квадратичная ФДТ. Во втором порядке теории возмущений из (1) и (2.3.22) следует

$$f_3^{(2)} = -\frac{1}{\hbar^2}\int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \sum_{j_1 j_2} [[f_3^0, f_2^0], f_1^0]\, F_2 F_1, \tag{34}$$

$$f_n \equiv f_{j_n}(t_n), \quad F_n \equiv F_{j_n}(t_n).$$

Отсюда определяем квадратичную восприимчивость:

$$\langle f_3^{(2)}\rangle = \int dt_2\, dt_1 \sum_{j_1 j_2} \chi_{321} F_2 F_1, \tag{35}$$

$$\chi_{321} \equiv -\frac{1}{\hbar^2}\theta_{32}\theta_{21}\Phi_{321}, \tag{36}$$

$$\Phi_{321} \equiv \langle[[f_3, f_2], f_1]\rangle = \varphi_{321} - \varphi_{231} - \varphi_{132} + \varphi_{123}, \tag{37}$$

$$\varphi_{321} \equiv \langle f_3 f_2 f_1\rangle, \ \theta_{21} \equiv \theta(t_{21}), \ t_{21} \equiv t_2 - t_1. \tag{38}$$

Здесь χ_{321} является тензором третьего ранга, каждая из 27 компонент которого есть функция двух независимых аргументов:

$$\chi_{321} \equiv \chi_{j_3 j_2 j_1}(t_3, t_2, t_1) = \chi_{j_3 j_2 j_1}(t_{31}, t_{21}, 0). \tag{39}$$

В правой части (35) можно поменять обозначения индексов суммирования и переменных интегрирования (1, 2) (т. е. $j_1, t_1 \leftrightarrow j_2, t_2$) и переставить местами F_2 и F_1 (так как F_j — не операторы), так что $\chi_{321} = \chi_{312}$ и можно симметризовать определение χ:

$$\chi_{321} = \frac{1}{2!}(\chi_{321} + \chi_{312}) = -\frac{1}{2\hbar^2}(\theta_{32}\theta_{21}\Phi_{321} + \theta_{31}\theta_{12}\Phi_{312}). \qquad (40)$$

Эта формула выражает квадратичную восприимчивость через «усеченные» или «причинные» части коммутационных функций Φ, которые в свою очередь являются комбинациями из четырех «усеченных» моментов третьего порядка φ (двухвременных корреляционных функций). Задача состоит в том, чтобы «обернуть» равенство (40) и выразить φ через χ. Сперва выразим φ через Φ. Из определения (37) следует

$$\Phi_{321} + \Phi_{231} = 0, \quad \Phi_{321} + \Phi_{213} + \Phi_{132} = 0; \qquad (41)$$

перестановка индексов в (41) даст еще два независимых уравнения, так что из шести величин Φ_{klm} только две являются независимыми. Условие равновесности аналогично (15) дает

$$\hat{\mathcal{R}}_1\varphi_{123} = \varphi_{231}, \qquad (42)$$

$$\hat{\mathcal{R}}_n \equiv \exp\left(-\frac{i\hbar}{\varkappa T}\frac{\partial}{\partial t_n}\right), \quad \hat{\mathcal{R}}_1\hat{\mathcal{R}}_2\hat{\mathcal{R}}_3 = 1.$$

После ряда преобразований (подробнее см. [149]) находим

$$\varphi_{321} = \hat{\mathcal{N}}_3(\hat{\mathcal{N}}_2\Phi_{132} + \hat{\mathcal{N}}_{\bar{1}}\Phi_{321}), \qquad (43)$$

$$\hat{\mathcal{N}}_{\pm n} \equiv (\hat{\mathcal{R}}^{\pm 1} - 1)^{-1}, \qquad \bar{n} \equiv -n.$$

Далее с помощью (41) и (33) [1]) можно показать, что из (40) следует

$$\Phi_{321} = -2\hbar^2(\chi_{321} - \chi_{231} + \text{в. с.}), \qquad (44)$$

где «в. с.» означает операцию «временного сопряжения» согласно (33): $\chi + \text{в. с.} \equiv \chi + \bar{\chi}$. Объединяя (43) и (44), получаем квадратичную ФДТ во временной форме:

$$\varphi_{321} = -2\hbar^2[\hat{\mathcal{N}}_{\bar{1}}\hat{\mathcal{N}}_{\bar{2}}(\chi_{321} + \text{в. с.}) + \hat{\mathcal{N}}_2\hat{\mathcal{N}}_3(\chi_{123} + \text{в. с.}) - \\ - \hat{\mathcal{N}}_{\bar{1}}\hat{\mathcal{N}}_3(\chi_{213} + \text{в. с.})] = -2\hbar^2\hat{\mathcal{N}}_3[\hat{\mathcal{N}}_{\bar{1}}(\chi_{321} - \chi_{231} + \text{в. с.}) + \\ + \hat{\mathcal{N}}_2(\chi_{132} - \chi_{312} + \text{в. с.})]. \qquad (45)$$

Перейдем к спектральному представлению. Определим следующие функции ($\chi_{321}^{(\omega)} \equiv \chi_{j_3j_2j_1}(\omega_3\omega_2\omega_1)$):

$$\chi_{321}^{(\omega)} \equiv [2\pi\delta(\omega_3 + \omega_2 + \omega_1)]^{-1}\int dt_3\,dt_2\,dt_1\,e^{i(\omega_3t_3+\omega_2t_2+\omega_1t_1)}\chi_{321}, \\ \varphi_{321}^{(\omega)} \equiv [8\pi^3\delta(\omega_3 + \omega_2 + \omega_1)]^{-1}\int dt_3\,dt_2\,dt_1\,e^{i(\omega_3t_3+\omega_2t_2+\omega_1t_1)}\varphi_{321}. \qquad (46)$$

---

[1]) Предполагаем, что $f_j(t)$ обладают определенной четностью.

Здесь фурье-образы χ и φ пропорциональны $\delta(\omega_1+\omega_2+\omega_3)$ и поэтому имеют по два независимых аргумента. Из (22) и (35) следует

$$\langle f_i^{(2)}(\omega)\rangle = \int d\omega' \chi_{ijk}(-\omega, \omega-\omega', \omega') F_j(\omega-\omega') F_k(\omega'). \qquad (47)$$

Как легко убедиться, операция (33) в спектральной форме переходит в операцию комплексного сопряжения и умножения на $s \equiv s_1 s_2 s_3 = \pm 1$. Пусть $s = 1$ и $B = 0$ тогда $\varphi^{(\omega)}$ и $\Phi^{(\omega)}$ — действительны и

$$\chi_{321} + \text{в. с.} = (2\pi)^{-2} \int d\omega_3\, d\omega_2\, d\omega_1 e^{i(\omega_3 t_3+\omega_2 t_2+\omega_1 t_1)} 2\,\mathrm{Re}\,\chi_{321}^{(\omega)} \delta(\omega_3+\omega_2+\omega_1). \qquad (48)$$

В результате (45) принимает вид (полагаем $f_j = f_j^*$)

$$\varphi_{321}^{(\omega)} = -\frac{\hbar^2}{\pi^2}\,\mathrm{Re}\,\{\mathcal{N}_1\mathcal{N}_2\chi_{321}^{(\omega)} + \mathcal{N}_{\bar 2}\mathcal{N}_{\bar 3}\chi_{123}^{(\omega)} - \mathcal{N}_1\mathcal{N}_{\bar 3}\chi_{231}^{(\omega)}\} =$$
$$= -\frac{\hbar^2}{\pi^2}\,\mathrm{Re}\,\mathcal{N}_{\bar 3}\{\mathcal{N}_1(\chi_{321}^{(\omega)} - \chi_{231}^{(\omega)}) + \mathcal{N}_{\bar 2}(\chi_{132}^{(\omega)} - \chi_{312}^{(\omega)})\}, \qquad (49)$$

где теперь

$$\mathcal{N}_{\pm n} = \left[\exp\left(\pm\frac{\hbar\omega_n}{\varkappa T}\right) - 1\right]^{-1} = -(\mathcal{N}_{\mp n} + 1). \qquad (50)$$

Итак, трехиндексные восприимчивости и равновесные моменты взаимно однозначно связаны друг с другом согласно формулам (49) и (36). Выше мы рассмотрели связи между моментами $\varphi_1^{(n)}$, описывающими флуктуации в равновесной системе, и восприимчивостями $\chi^{(n-1)}$, определяющими изменение $\varphi^{(1)}(F)$ под действием внешней силы (накачки), для случаев $n = 2$ и 3. Нетрудно по аналогии с (36) определить $\chi^{(3)}$ через $\varphi_0^{(4)}$, однако, «обернуть» эту связь невозможно [149].

Представляет интерес также изменение $\varphi^{(2)}(F)$ под действием накачки. Например, в [148] линейную по накачке часть $\varphi_1^{(2)}$ удалось выразить через $\chi^{(2)}$ и температуру. Эту связь также можно считать квадратичной ФДТ.

Приближенная кубическая ФДТ. Выражение для квадратичной по накачке части флуктуаций $\varphi_2^{(2)}$ через кубическую восприимчивость $\chi^{(3)}$ было найдено в работе [145] (см. также [11, 146, 147]) при пренебрежении линейным поглощением. Мы приведем здесь эту связь, дополнив ее слагаемым, описывающим корреляцию стоксовых и антистоксовых спектральных компонент [136]. Общее обсуждение связей между различными четырехиндексными величинами можно найти в [149, 188].

Рассмотрим модель, описывающую нерезонансное комбинационное рассеяние света. Пусть на рассматриваемую равновесную систему действует монохроматическая «накачка» с амплитудой

F^L и частотой ω_L, далекой от собственных частот системы. Задача состоит в определении вторых моментов системы, возмущенной накачкой, через ее восприимчивость $\chi^{(3)}$ по отношению к слабой зондирующей силе («сигналу») $F(\omega)$ с частотой ω при условии, что только разностная частота $\Omega \equiv \omega - \omega_L$ близка к одной из собственных частот системы ω_0.

В общем случае нетрудно найти формальное выражение для тензора четвертого ранга $\chi^{(3)}$, связывающего первый момент (отклик) $\langle f \rangle$ с кубом внешней силы F^3, через собственные частоты, матричные элементы и населенности системы (см., например, [10, 11]). В спектральном представлении каждая компонента этого тензора — функция трех частот, которую мы обозначим $\chi_{ijkl}^{\bar{1}234} \equiv \chi_{ijkl}(\bar{\omega}_1;\ \omega_2, \omega_3, \omega_4)$, где индекс i и четвертая частота $\omega_1 \equiv \omega_2 + \omega_3 + \omega_4$ относятся к отклику ($\bar{\omega} \equiv -\omega$). По определению тензорная функция χ инвариантна к операции произвольной перестановки ее независимых частотных аргументов ω_2, ω_3, ω_4 и соответствующих декартовых индексов j, k, l; например,

$$\chi_{ijkl}^{\bar{1}234} = \chi_{ikjl}^{\bar{1}324} = \chi_{ilkj}^{\bar{1}432}. \tag{51}$$

Нас здесь интересует часть отклика, квадратичная по амплитуде монохроматической накачки F^L и линейная по фурье-компоненте сигнала $F(\omega)$:

$$\langle f_i(\omega_1)\rangle = \chi_{ijkl}^{\bar{1}L\bar{L}1} F_j^L F_k^{L*} F_l(\omega_1) + \chi_{ijkl}^{\bar{1}L\bar{L}\bar{2}} F_j^L F_k^L F_l^*(\omega_2) \equiv$$
$$\equiv \Delta\chi_{il}^{(1)}(\omega_1) F_l(\omega_1) + \Delta\chi_{il}^{(2)}(\omega_1) F_l^*(\omega_2), \tag{52}$$

где $\omega_2 \equiv 2\omega_L - \omega_1$. Первое слагаемое в (52) соответствует эффекту рамановского усиления ($\Omega < 0$) или поглощения ($\Omega > 0$), пропорционального $\operatorname{Im} \Delta\chi_{ii}(\omega)$. Второе слагаемое описывает трехчастотный параметрический эффект, связывающий стоксовы и антистоксовы компоненты (этот эффект используется в активной спектроскопии [139]).

Пусть $\omega_n \gg \omega_0$ ($n = 1, 2, L$), тогда с помощью теории возмущения можно найти связь между вторыми моментами возмущенной накачкой системы и $\Delta\chi$, аналогичную точной линейной ФДТ (24):

$$\langle f_i(\omega) f_j(\omega')\rangle = \frac{\hbar}{\pi}\delta(\omega + \omega')\mathcal{N}(\omega' - \omega_L)\operatorname{Im}\Delta\chi_{ij}^{(1)}(\omega) +$$
$$+ \frac{\hbar}{\pi}\delta(\omega + \omega' - 2\omega_L)\mathcal{N}(\omega_L - \omega)\operatorname{Im}\Delta\chi_{ij}^{(2)}(\omega') \tag{53}$$

(для простоты матричные элементы f_{mn} считаются действительными). В отличие от линейной ФДТ, здесь аргументом температурного множителя N является разностная частота $\pm\Omega$ и, кроме того, появилась корреляция между разночастотными компонентами, сдвинутыми на двойную частоту накачки $2\omega_L$ (квадратичная ФДТ описывает корреляцию компонент, отличающихся на ω_L).

§ 2.5. Релаксация и кинетические уравнения

Предполагая в предыдущем разделе существование независящего от начальных условий отклика системы на действие внешней силы, мы неявно постулировали наличие процессов релаксации. Эти процессы приводят к «забыванию» системой ее начального состояния, к установлению стационарного отклика при воздействии гармонического возмущения и к возвращению системы к тепловому равновесию после выключения силы. Релаксация вводится в динамическую теорию с помощью «термостата» — второй системы, имеющей бесконечное число степеней свободы и, следовательно, бесконечную длительность «цикла Пуанкаре», т. е. периода повторения состояния. В классические теории релаксация легко вводится феноменологически — добавлением в уравнение сил трения, пропорциональных скорости. В динамические квантовые модели бесконечно слабая релаксация и необратимость уравнений движения вводится с помощью адиабатического множителя $e^{\varepsilon t}$ при энергии возмущения (2.3.23).

Однако термостат не только демпфирует движение системы, но и неизбежно (при $T \neq 0$) раскачивает ее случайным образом. Наглядным и важным историческим примером является броуновское движение пылинки. Под действием бесчисленных ударов молекул воздуха ее первоначальное поступательное движение затухает (или устанавливается на стационарном уровне при наличии внешней силы) и сменяется диффузионным хаотическим движением. Знаменитое соотношение Эйнштейна между коэффициентами диффузии и трения положило начало серии флуктуационно-диссипативных теорем.

Для описания броуновского движения классических моделей разработано два важных и, как правило, эквивалентных метода: *ланжевеновский*, основанный на добавлении в уравнение движения, кроме сил трения, еще «шумовых» сил (их коррелятор определяется через константу затухания с помощью ФДТ), и *марковский*, основанный на уравнении Фоккера — Планка для условной вероятности перехода системы из одного состояния в другое. В последнее время в связи с развитием квантовой оптики и электроники эти методы были обобщены для описания броуновского движения квантовых систем, например, гармонического осциллятора или моды резонатора [5].

Наиболее общий метод одновременного описания флуктуаций в слабо-неравновесных системах и процессов релаксации основан на так называемых кинетических уравнениях, первое из которых было введено Больцманом около ста лет назад. Мы рассмотрим ниже в качестве примера один из простейших вариантов вывода кинетического уравнения.

Кинетическое уравнение для матрицы плотности. Пусть в замкнутой системе можно выделить две части, так что ее оператор Гамильтона имеет вид

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_A + \mathcal{H}_B + \mathcal{V} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{V}, \tag{1}$$

где $\mathcal{H}_A$ может включать действие внешних сил.

Согласно уравнению (2.3.8) матрица плотности всей системы в представлении взаимодействия изменяется по закону (индекс представления «0» опускаем):

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar}[\mathcal{V}(t), \rho(t_0) + \Delta\rho(t)], \tag{2}$$

где

$$\Delta\rho \equiv \rho(t) - \rho(t_0) = \int_{t_0}^{t} dt' \frac{d\rho(t')}{dt'} = \frac{1}{i\hbar}\int_{t_0}^{t} dt' [\mathcal{V}(t'), \rho(t')]. \tag{3}$$

Пока все точно. Сделаем в последнем выражении следующие приближения:

$$\rho(t') \approx \rho_A(t)\,\rho_B(t_0) \equiv \bar{\rho}(t), \tag{4}$$

$$\rho_B(t_0) = \rho_B^{(T)}, \qquad t_0 = -\infty$$

(индекс T означает равновесную величину с температурой T); тогда (2) принимает вид

$$\frac{d\rho}{dt} = (i\hbar)^{-2}\int_{-\infty}^{t} dt' [\mathcal{V}(t), [\mathcal{V}(t'), \bar{\rho}(t)]] \tag{5}$$

(мы опустили линейное по $\mathcal{V}$ слагаемое, дающее статическое возмущение). Фактически нас интересует лишь поведение системы A, т. е. ее матрица плотности $\rho_A(t) = \mathrm{Sp}_B\rho(t)$. Применение операции Sp_B к обоим частям (5) и приводит к кинетическому уравнению для оператора $\rho_A(t)$ [11, 13, 150].

Приближение (4) означает пренебрежение обратным влиянием системы A на B и пренебрежение «быстрыми» изменениями $\rho_A(t)$ в результате отдельных «столкновений». Это по существу марковское приближение, согласно которому поведение системы в данный момент не зависит от ее достаточно далекого прошлого. Кроме того, учет в (5) лишь слагаемых второго порядка по $\mathcal{V}$ (т. е. лишь «двухчастичных столкновений») предполагает слабость взаимодействия.

Если мы найдем решение (5) при заданном начальном условии $\rho_A(t_1)$, то мы можем определить произвольную одновременную наблюдаемую в момент t по формуле

$$\langle f(t)\rangle = \mathrm{Sp}_A\{\rho_A(t)\, f(t)\}, \tag{6}$$

где $f(t)$ — оператор в представлении взаимодействия по $\mathscr{V}$. Если внешних сил нет, то $\rho_A(t)$ при $t \gg t_1 + \tau$ стремится к равновесной матрице плотности с температурой термостата $\rho_A^{(T)}$ (τ — характерное время релаксации); при этом правая часть (6) должна стремиться к стационарному значению $\langle f \rangle^{(T)}$. При наличии δ-образной или гармонической силы (6) определяет временную или спектральную восприимчивость системы.

Кинетические уравнения для средних. Пусть f — оператор произвольного параметра системы A. Из (5) и (6) следует

$$\frac{d\langle f\rangle}{dt} = \mathrm{Sp}_A\left(\frac{df}{dt}\rho_A + f\frac{d\rho_A}{dt}\right) =$$

$$= \left\langle \frac{df}{dt}\right\rangle^0 - \frac{1}{\hbar^2}\int\limits_{-\infty}^{t} dt'\,\mathrm{Sp}\,\{f(t)\,[\mathscr{V}(t), [\mathscr{V}(t'), \bar{\rho}(t)]]\}, \qquad (7)$$

где первое слагаемое описывает движение наблюдаемой без учета системы B; согласно (2.1.13) при $\partial f/\partial t = 0$

$$\left\langle \frac{df}{dt}\right\rangle^0 = \frac{1}{i\hbar}\mathrm{Sp}_A\,\{[f, \mathscr{H}_A]\,\rho_A\}. \qquad (8)$$

Как легко проверить, операторы под знаком Sp можно циклически переставлять:

$$\begin{gathered} abc = cab = bca, \quad a\,[b, c] = [a, b]\,c, \\ a\,[b, [c, d]] = [[a, b], c]d, \end{gathered} \qquad (9)$$

и поэтому (7) можно переписать в виде

$$\frac{d\langle f\rangle}{dt} = \left\langle \frac{df}{dt}\right\rangle^0 - \hbar^{-2}\int\limits_{-\infty}^{t} dt'\,\langle [[f(t), \mathscr{V}(t)], \mathscr{V}(t')]\rangle, \qquad (10)$$

где усреднение переменных системы A производится с помощью матрицы плотности $\rho_A(t)$, взятой в представлении взаимодействия в момент времени t, а усреднение переменных термостата — с помощью равновесной матрицы плотности.

Пусть энергию взаимодействия можно представить в виде «скалярного произведения» (2.4.1):

$$\mathscr{V} = -\sum_j f_j F_j; \qquad (11)$$

тогда (переобозначим произвольный оператор системы A через g)

$$\frac{d\langle g\rangle}{dt} = \left\langle \frac{dg}{dt}\right\rangle^0 + \frac{1}{\hbar^2}\sum_{jj'}\int\limits_{-\infty}^{t} dt'\,\{\langle FF'\rangle^{(T)}\langle [f, g]\,f'\rangle -$$

$$- \langle F'F\rangle^{(T)}\langle f'\,[f, g]\rangle\}, \qquad (12)$$

где $f \equiv f_j(t)$, $f' \equiv f_{j'}(t')$ и аналогично для F, F'. Равновесные вторые моменты термостата $\langle FF' \rangle^{(T)}$ и $\langle F'F \rangle^{(T)}$ связаны формулой (2.4.15) и могут или считаться известными феноменологическими характеристиками, или рассчитываться с помощью простых моделей (удобно представлять термостат системой гармонических осцилляторов [3] или набором двухуровневых атомов — см. § 4.5).

Положим $g(t) \equiv f_1(t) f_2(t) \ldots f_k(t)$, тогда (12) определяет скорость изменения одновременного k-го момента системы через разновременные моменты порядка $k+2$. Эти моменты определяются в представлении взаимодействия, так что согласно (2.2.35) их можно выразить через одновременные моменты и неоператорные функции времени. Если собственные частоты $\omega_{nn'}$ невозмущенной термостатом системы известны, то интегрирование в (12) можно провести явно. Таким образом, уравнение (12) является дифференциальным, а не интегро-дифференциальным (как это и должно быть для марковского процесса).

Если, далее, система A линейна (например, если система A — это электромагнитное поле — см. гл. 3), то коммутаторы $[f, f']$ суть c-числа, а средние от $[g, f]$ являются моментами порядка $k-1$, и в результате в левой и правой частях (12) фигурируют моменты одного порядка k, т. е. (12) в этом случае представляет замкнутую систему кинетических уравнений для момента порядка k (иногда удобнее в качестве наблюдаемой $\langle g \rangle$ выбрать характеристическую функцию — см. § 4.4).

Итак, кинетическое уравнение в принципе описывает изменение всех статистических свойств системы под действием термостата и внешних сил. Подчеркнем, что в отличие от ФДТ решение кинетического уравнения определяет все моменты в неравновесной системе, включая и восприимчивость — отношение первого момента к силе. ФДТ же лишь утверждает, что отношение второго момента равновесной системы к восприимчивости в спектральном представлении есть универсальная функция температуры $\mathcal{N}$. Это утверждение зато в отличие от выводов из кинетического уравнения не ограничено никакими приближениями, кроме условия равновесности.

Кинетические уравнения для населенностей. С помощью (12) можно определить динамику средних населенностей системы. Для этого полагаем

$$g = \sigma^{21} \equiv |n_1\rangle \langle n_2|, \tag{13}$$

где $|n_k\rangle$ — собственные векторы $\mathcal{H}_A$. Как легко убедиться, имеют место следующие соотношения (индекс A опускаем):

$$\begin{gathered} \langle \sigma^{21} \rangle = \rho_{12} \equiv \langle n_1 | \rho^0 | n_2 \rangle, \\ \langle f' \sigma^{21} f \rangle = \sum_{3,\,4} f'_{42} f_{13} \rho_{34} = (f \rho f')_{12}. \end{gathered} \tag{14}$$

В результате из (12) следует

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = \sum_{34} w_{1234}\rho_{34}, \tag{15}$$

$$w_{1234} \equiv \frac{1}{\hbar^2}\sum_{jj'}\int_{-\infty}^{t} dt' \{\langle F'F\rangle^T [f'_{42}f_{13} - (f'f)_{42}\delta_{13}] + \\ + \langle FF'\rangle^T [f_{42}f'_{13} - (ff')_{13}\delta_{42}]\},$$

$$f_{21} \equiv \langle n_2 \mid f_j^0(t) \mid n_1\rangle, \quad f'_{21} \equiv \langle n_2 \mid f_{j'}^0(t') \mid n_1\rangle$$

(этот же результат можно получить сразу из (5), взяв матричный элемент между состояниями $\langle n_2 \mid$ и $\mid n_1\rangle$).

Если пренебречь недиагональными элементами матрицы плотности (так называемое приближение хаотических фаз), то (15) принимает вид:

$$\frac{d\rho_n}{dt} = \sum_m w_{nm}\rho_m, \tag{16}$$

$$\rho_n \equiv \rho_{nn}, \quad w_{nm} \equiv w_{nnmm};$$

коэффициенты w_{nm} называются скоростями релаксации или вероятностями переходов между уровнями под действием термостата. Кинетические уравнения для населенностей (16) при учете внешних сил широко используются в квантовой электронике для описания эффекта насыщения.

Спонтанные и вынужденные переходы. Представим в (12) моменты термостата в спектральной форме согласно (2.4.9):

$$\frac{d\langle g\rangle}{dt} = \left\langle\frac{dg}{dt}\right\rangle^0 + \frac{1}{\hbar^2}\sum_{ij}\sum_{ab} F_{jab}F_{iba}\{\rho_a\langle f_j^{ab}[g, f_i]\rangle - \rho_b\langle[g, f_i]f_j^{ab}\rangle\}, \tag{17}$$

$$f_j^{ab} \equiv \int_{-\infty}^{t} dt' f_j(t')\exp[i\omega_{ab}(t'-t) + \varepsilon t'], \tag{18}$$

где мы добавили множитель сходимости $e^{\varepsilon t}$, опустили аргументы t операторов f_i (они теперь все одинаковые) и обозначили через $\rho_a \equiv \rho_{Baa}$ относительные населенности уровней термостата.

Введем разности населенностей термостата $\Delta\rho_{ab} \equiv \rho_a - \rho_b$:

$$\rho_a = \Delta\rho_{ab}(\mathcal{N}_{ba} + 1), \quad \rho_b = \Delta\rho_{ab}\mathcal{N}_{ba}, \tag{19}$$

$$\mathcal{N}_{ba} \equiv \left(\exp\frac{\hbar\omega_{ba}}{\varkappa T} - 1\right)^{-1},$$

и будем считать диагональные матричные элементы F_{jaa} равными нулю, тогда (17) принимает вид

$$\frac{d\langle g\rangle}{dt}=\left\langle\frac{dg}{dt}\right\rangle^{0}+\hbar^{-2}\sum_{ij}\sum_{b>a}\Delta\rho_{ab}F_{jab}F_{iba}\{\mathcal{N}_{ba}\langle[f_j^{ab},[g,f_i]]+$$
$$+[f_i^{ba},[g,f_j]]\rangle+\langle f_j^{ab}[g,f_i]+[f_j,g]f_i^{ba}\rangle\}. \quad (20)$$

Здесь первое слагаемое в фигурных скобках пропорционально населенностям верхних уровней термостата для данной пары (a, b), а второе слагаемое пропорционально разностям населенностей. Если системой A является электромагнитное поле, а термостатом — заряженные частицы, то эти слагаемые описывают спонтанные и вынужденные эффекты соответственно.

ГЛАВА 3

ОСНОВЫ КВАНТОВОЙ ОПТИКИ

В настоящей главе сформулированные выше правила перехода от классического описания явлений к квантовому применяются к электромагнитному полю. В § 3.1 микроскопические уравнения Максвелла приводятся к каноническому виду. Сама процедура квантования описана в § 3.2. В § 3.3 рассматриваются возможные квантовые состояния поля и их изменение во времени при наличии заданных (классических) источников поля. Наконец, в § 3.4 выводятся правила квантования макроскопических уравнений Максвелла для поля в безграничной среде при пренебрежении оптической нелинейностью вещества (см. также [88, 158]).

§ 3.1. Канонические переменные электромагнитного поля

Динамические уравнения для поля. Будем исходить из уравнений Максвелла—Лоренца для пустого пространства при наличии заданных источников с плотностью тока $\boldsymbol{j}$:

$$\dot{\boldsymbol{E}} = c \operatorname{rot} \boldsymbol{H} - 4\pi \boldsymbol{j}, \quad \dot{\boldsymbol{H}} = -c \operatorname{rot} \boldsymbol{E}. \tag{1}$$

Здесь все три поля $\boldsymbol{E}$, $\boldsymbol{H}$ и $\boldsymbol{j}$ являются функциями четырех переменных $\boldsymbol{r}$, t. Мы специально перенесли временные производные в левые части равенств, чтобы подчеркнуть, что эта пара уравнений играет роль динамических уравнений движения [2]. Вторая же пара уравнений Максвелла

$$\operatorname{div} \boldsymbol{E} = 4\pi\rho, \ \operatorname{div} \boldsymbol{H} = 0 \tag{2}$$

представляет собой *связи*, ограничивающие число переменных (напомним, что в нерелятивистской квантовой механике временные и пространственные координаты играют существенно различную роль).

Произвольное векторное поле можно однозначно разделить на два аддитивных слагаемых — на продольную и поперечную части поля:

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}_{\parallel} + \boldsymbol{E}_{\perp}. \tag{3}$$

Это разбиение легко осуществляется с помощью пространственного преобразования Фурье, как это будет показано ниже. По

определению

$$\operatorname{rot} \boldsymbol{E}_{\parallel} = 0, \quad \operatorname{div} \boldsymbol{E}_{\perp} = 0 \tag{4}$$

и аналогично для $\boldsymbol{H}$ и $\boldsymbol{j}$. Из (2) следует

$$\operatorname{div} \boldsymbol{E}_{\parallel} = 4\pi\rho, \quad \boldsymbol{H}_{\parallel} = 0. \tag{5}$$

Согласно (5) продольная часть поля определяется положением зарядов в тот же момент времени, и поэтому она не является динамической переменной.

Итак, динамические уравнения для поля имеют вид

$$\dot{\boldsymbol{E}}_{\perp} = c \operatorname{rot} \boldsymbol{H} - 4\pi \boldsymbol{j}_{\perp}, \quad \dot{\boldsymbol{H}} = -c \operatorname{rot} \boldsymbol{E}_{\perp}; \tag{6}$$

в дальнейшем мы опустим индекс $\perp$. Уравнения (6) напоминают связь канонических переменных — импульса и координаты — в гамильтоновой форме механики. Однако аргумент $\boldsymbol{r}$ шести скалярных функций E_α, H_α $(\alpha = x, y, z)$ изменяется непрерывно, и поэтому динамические уравнения (6) содержат бессчетное множество переменных. Чтобы сделать это множество счетным и избавиться от операторов пространственного дифференцирования, выполним трехмерное фурье-преобразование над функциями $E_\alpha(\boldsymbol{r})$, $H_\alpha(\boldsymbol{r})$, $j_\alpha(\boldsymbol{r})$.

Пространственное фурье-преобразование полей. Переход (1.1.14) от непрерывного аргумента $\boldsymbol{r}$ к дискретному $\boldsymbol{k}$ делает счетным множество переменных, определяющих состояние рассматриваемой системы — электромагнитного поля внутри L^3, — и тем самым позволяет использовать рецепт квантования уравнений движения, описанный в § 2.1.

Подчеркнем, что размеры и положение в пространстве «нормировочного» параллелепипеда L^3 могут быть любыми, например, $L^3 = 1$ см^3 или 1 км^3. При этом для данного реального поля $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})$ в зависимости от объема L^3 и его расположения будет изменяться гармонический состав $\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}$. Совокупность комплексных гармоник $\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(t)$ точно определяет поле внутри выбранного «ящика» периодичности (и не имеет отношения в общем случае к полю вне L^3) или, как говорят, образует $\boldsymbol{k}t$-представление электрического поля. Аналогично функция $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}, t)$ образует $\boldsymbol{r}t$-представление.

Легко убедиться, что пары функций $\exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r})$ и $\exp(-i\boldsymbol{k}'\cdot\boldsymbol{r})$ при неодинаковых $\boldsymbol{k}$ и $\boldsymbol{k}'$ ортогональны друг другу в L^3, т. е. что выполняется равенство

$$\frac{1}{L^3} \int\limits_{L^3} d\boldsymbol{r} e^{i(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}')\cdot\boldsymbol{r}} = \delta_{m_x m_x'} \delta_{m_y m_y'} \delta_{m_z m_z'} \equiv \delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'}. \tag{7}$$

Умножив (1.1.14) на $\exp(-i\boldsymbol{k}'\cdot\boldsymbol{r})$ и проинтегрировав по $\boldsymbol{r}$, найдем обратное преобразование:

$$\boldsymbol{E}_k = \frac{1}{L^3}\int\limits_{L^3} d\boldsymbol{r} e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}) \tag{8}$$

(несущественный пока аргумент t мы опускаем).

Заметим, что из действительности функций $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})$ и из (8) следует связь

$$\boldsymbol{E}_k^* = \boldsymbol{E}_{\bar{k}} \qquad (\bar{\boldsymbol{k}} \equiv -\boldsymbol{k}); \tag{9}$$

таким образом, мы ввели избыточное число переменных. Аналогичные (9) связи имеют место и для фурье-компонент других полей.

Подействовав оператором $\int d\boldsymbol{r}\exp(-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r})$ на (6), получим уравнения движения в $\boldsymbol{k}t$-представлении:

$$\dot{\boldsymbol{E}}_k = i\omega_k\hat{\boldsymbol{k}}\times\boldsymbol{H}_k - 4\pi\boldsymbol{j}_k, \quad \dot{\boldsymbol{H}}_k = -i\omega_k\hat{\boldsymbol{k}}\times\boldsymbol{E}_k \tag{10}$$

($\omega_k \equiv ck$, $\hat{\boldsymbol{k}} \equiv \boldsymbol{k}/k$). Поскольку вектор $\boldsymbol{E}_k$ лежит в плоскости, перпендикулярной направлению $\boldsymbol{k}$, то он определяется двумя, а не тремя независимыми компонентами. Пусть единичные векторы $\boldsymbol{e}_{k1}$, $\boldsymbol{e}_{k2}$ перпендикулярны $\boldsymbol{k}$, тогда

$$\boldsymbol{E}_k = \sum_{\nu=1}^{2} \boldsymbol{e}_{k\nu}E_{k\nu}. \tag{11}$$

Заметим, что при непрерывном повороте тройки $\boldsymbol{e}_{k\nu}$ на 180° вокруг, например, $\boldsymbol{e}_{k1}$ новое направление $\boldsymbol{e}_{k2}$ обратно старому. Мы, однако, условимся, что волновым векторам $\boldsymbol{k}$ и $-\boldsymbol{k}$ соответствуют одни и те же орты поляризации: $\boldsymbol{e}_{k\nu} = \boldsymbol{e}_{\bar{k}\nu}$.

С учетом (11) прямое и обратное преобразования принимают вид:

$$\begin{gathered}\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}) = \sum_{k\nu}\boldsymbol{e}_{k\nu}E_{k\nu}e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} \equiv \sum_k \boldsymbol{e}_k E_k e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}},\\ \boldsymbol{E}_{k\nu} \equiv \boldsymbol{E}_k = L^{-3}\int d\boldsymbol{r}\boldsymbol{e}_{k\nu}\cdot\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}},\end{gathered} \tag{12}$$

где мы объединили индексы $\boldsymbol{k}$ и ν:

$$k \equiv \{\boldsymbol{k}, \nu\} \equiv \{m_x, m_y, m_z, \nu\}. \tag{13}$$

Аналогично можно выразить магнитное поле через фурье-компоненты:

$$\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) = \sum_k \boldsymbol{h}_k H_k e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}, \tag{14}$$

$$H_k \equiv \boldsymbol{h}_{k\nu}\cdot\boldsymbol{H}_k, \quad \boldsymbol{h}_{k\nu} \equiv \boldsymbol{k}\times\boldsymbol{e}_{k\nu}.$$

Условия действительности (9) дают

$$E_{\bar{k}}^* = E_k, \quad H_{\bar{k}}^* = -H_k, \quad j_{\bar{k}}^* = j_k, \tag{15}$$

где $\bar{k} \equiv \{-\boldsymbol{k}, \nu\}$ и $j_k \equiv \boldsymbol{e}_{k\nu} \cdot \boldsymbol{j}_{\boldsymbol{k}}$.

Канонические переменные поля. Индекс k нумерует независимые в общем случае степени свободы или «моды» поля в объеме нормировки L^3. Понятие моды здесь аналогично понятию типа колебания в случае объемного резонатора, когда поле представляется суммой стоячих волн. Состояние данной моды в момент t задается двумя комплексными (т. е. четырьмя действительными) функциями $E_k(t)$ и $H_k(t)$, причем эти же две комплексные функции согласно (15) определяют состояние моды с обратным направлением волнового вектора.

Чтобы выделить независимые динамические переменные, относящиеся только к одной моде, образуем линейную комбинацию

$$a_k \equiv -\frac{i}{2c_k}(E_k + H_k), \quad a_k^* \equiv \frac{i}{2c_k}(E_{\bar{k}} - H_{\bar{k}}), \tag{16}$$

$$c_k \equiv \sqrt{2\pi\hbar\omega_k/L^3} = \sqrt{\hbar\omega_k v}/2\pi,$$

где коэффициенты выбраны так, чтобы новые переменные были безразмерными и их коммутатор равнялся 1. Величина $a_{\bar{k}}$ независима от a_k, так что состояние каждой моды задается своей комплексной амплитудой $a_k(t)$.

Определим также две действительные амплитуды моды, пропорциональные действительной и мнимой частям a_k:

$$q_k \equiv \sqrt{\frac{2\hbar}{\omega_k}}\, a_k', \quad p_k \equiv \sqrt{2\hbar\omega_k}\, a_k'', \tag{17}$$

$$a_k = (2\hbar\omega_k)^{-1/2}(\omega_k q_k + i p_k).$$

Легко найти обратные к (16), (17) преобразования:

$$E_k = ic_k(a_k - a_{\bar{k}}^*) = \sqrt{\pi/L^3}\,[-p_k - p_{\bar{k}} + i\omega_k(q_k - q_{\bar{k}})], \tag{18}$$

$$H_k = ic_k(a_k + a_{\bar{k}}^*) = \sqrt{\pi/L^3}\,[-p_k + p_{\bar{k}} + i\omega_k(q_k + q_{\bar{k}})].$$

В новых переменных разложение поля по плоским волнам согласно (12), (14) и (18) имеет вид

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}) = i\sum_k \boldsymbol{e}_k c_k a_k e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{к. с.},$$

$$\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}) = i\sum_k \hat{\boldsymbol{k}} \times \boldsymbol{e}_k c_k a_k e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{к. с.} \tag{19}$$

Канонические уравнения поля и функция Грина. Найдем уравнения движения для переменных a_k. Для этого подставим

(18) в уравнения (10) и сложим их. В результате получим

$$\dot{a}_k = -i\omega_k a_k + i\sqrt{\frac{2\pi L^3}{\hbar\omega_k}}\, j_k. \tag{20}$$

Уравнения для действительных переменных согласно (17) и (20) имеют вид (индекс k опускаем):

$$\dot{q} = p - \sqrt{\frac{4\pi L^3}{\omega}}\, j'', \quad \dot{p} = -\omega^2 q + \sqrt{4\pi L^3}\, j'. \tag{21}$$

Таким образом, в kt-представлении уравнения Максвелла при заданных источниках свелись к системе независимых осцилляторных уравнений. Отсюда следует, что электромагнитное поле ведет себя как набор гармонических осцилляторов.

Не представляет труда найти общее решение уравнения (20):

$$a(t) = a(t_0)\, e^{i\omega(t_0 - t)} + i\sqrt{\frac{2\pi L^3}{\hbar\omega}} \int_{t_0}^{t} dt_1 e^{i\omega(t_1 - t)} j(t_1). \tag{22}$$

Если $t > t_0$, то второе слагаемое здесь называется запаздывающим решением, а при обратном неравенстве — опережающим. В последнем случае ток в будущие моменты времени влияет на поле в настоящий момент, так что согласно принципу причинности опережающее решение не имеет физического смысла (хотя оно и верно с чисто математической точки зрения).

Пусть $t_0 = -\infty$, тогда вынужденную часть (22) можно представить в виде

$$a'(t) = i\sqrt{\frac{2\pi L^3}{\hbar\omega}} \int dt_1 G(t - t_1)\, j(t_1), \tag{23}$$

где функция

$$G(t) \equiv \theta(t)\, e^{-i\omega t} \tag{24}$$

называется запаздывающей функцией Грина. Удобно определить также опережающую функцию Грина

$$G_{adv}(t) \equiv -\theta(-t)\, e^{-i\omega t} = -G^*(-t), \tag{25}$$

так что

$$G(t) - G_{adv}(t) = e^{-i\omega t}. \tag{26}$$

Чтобы найти вынужденные решения и функции Грина для E_k и H_k, достаточно подставить (22) в (18):

$$\begin{aligned} E'_k(t) &= -4\pi \int_{t_0}^{t} dt_1 \cos[\omega_k(t - t_1)]\, j_k(t_1), \\ H'_k(t) &= 4\pi i \int_{t_0}^{t} dt_1 \sin[\omega_k(t - t_1)]\, j_k(t_1). \end{aligned} \tag{27}$$

Далее можно найти функции Грина в $\boldsymbol{r}t$-представлении, заменив суммы по плоским волнам на интегралы.

Роль размеров нормировочного объема. Пусть токи к моменту t прекратились, тогда согласно (22) поле осциллирует с собственными частотами $\omega_k = ck$ и с неизменной амплитудой. Очевидно, что такое решение имеет физический смысл лишь при определенных ограничениях на t и L^3. Ясно, что при конечном L и отсутствии токов во внешнем пространстве волны рано или поздно уйдут из L^3 на бесконечность и поле обратится в нуль, что противоречит (22). Таким образом, фурье-амплитуды поля имеют строгий смысл лишь при $L \to \infty$ или на ограниченных интервалах времени (когда локализованные волновые пакеты не успеют покинуть L^3) или, наконец, в случае стационарных источников.

С другой стороны, решение (22) не учитывает приходящие в L^3 волны от внешних источников. Соответствующие им амплитуды могут в общем случае произвольно зависеть от времени, и поэтому их нельзя включить в начальные амплитуды (первое слагаемое в (22)), осциллирующие с определенной частотой. Все эти осложнения возникают при конечных объемах квантования и отпадают, если полагать $L^3 \to \infty$.

Однако понятие частично-локализованных фурье-амплитуд и связанное с ними в случае стационарно-флуктуирующих полей понятие яркости света (§ 1.1) в «точке» $\boldsymbol{r}$ с направлением распространения $\hat{\boldsymbol{k}}$ и частотой ck очень удобно и наглядно. Оно вполне законно в рамках геометрической оптики и является основным понятием для описания процессов переноса света в мутных средах.

Итак, мы перешли от динамических уравнений в частных производных (1) к системе обыкновенных дифференциальных уравнений (20) или (21) для счетного множества независимых переменных. Эти уравнения совпадают с уравнением движения гармонического осциллятора, и их не представляет труда «проквантовать», т. е. найти по рецептам предыдущей главы перестановочные соотношения для различных переменных и удобные базисные системы векторов.

§ 3.2. Квантование электромагнитного поля

Гамильтониан поля. Прежде чем определить с помощью скобок Пуассона (2.1.8) коммутаторы полевых переменных, убедимся, что введенные формулой (3.1.17) переменные q_k, p_k действительно являются каноническими. Для этого мы составим из них функцию Гамильтона $\mathscr{H}$ и проверим эквивалентность уравнений движения в гамильтоновой форме (2.1.7) уравнениям Максвелла.

Будем исходить из следующего выражения для энергии поля в объеме L^3 при заданных токах:

$$\mathcal{H}(t) = \mathcal{H}_0 + \mathcal{V}(t), \tag{1}$$

$$\mathcal{H}_0 = \frac{1}{8\pi} \int\limits_{L^3} dr\,(E^2 + H^2), \tag{2}$$

$$\mathcal{V}(t) = -\frac{1}{c} \int\limits_{L^3} dr\boldsymbol{A} \cdot \boldsymbol{j}(t), \tag{3}$$

где $\boldsymbol{A}$ — векторный потенциал ($\operatorname{rot} \boldsymbol{A} \equiv \boldsymbol{H}, \operatorname{div} \boldsymbol{A} \equiv 0$, $\boldsymbol{A}_{\boldsymbol{k}} = i\boldsymbol{k} \times \boldsymbol{H}_{\boldsymbol{k}}/k^2$, $A_{\boldsymbol{k}\nu} = H_{\boldsymbol{k}\nu}/ik$, $\dot{\boldsymbol{A}}_{\boldsymbol{k}} = -c\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}$).

В $\boldsymbol{k}t$-представлении эти выражения с учетом условий ортогональности (3.1.7) и действительности (3.1.9) принимают вид

$$\mathcal{H}_0 = \frac{L^3}{8\pi} \sum_k (|E_k|^2 + |H_k|^2), \tag{4}$$

$$\mathcal{V}(t) = iL^3 \sum_k H_k j_k^*(t)/\omega_k \tag{5}$$

Подставив сюда (3.1.18), найдем

$$\mathcal{H} = \sum \left\{ \hbar\omega_k |a_k|^2 - \sqrt{\frac{2\pi\hbar L^3}{\omega_k}}\, 2\operatorname{Re} a_k j_k^*(t) \right\} =$$
$$= \sum \left\{ \frac{1}{2}(p_k^2 + \omega_k^2 q_k^2) - \sqrt{4\pi L^3} \left(q_k j_k' + \frac{1}{\omega_k} p_k j_k'' \right) \right\}. \tag{6}$$

С помощью этого гамильтониана, полагая в (2.1.7) по очереди $f = q_k, p_k, a_k$, мы получим уравнения, совпадающие с (3.1.20) и (3.1.21), которые, в свою очередь, эквивалентны уравнениям Максвелла. Итак, мы нашли гамильтонову форму уравнений для поперечного поля при заданных токах.

Коммутаторы операторов поля. По правилу (2.1.11) без труда находим

$$[q_k, p_{k'}] = i\hbar\delta_{kk'}, \quad [q_k, q_{k'}] = [p_k, p_{k'}] = 0. \tag{7}$$

Теперь мы должны считать динамические переменные q, p и их функции a, E, H, $\mathcal{H}$,... операторами, т. е. при преобразованиях сохранять порядок их написания. Напомним, что в квантовой механике с экспериментом следует сравнивать не сами переменные $f(q, p, t)$, а их «свертки» $\langle f \rangle \equiv \langle t_0 | f(t) | t_0 \rangle$ с начальными векторами состояния поля $| t_0 \rangle$, которые, как и в случае обычных тензоров или матриц, зависят от порядка: $\langle fg \rangle \neq \langle gf \rangle$.

В случае комплексных функций вместо знака комплексного сопряжения у операторов следует писать знак эрмитова сопряжения, например: $a^* \to a^+ = (\omega q - ip)/\sqrt{2\hbar\omega}$. Эта замена символов обеспечивает выполнение правила (2.2.8а). Операторы a_k^+ и a_k

называются соответственно операторами рождения и уничтожения фотонов в моде k (смысл этих названий будет пояснен ниже). Оптические эксперименты, как правило, описываются с помощью произведений этих операторов, написанных в «нормальном» порядке [1, 2]: $\langle a_1^+ \ldots a_n^+ a_{n+1} \ldots a_m \rangle$ (здесь $1 = k_1$, $n = k_n$); мы будем называть эти величины (которые в совокупности несут полную статистическую информацию о поле в объеме L^3) *моментами* порядка $n + m$. Например, второй «диагональный» момент $\langle a_1^+ a_1 \rangle \equiv N_1$ определяет интенсивность плоской волны с волновым вектором $\boldsymbol{k}_1$ и направлением поляризации $\boldsymbol{e}_{\boldsymbol{k}\nu}$. В случае некогерентного поля число фотонов на моду согласно (1.1.26) определяет основной фотометрический параметр — спектральную яркость света на частоте $\omega = ck$ с направлением $\boldsymbol{k}/k$ и поляризацией $\boldsymbol{e}_{\boldsymbol{k}\nu}$:

$$S_{\omega\Omega} = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}} N_k = \frac{k^2}{2\pi v} \langle E_k^{(-)} E_k^{(+)} \rangle \tag{8}$$

(в последнем равенстве мы использовали связь $E_k^{(+)} = ic_k a_k$, имеющую место при $j_k = 0$).

Правила коммутации для операторов рождения и уничтожения следуют из (7):

$$[a_k, a_{k'}^+] = \delta_{kk'}, \quad [a_k, a_{k'}] = 0. \tag{9}$$

Отсюда с помощью (3.1.18) находим

$$[E_k, H_{k'}] = -2c_k^2 \delta_{k\bar{k}'}, \qquad [E_k, E_{k'}] = [H_k, H_{k'}] = 0. \tag{10}$$

Теперь вместо (3.1.15) имеют место связи

$$E_k = E_{\bar{k}}^+, \quad H_k = -H_{\bar{k}}^+. \tag{11}$$

Из (9) можно получить коммутационные соотношения для различных функций от операторов рождения и уничтожения $f(a, a^+)$ (см. [3]), например:

$$[f, a_k^+] = \partial f / \partial a_k^*, \quad [a_k, f] = \partial f / \partial a_k^+. \tag{12}$$

Эти соотношения следуют также из (2.1.11) при учете того, что согласно (3.1.17)

$$i\hbar \{f, g\} = \frac{\partial f}{\partial a} \frac{\partial g}{\partial a^+} - \frac{\partial g}{\partial a} \frac{\partial f}{\partial a^+}. \tag{13}$$

При нахождении коммутаторов полезно также применять тождество

$$[a, bc] = [a, b]\, c + b\, [a, c].$$

Мы будем в большинстве случаев использовать представление Гейзенберга, в котором вектор состояния неподвижен, а вся динамика поля заключена, как и в классической электродинамике,

во временной зависимости операторов $a_k(t)$. Эта зависимость определяется уравнением Гейзенберга (2.1.13), совпадающим по форме с классическими уравнениями (3.1.20). Таким образом, все соотношения § 3.1 сохраняются в квантовой электродинамике, если в них полагать динамические переменные операторами в представлении Гейзенберга.

В частности, согласно (3.1.19) операторы полей в точке $\boldsymbol{r}$ связаны с операторами рождения и уничтожения следующими соотношениями:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t) &= i\sum \boldsymbol{e}_k c_k a_k(t)\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{э. с.}, \\ \boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}t) &= i\sum \hat{\boldsymbol{k}} \times \boldsymbol{e}_k c_k a_k(t)\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{э. с.}, \end{aligned} \tag{14}$$

где э. с. означает эрмитово-сопряженное выражение.

Гамильтониан поля (6) принимает вид

$$\mathscr{H} = \sum_k [\mathscr{H}_{0k} + \mathscr{V}_k(t)], \tag{15}$$

$$\mathscr{H}_{0k} = \frac{\hbar\omega_k}{2}(a_k^+ a_k + a_k a_k^+) = \hbar\omega_k\left(a_k^+ a_k + \frac{1}{2}\right),$$

$$\mathscr{V}(t) = -\sqrt{\frac{2\pi\hbar L^3}{\omega_k}}\,[a_k j_k^+(t) + a_k^+ j_k(t)].$$

Мы написали $\mathscr{H}_{0k}$ в симметризованном виде, что привело к появлению бесконечной энергии вакуума $\sum\hbar\omega_k/2$. Однако физический смысл имеет лишь приращение энергии, поэтому эта бесконечность не входит в наблюдаемые величины.

В то же время «флуктуации вакуума», а точнее дисперсия напряженности поля в состоянии с минимальной энергией (см. следующий параграф), является реально наблюдаемой величиной, ответственной, например, за параметрическое рассеяние света. В следующем параграфе будет показано, что в состоянии вакуума отличны от нуля лишь антинормально — упорядоченные моменты: $\langle aa^+\rangle = 1$. Отсюда с помощью (14) находим квадрат поля, приходящегося на одну моду: $\langle E^2(\boldsymbol{r}t)\rangle = c_k^2$. Таким образом, коэффициенты c_k имеют смысл амплитуд нулевых флуктуаций электрического или магнитного поля одной моды.

Как отмечалось в предыдущей главе, равенства, связывающие операторы в один и тот же момент времени, сохраняют свой вид в различных представлениях, поэтому операторы в коммутаторах (7) и (9) можно полагать шредингеровскими или гейзенберговскими при $t = t'$. Таким образом, нам известны одновременные коммутаторы операторов поля. Чтобы из них определить перестановочные соотношения для разновременных операторов (которые согласно (2.4.17) или (2.4.25) определяют функции корреляции и спектр равновесного поля), надо найти закон изменения

операторов во времени, т. е. решить уравнения Гейзенберга. Это легко сделать в случае пустого пространства.

Свободное поле. Пусть в рассматриваемом объеме источников нет, тогда согласно (3.1.22) операторы рождения и уничтожения зависят от времени гармонически:

$$a_k^0(t) = a_k e^{-i\omega_k(t-t_0)}, \quad a_k^0(t)^+ = a_k^+ e^{i\omega_k(t-t_0)},$$
$$a_k \equiv a_k^0(t_0) \equiv a_k^{\text{III}}; \tag{16}$$

индекс «0» отмечает свободное поле (или нулевой порядок теории возмущений по $\mathscr{V}$, т. е. представление взаимодействия). Из (16) и (9) сразу следует

$$[a_k^0(t), a_{k'}^0(t')^+] = \delta_{kk'} e^{-i\omega_k(t-t')}. \tag{17}$$

При $t = t'$ это соотношение переходит, конечно, в (9), справедливое и для вынужденных полей. Из (17) и (3.1.18) находим

$$[E_k^0(t), E_{k'}^0(t')] = [H_{k'}^0(t'), H_k^0(t)] = -2i\delta_{k\bar{k}'} c_k^2 \sin\omega_k(t-t'),$$
$$[E_k^0(t), H_{k'}^0(t')] = -2\delta_{k\bar{k}'} c_k^2 \cos\omega_k(t-t'). \tag{18}$$

Отсюда можно с помощью (3.1.19) найти коммутаторы свободных полей в $\boldsymbol{r}t$-представлении.

Отметим, что из (17) и (2.4.17) сразу следует среднее число фотонов в одной моде равновесного поля с температурой T:

$$N_{kk'} \equiv \langle a_k^+ a_{k'} \rangle = \delta_{kk'} \mathscr{N}_k. \tag{19}$$

Заметим также, что согласно (17) и (3.1.26) имеет место связь:

$$[a_k(t), a_k^+(t')] = G_k(t-t') + G_k^*(t'-t). \tag{20}$$

Разложение операторов поля в частотный интеграл Фурье. Как и в классической электродинамике, часто бывает удобно представлять гейзенберговы операторы $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t)$, $E_k(t)$ или $a_k(t)$ в виде частотного интеграла Фурье:

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t) = \int d\omega e^{-i\omega t} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}\omega),$$
$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}\omega) = \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t) \tag{21}$$

(бесконечные пределы интегрирования опускаем). Здесь обычно используют именно интеграл, а не ряд Фурье (как при пространственном разложении), хотя в принципе нас интересует поведение поля за конечный отрезок времени T и можно было бы заменить реальное поле на периодическое с периодом T.

Электрическому полю как реально наблюдаемой величине должен соответствовать эрмитов оператор, поэтому

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}, \omega) = \boldsymbol{E}^{+}(\boldsymbol{r}, -\omega). \tag{22}$$

Разложение (21) позволяет однозначно разделить поле на две неэрмитовы части, называемые положительно-частотной и отрицательно-частотной частями:

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t) = \boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r}t) + \boldsymbol{E}^{(-)}(\boldsymbol{r}t), \tag{23}$$

$$\boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r}t) \equiv \int_0^\infty d\omega e^{-i\omega t} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}\omega),$$

$$\boldsymbol{E}^{(-)}(\boldsymbol{r}t) \equiv \int_{-\infty}^0 d\omega e^{-i\omega t} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}\omega) = [\boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r}t)]^{+}.$$

В классической теории положительно-частотная часть поля называется аналитическим сигналом [2]. Операторы $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}\omega)$ вместе с $\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}\omega)$ образуют $\boldsymbol{r}\omega$-представление поля. Аналогично можно ввести $\boldsymbol{k}\omega$-представление:

$$\begin{gathered} \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(t) = \int d\omega e^{-i\omega t} \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(\omega), \\ \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(\omega) = \boldsymbol{E}^{+}_{\boldsymbol{k}}(-\omega) = \frac{1}{2\pi} \int dt e^{i\omega t} \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(t), \\ a_k(t) = \int d\omega e^{-i\omega t} a_k(\omega). \end{gathered} \tag{24}$$

Гейзенберговы операторы $\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(t)$, $a_k(t)$ также можно аналогично (23) разбить на части, содержащие только положительные или только отрицательные частоты:

$$\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(t) = \boldsymbol{E}^{(+)}_{\boldsymbol{k}}(t) + \boldsymbol{E}^{(-)}_{\boldsymbol{k}}(t), \tag{25}$$

$$\boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r}t) = \sum_{\boldsymbol{k}} \boldsymbol{E}^{(+)}_{\boldsymbol{k}}(t) e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}. \tag{26}$$

В случае свободного поля согласно (16)

$$\begin{gathered} a^{0\,(+)}_{k}(t) = a^{0}_{k}(t), \quad a^{0\,(-)}_{k}(t) = 0, \\ a^{0}_{k}(\omega) = a_k \delta(\omega - \omega_k), \end{gathered} \tag{27}$$

и поэтому положительно-частотная часть поля не зависит от операторов рождения:

$$\boldsymbol{E}^{0}_{\boldsymbol{k}}(t) = i \sum_{\nu} \boldsymbol{c}_{k\nu} (a_{k\nu} e^{-i\omega_k t} - a^{+}_{\bar{k}\nu} e^{i\omega_k t}) \equiv \sum_{\pm} \boldsymbol{E}^{(\pm)}_{\boldsymbol{k}} e^{\mp i\omega_k t}, \tag{28}$$

$$\boldsymbol{E}^{(+)}_{\boldsymbol{k}} \equiv i \sum_{\nu} \boldsymbol{c}_{k\nu} a_{k\nu} = [\boldsymbol{E}^{(-)}_{\bar{k}}]^{+}, \qquad \boldsymbol{c}_{k\nu} \equiv c_k \boldsymbol{e}_{k\nu}. \tag{29}$$

Из определений следуют также следующие связи:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}\omega) &= \sum_{\boldsymbol{k}} e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(\omega), \\ \boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(\omega) &= L^{-3} \int d\boldsymbol{r} e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}\omega), \\ \boldsymbol{E}^0_{\boldsymbol{k}}(\omega) &= \sum_{\pm} \boldsymbol{E}^{(\pm)}_{\boldsymbol{k}} \delta(\omega \mp \omega_k). \end{aligned} \tag{30}$$

На конечных этапах расчета суммирование по модам заменяется интегрированием по правилу

$$\begin{gathered} \sum_{k} \to v^{-1} \int d\boldsymbol{k} \sum_{\nu=1}^{2}, \\ \delta_{kk'} \to v\delta_{\nu\nu'}\delta(\boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}') \qquad (v \equiv 8\pi^3/L^3) \end{gathered} \tag{31}$$

При этом полное (четырехмерное) фурье-разложение электрического поля принимает вид

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t) &= v^{-1} \int d\boldsymbol{k}\, d\omega e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} - i\omega t} \boldsymbol{E}(\boldsymbol{k}\omega) = \\ &= iv^{-1} \int d\boldsymbol{k}\, d\omega e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} - i\omega t} \sum_{\nu=1}^{2} \boldsymbol{c}_{k\nu} [a_\nu(\boldsymbol{k}\omega) - a^+_\nu(\bar{\boldsymbol{k}}\bar{\omega})] \qquad (\boldsymbol{c}_{k\nu} \equiv \boldsymbol{e}_{k\nu} c_k). \end{aligned} \tag{32}$$

§ 3.3. Возможные состояния поля

В настоящем разделе приведены основные сведения о базисных состояниях, используемых для теоретического описания поля (подробнее см. [1—3]).

Энергетические и когерентные состояния. Рассмотрим сперва одну моду. В квантовой оптике используют две основные системы «координат» в гильбертовом пространстве возможных состояний поля, образованных собственными векторами оператора энергии $\hbar\omega a^+a$ (или, что то же самое, оператора числа фотонов a^+a) свободного поля и оператора уничтожения фотона a. Собственные векторы оператора a, введенные в квантовую оптику Глаубером [1], называются *когерентными* состояниями, а собственные векторы оператора a^+a — *энергетическими* или *фоковскими*.

По определению собственных функций и значений (§ 2.2) имеем

$$(a^+a - N) \mid N\rangle = 0, \tag{1}$$

$$(a - z) \mid z\rangle = 0. \tag{2}$$

Множества чисел $\{N\}$ и $\{z\}$, удовлетворяющих (1) и (2), образуют *спектр* соответствующих операторов. Оператор числа фотонов — эрмитов, и поэтому числа N действительны, а векторы $\mid N\rangle$ —

ортогональны и образуют полную систему ортов:

$$\langle N \mid N' \rangle = \delta_{NN'}, \quad \sum_N \mid N \rangle \langle N \mid = I. \tag{3}$$

Легко показать, исходя из перестановочных соотношений (3.2.9), что разности $N - N'$ — целые числа и, следовательно, энергия одной моды свободного поля дискретна и кратна величине $\hbar\omega$, называемой энергией фотона. Для этого подействуем на один из энергетических векторов $\mid N \rangle$ оператором a^+ и предположим, что

$$a^+ \mid N \rangle = x \mid N' \rangle, \tag{4}$$

где x — действительное число. Отсюда по определению эрмитова оператора $\langle N \mid a = x \langle N' \mid$; перемножив эти два равенства и заменив aa^+ на $a^+a + I$, найдем с помощью (3), что $x^2 = \langle N \mid a^+a + I \mid N \rangle = N + 1$. Умножим далее (4) слева на a^+a:

$$a^+ (a^+a + I) \mid N \rangle = (N + 1) a^+ \mid N \rangle = xN' \mid N' \rangle.$$

Сравнив это выражение с исходным (4), получим $N + 1 = N'$, так что

$$a^+ \mid N \rangle = \sqrt{N + 1} \mid N + 1 \rangle. \tag{5}$$

Аналогично можно показать, что

$$a \mid N \rangle = \sqrt{N} \mid N - 1 \rangle. \tag{6}$$

Если принять энергию основного состояния моды за начало отсчета (т. е. $N_{\min} \equiv 0$), то

$$N = 0, 1, 2, \ldots \tag{7}$$

Найдем теперь матрицу преобразования $\langle N \mid z \rangle$, связывающую когерентный и энергетический базисы. Умножив (2) на $\langle N \mid$, получим рекуррентную связь между проекциями вектора $\mid z \rangle$ на направления $\langle N \mid$ и $\langle N + 1 \mid$: $\sqrt{N + 1} \langle N + 1 \mid z \rangle = z \langle N \mid z \rangle$. Отсюда $\langle N \mid z \rangle = z^N (N!)^{-1/2} \langle 0 \mid z \rangle$, и, следовательно,

$$\mid z \rangle = \sum_{N=0}^{\infty} \mid N \rangle \langle N \mid z \rangle = \langle 0 \mid z \rangle \sum \frac{z^N}{\sqrt{N!}} \mid N \rangle.$$

Из (3) и условия нормировки $\langle z \mid z \rangle = 1$ найдем модуль оставшейся неопределенной компоненты: $\mid \langle 0 \mid z \rangle \mid^2 = \exp(- \mid z \mid^2)$. Пусть $\langle 0 \mid z \rangle$ — действительное число, тогда окончательно

$$\begin{gathered} \langle N \mid z \rangle = z^N (N!)^{-1/2} e^{-|z|^2/2}, \\ \mid z \rangle = e^{-|z|/2/2} \sum_N (N!)^{-1/2} z^N \mid N \rangle. \end{gathered} \tag{8}$$

Заметим, что наши базисы имеют один общий вектор: $\mid z = 0 \rangle = \mid N = 0 \rangle \equiv \mid 0 \rangle$, который мы будем называть вакуумным.

Спектр $\{z\}$ неэрмитова оператора a комплексный и непрерывный (так как $a \sim q + ip$), а его собственные векторы (см. Приложение) неортогональны. Действительно, с помощью (8) и (3)

находим

$$\langle z|z'\rangle = \sum_N \langle z|N\rangle\langle N|z'\rangle = \exp\left[z^*z' - \frac{1}{2}(|z|^2 + |z'|^2)\right],$$
$$|\langle z|z'\rangle|^2 = \exp[-|z-z'|^2]. \tag{9}$$

Таким образом, когерентные состояния приблизительно ортогональны, если $|z-z'| \gg 1$. В то же время непрерывное множество векторов $\{|z\rangle\}$ полно (даже «сверхполно» [1]):

$$\frac{1}{\pi}\int d^2z\,|z\rangle\langle z| = I, \tag{10}$$

где $d^2z = d(\mathrm{Re}\,z)\,d(\mathrm{Im}\,z)$ и интегрирование производится по всей комплексной плоскости.

Соотношения полноты (3) и (10) означают, что две рассмотренные системы «координат» перекрывают все гильбертово пространство возможных состояний моды поля (т. е. линейного осциллятора), так что любой вектор этого пространства можно представить в виде суммы векторов $|N\rangle$ или $|z\rangle$:

$$|\ \rangle = \sum_N |N\rangle\langle N|z\rangle = \frac{1}{\pi}\int d^2z\,|z\rangle\langle z|\ \rangle. \tag{11}$$

Аналогично, любой тензор, связывающий линейно два вектора этого пространства, можно представить в виде двойной суммы диад:

$$f = \sum_{NN'} f_{NN'}|N\rangle\langle N'| = \pi^{-2}\int d^2z\,d^2z' f_{zz'}|z\rangle\langle z'|, \tag{12}$$

где $f_{zz'} \equiv \langle z|f|z'\rangle$. Отсюда находим наблюдаемые в состоянии $|\ \rangle$ величины

$$\langle f\rangle = \sum_{NN'} f_{NN'}\langle\ |N\rangle\langle N|\ \rangle = \ldots$$

Введем для дальнейшего оператор сдвига [1], который переводит когерентные состояния друг в друга:

$$\mathscr{D}_z \equiv e^{za^+ - z^*a} = e^{za^+}e^{-z^*a - |z|^2/2},$$
$$\mathscr{D}_z|z_0\rangle = e^{i\varphi}|z_0 + z\rangle, \qquad \varphi \equiv \mathrm{Im}\,(zz_0^*), \tag{13}$$
$$\mathscr{D}_z^+ = \mathscr{D}_z^{-1} = \mathscr{D}_{-z}, \qquad \mathscr{D}_z^+ a \mathscr{D}_z = a + z.$$

Многомодовое поле. Обобщение рассмотренных базисов на многомодовый случай не представляет труда. Если состояния мод свободного поля приготовлены независимо, то волновая функция совокупности мод будет равна просто произведению волновых функций отдельных мод:

$$|\psi\rangle = |\psi_1\rangle_1|\psi_2\rangle_2\ldots|\psi_k\rangle_k\ldots = \prod_k |\psi_k\rangle_k. \tag{14}$$

Гильбертово пространство всего поля образуется «произведением» отдельных модовых пространств с соответствующим бесконечнократным увеличением размерности.

Это пространство перекрывается, например, совокупностью энергетических векторов

$$\prod_k |N_k\rangle_k \equiv |N_1, \ldots N_k, \ldots\rangle \equiv |\mathscr{E}\rangle. \tag{15}$$

Поле в таком состоянии имеет определенную энергию:

$$\mathscr{H}_0 |\mathscr{E}\rangle = \sum_k \hbar\omega_k a_k^+ a_k \prod_{k'} |N_{k'}\rangle_{k'} = \mathscr{E} |\mathscr{E}\rangle, \tag{16}$$

где

$$\mathscr{E} = \sum \hbar\omega_k N_k \tag{17}$$

(операторы $a_k^+ a_k$ действуют лишь на «свою» волновую функцию: $a_k^+ a_k \mid \mathscr{E}\rangle = N_k \mid \mathscr{E}\rangle$).

Определим оператор общего числа фотонов

$$\hat{N} \equiv \sum_k a_k^+ a_k. \tag{18}$$

В энергетическом состоянии (15) общее число фотонов N также определено:

$$\hat{N} |\mathscr{E}\rangle = \sum N_k |\mathscr{E}\rangle = N |\mathscr{E}\rangle. \tag{19}$$

Вектор (15) задается бесконечной последовательностью целых чисел $N_1, N_2, \ldots$, называемых *числами заполнения*. Произвольное состояние поля (в том числе с зависимыми модами) можно представить в виде

$$| \ \rangle = \sum_{\mathscr{E}} |\mathscr{E}\rangle \langle\mathscr{E} | \ \rangle, \tag{20}$$

где суммирование производится по всевозможным сочетаниям чисел заполнения. Аналогично (15) можно сконструировать когерентный базис с ортами $| z \rangle \equiv \Pi \mid z_k\rangle_k$.

Независимость плоских мод (см. (14)) в реальных оптических экспериментах практически неосуществима, так как дифракция и упругое рассеяние перемешивают волновые функции мод с разными направлениями векторов $\boldsymbol{k}$, $\boldsymbol{e}_{k\nu}$ и с одинаковой частотой ck. Упругое рассеяние на движущейся молекуле за счет эффекта Допплера делает статистически зависимыми и разночастотные моды. Этот же эффект дает неупругое (комбинационное) рассеяние. Примеры приготовления различных состояний поля будут приведены в следующих главах. Например, в § 5.3 будет описано состояние с определенной энергией и неопределенным числом фотонов.

Свойства базисных состояний. Согласно (5), (6) состояния $a^+ \mid N\rangle$, $\mid N\rangle$ и $a \mid N\rangle$ принадлежат энергиям, отличающимся на энергию фотона $\hbar\omega$, что и объясняет названия операторов a^+ и a. Любое энергетическое состояние одной моды («N-фотонное» состояние) можно представить в виде

$$\mid N\rangle = (N!)^{-1/2} (a^+)^N \mid 0\rangle. \tag{21}$$

Если поле находится в N-фотонном состоянии, то измерение его энергии даст точное значение $\hbar\omega N$. В то же время результат отдельного измерения амплитуд поля q, p или a в N-состоянии предсказать невозможно, а при повторных измерениях $\mid a \mid$ будет флуктуировать около среднего значения $\sqrt{N}$.

Если же поле приготовлено в когерентном состоянии, то, наоборот, флуктуации амплитуды будут минимальны [1], а число фотонов будет флуктуировать согласно (8) по закону Пуассона:

$$P(N) = \mid\langle \mid N\rangle\mid^2 = \frac{\mid z\mid^{2N}}{N!} e^{-\mid z\mid^2}. \tag{22}$$

Распределение амплитуды и фазы поля в когерентном состоянии близки к классическому колебанию с определенной фазой и стабильной амплитудой [1]. Возможны и «сверхкогерентные» состояния с еще более определенной фазой [159].

Оптические детекторы, как уже отмечалось, обычно «реагируют» на нормально-упорядоченные операторы поля. В случае когерентного состояния усреднение нормально-упорядоченного момента согласно (2) дает

$$\langle z \mid a^{+n} a^m \mid z\rangle = z^{*n} z^m. \tag{23}$$

Это свойство *факторизации* средних величин делает когерентный базис наиболее удобным при вычислениях. Из (23) следует, что если $f_{\text{норм}}(a^+, a)$ — произвольная функция, в которой операторы уничтожения действуют раньше операторов рождения, то ее усреднение по когерентному состоянию с собственным значением z производится просто заменой a^+, a на z^*, z:

$$\langle f_{\text{норм}}\rangle_z \equiv \langle z \mid f_{\text{норм}}(a^+, a) \mid z\rangle = f_{\text{норм}}(z^*, z). \tag{24}$$

Например,

$$\langle a^+ a\rangle_z = \mid z\mid^2, \quad \langle a a^+\rangle_z = \langle a^+ a + I\rangle_z = \mid z\mid^2 + 1.$$

Смешанные состояния. Как уже упоминалось в конце § 2.2, на практике приготовление реальных объектов, и в том числе электромагнитного поля, в каком-либо чистом состоянии — например, энергетическом или когерентном — встречается с большими трудностями. Чаще всего мы имеем дело со статистической смесью нескольких чистых состояний, описываемой матрицей плотности (2.2.41). В отличие от случая суперпозиции состояний (11) ба-

зисные векторы входят в смешанное состояние с неопределенными, флуктуирующими фазами, и поэтому при образовании квадратичных выражений они не интерферируют (здесь имеется некоторая аналогия с невозможностью стационарной интерференции между некогерентными классическими волнами).

Свет солнца или электрической лампы соответствует модели поля, в которой каждая отдельная мода находится в смешанном состоянии, описываемом в энергетическом базисе больцмановской диагональной матрицей плотности:

$$\rho_{NN'}^{(T)} = \delta_{NN'} (1 - e^{-x}) e^{-Nx}, \tag{25}$$

где $x = \hbar\omega_k/\varkappa T$ и $T = 6000$ или 3000 К (подробнее см. следующую главу). Желтые лучи солнца согласно (25) состоят на 99,2% из вакуума с малой примесью однофотонного (0,8%) и двухфотонного (0,01%) состояний.

Средняя населенность уровней осциллятора (т. е. среднее число фотонов) в равновесном состоянии согласно (25) равна

$$\langle \hat{N} \rangle^{(T)} = \mathrm{Sp}\,(\rho^{(T)} a^+ a) = (e^x - 1)^{-1} \equiv \mathcal{N}, \tag{26}$$

где мы ввели оператор числа фотонов $\hat{N} \equiv a^+ a$. Высшие моменты этого оператора в равновесном состоянии равны

$$\langle \hat{N}^m \rangle^{(T)} = m!\, \mathcal{N}^m. \tag{27}$$

Такая же связь между моментами имеет место и для классической случайной величины I с непрерывным экспоненциальным распределением (ср. (25))

$$P(I) = \langle I \rangle^{-1} e^{-I/\langle I \rangle}; \tag{28}$$

такое распределение получается, если $I \equiv z^* z = z'^2 + z''^2$ и распределения независимых величин z' и z'' — гауссовы (нормальные), поэтому мы будем называть равновесное распределение поля гауссовым.

Матрицу плотности можно представить и в когерентном базисе. Как показали Глаубер и Сударшан [1, 2], это представление для широкого класса возможных теоретических состояний диагонально (ср. (12)):

$$\rho = \int d^2 z P(z) \,|z\rangle \langle z|, \tag{29}$$

где $\int d^2 z P(z) = 1$. Эта формула называется *P-представлением* оператора плотности. Если функция $P(z)$ известна, то среднее значение любого оператора можно найти по формуле

$$\langle f \rangle = \int d^2 z P(z) f_{zz}. \tag{30}$$

(эту формулу легко получить с помощью многократного применения разложений единицы (4), (10)).

P-представление удобно для вычисления средних от нормально-упорядоченных операторов. Согласно (24) и (30)

$$\langle f_{\text{норм}}(a^+, a)\rangle = \int d^2z P(z) f_{\text{норм}}(z^*, z). \tag{31}$$

В случае равновесного состояния

$$P^{(T)}(z) = \frac{1}{\pi\mathcal{N}} \exp\left(-\frac{|z|^2}{\mathcal{N}}\right), \tag{32}$$

а в случае чистого когерентного состояния $|z_1\rangle$

$$P_{\text{ког}}(z) = \delta^{(2)}(z - z_1). \tag{33}$$

Существенно, что набор возможных квантово-статистических состояний осциллятора гораздо богаче набора, допускаемого классической статистикой. Так, если когерентные состояния еще имеют похожие классические состояния (детерминированное колебание с определенными фазой и амплитудой), то N-состояние не имеет в классике ничего похожего. Хотя мы еще не умеем пока приготавливать чистые N-состояния поля (кроме вакуумного), экспериментальная квантовая оптика в принципе должна давать много неожиданных эффектов (например, недавно обнаруженный эффект антигруппировки [160]).

Характеристическая функция. Моменты проще вычислять не с помощью операции интегрирования (30), а с помощью дифференцирования. Для этого определим следующую нормально-упорядоченную операторную функцию одной моды:

$$\hat{\chi}(\mu, \mu^*) \equiv e^{\mu a^+} e^{-\mu^* a} = \sum_{mn} \frac{(\mu a^+)^m (-\mu^* a)^n}{m!n!}. \tag{34}$$

Среднее значение этого оператора называется нормально-упорядоченной характеристической (или моментопроизводящей) функцией или, короче, χ-функцией:

$$\chi(\mu, \mu^*) \equiv \langle\hat{\chi}(\mu, \mu^*)\rangle = \mathrm{Sp}\{\rho e^{\mu a^+} e^{-\mu^* a}\}. \tag{35}$$

Из этого определения следует, что производные χ в нулевой точке равны нормально-упорядоченным моментам:

$$\langle a^{+m} a^n\rangle = \left(\frac{\partial}{\partial\mu}\right)^m \left(-\frac{\partial}{\partial\mu^*}\right)^n \chi\Big|_{\mu=\mu^*=0}. \tag{36}$$

Отсюда

$$\langle f_{\text{норм}}(a^+, a)\rangle = f\left(\frac{\partial}{\partial\mu}, -\frac{\partial}{\partial\mu^*}\right)\chi\Big|_0 \tag{37}$$

(предполагается, конечно, что распределение таково, что моменты существуют). Согласно (31) и (35) функции P и χ связаны двумер-

ным преобразованием Фурье:

$$\chi(\mu, \mu^*) = \int d^2z P(z) e^{\mu z^* - \mu^* z}. \tag{38}$$

В случае N-, z- и T-состояний χ-функция равна соответственно

$$\begin{aligned} \chi_N &= L_N(|\mu|^2), \\ \chi_z &= \exp(\mu z^* - \mu^* z), \\ \chi_T &= \exp(-\mathcal{N}|\mu|^2) \end{aligned} \tag{39}$$

(здесь $L_N(x)$ — полином Лежандра, подробнее см. [161]).

Правило коммутации $aa^+ = a^+a + 1$ позволяет по «нормальным» моментам (36) находить «антинормальные» $\langle a^m a^{+n}\rangle$ и симметризованные моменты. Проще, однако, их находить из соответствующих χ-функций [161]:

$$\chi_{\text{анти}} \equiv \langle e^{-\mu^* a} e^{\mu a^+}\rangle = e^{-|\mu|^2}\chi_{\text{норм}}, \tag{40а}$$

$$\chi_{\text{сим}} \equiv \langle e^{\mu a^+ - \mu^* a}\rangle = e^{-|\mu|^2/2}\chi_{\text{норм}}. \tag{40б}$$

Указанные связи с «нормальной» χ-функцией $\chi_{\text{норм}} \equiv \chi$ легко получить с помощью следующего операторного тождества (вывод см. [2], с. 162):

$$e^{f+g} = e^f e^{g+[g,f]/2} = e^g e^{f+[f,g]/2} \tag{41}$$

(предполагается, что f и g коммутируют с $[f, g]$). В частности,

$$e^{\mu a^+ + \eta a} = e^{\mu a^+} e^{\eta(a + \mu/2)} = e^{\eta a} e^{\mu(a^+ - \eta/2)}. \tag{41а}$$

Фурье-образы (40) аналогично (38) являются распределениями квазивероятностей $P_{\text{анти}}$, $P_{\text{сим}}$ (подробнее см., например, [161]). Функцию $P_{\text{сим}}(z)$ называют распределением Вигнера.

Из определения (35) следует еще одно удобное свойство мультипликативности функции χ: χ-функция суммы нескольких независимых случайных величин равна просто произведению χ-функций этих величин. Например, согласно (40а) можно считать, что на входе каждой моды идеального квантового или параметрического усилителя (реагирующего на антинормальные моменты), кроме «истинного» сигнала с χ-функцией $\chi_{\text{норм}}$, действует еще независимый «квантовый шум» с гауссовой характеристической функцией $\exp(-\mu\mu^*)$.

Моменты суммы независимых величин не равны, конечно, сумме моментов, однако можно составить комбинации моментов λ_{mn} (называемых кумулянтами или семиинвариантами), обладающих этим свойством аддитивности. Кумулянты определяются разложением

$$\ln\chi = \sum_{m,\, n=0}^{\infty} \lambda_{mn} \frac{\mu^m(-\mu^*)^n}{m!n!}, \tag{42}$$

из которого следует, что в случае гауссовой статистики все кумулянты, кроме второго ($\lambda_{11} = \langle a^+ a \rangle$), равны нулю.

Динамика состояния поля. До сих пор мы не учитывали зависимости векторов и операторов от времени. Будем считать, что все написанные выше соотношения относятся к фиксированному моменту времени $t_0 = 0$. По определению в этот момент векторы и операторы в различных временных представлениях (§ 2.3) совпадают: $a(t_0) = a^{\text{Ш}}(t_0) \equiv a$. Таким образом, две наши системы базисных функций являются собственными векторами шредингеровских операторов невозмущенной энергии и уничтожения фотонов и относятся к моменту t_0:

$$|N\rangle \equiv |N, t_0\rangle, \quad |z\rangle \equiv |z, t_0\rangle. \tag{43}$$

Согласно § 2.3 переход к другим моментам времени осуществляется с помощью унитарных операторов эволюции

$$\begin{gathered} \mathcal{U}_0(t) \equiv e^{-xa^+a} \qquad (x \equiv i\omega t), \\ \mathcal{U}_0^+(t) = \mathcal{U}_0^{-1}(t) = \mathcal{U}_0(-t) \end{gathered} \tag{44}$$

и $\mathcal{U}$ (или $\mathcal{S} = \mathcal{U}_0^+ \mathcal{U}$). Можно показать [1], что решение уравнения (2.3.5а) для оператора $\mathcal{S}$ с гамильтонианом (3.2.6) имеет вид

$$\mathcal{S}(t) = e^{\alpha a^+ - \alpha^* a + i\varphi}, \tag{45}$$

$$\alpha(t) \equiv i\sqrt{\frac{2\pi L^3}{\hbar\omega}} \int_0^t dt' e^{i\omega t'} j(t'),$$

$$\varphi(t) \equiv \frac{2\pi L^3}{\hbar\omega} \int_0^t dt_1 \int_0^{t_1} dt_2 \operatorname{Im} j(t_1) j^*(t_2) e^{i\omega(t_1 - t_2)}.$$

Сравнение (45) и (13) показывает, что классический (т. е. детерминированный, заданный) ток переводит поле из одного когерентного состояния в другое:

$$\mathcal{S}(t) = \mathcal{D}[\alpha(t)] \tag{46}$$

(фаза φ опущена, так как она выпадает при образовании наблюдаемых величин). Полный оператор эволюции согласно (44) и (46) равен

$$\mathcal{U}(t) = e^{-x\hat{N}} \mathcal{D}(\alpha) = e^{-i\omega t a^+ a} e^{\alpha a^+ - \alpha^* a}. \tag{47}$$

Теперь мы можем выразить операторы и векторы в любом временном представлении — гейзенберговском, дираковском и т. д.— через шредингеровские операторы a^+, a и начальный (гейзенберговский) вектор состояния $|t_0\rangle$.

Рассмотрим сперва унитарное преобразование с помощью оператора невозмущенной эволюции (44). С помощью (1), (2) и (8)

легко находим динамику свободного поля ($x = i\omega t$):

$$|N, t\rangle' \equiv \mathcal{U}_0 |N\rangle = e^{-Nx} |N\rangle, \tag{48}$$

$$|z, t\rangle' \equiv \mathcal{U}_0 |z\rangle = \sum_N |N, t\rangle' \langle N|z\rangle = |ze^{-x}\rangle, \tag{49}$$

$$a^0(t) \equiv \mathcal{U}_0^+ a \mathcal{U}_0 = ae^{-x} \tag{50}$$

(последнее равенство можно получить умножив $a^0(t)$ на $|N\rangle$ с учетом (6)). Из (50) следует, что произвольная операторная функция в представлении взаимодействия изменяется во времени по закону

$$f^0(a^+, a) = f(a^+e^x, ae^{-x}). \tag{51}$$

В частности, из (51) и (2.3.9) следует

$$\mathcal{R} = \mathcal{D}(\alpha e^{-x}), \quad \mathcal{R}^+ = \mathcal{D}(-\alpha e^{-x}). \tag{52}$$

Эволюцию вектора состояния с учетом возмущения легко найти в случае когерентного начального состояния. При этом согласно (13), (46) и (49) вектор состояния в других представлениях остается когерентным:

$$|z, t\rangle^0 \equiv \mathcal{S} |z\rangle = |z + \alpha(t)\rangle, \tag{53}$$

$$|z, t\rangle^{\text{Ш}} \equiv \mathcal{U} |z\rangle = |z(t)\rangle, \tag{54}$$

$$|z, t\rangle^{\text{М}} \equiv \mathcal{S}^+ \mathcal{U}_0 \mathcal{S} |z\rangle = |z(t) - \alpha(t)\rangle \tag{55}$$

($z(t) \equiv [z + \alpha(t)]e^{-i\omega t}$). Отсюда при произвольном начальном состоянии следует

$$|t\rangle^{\text{Ш}} = \mathcal{U} \frac{1}{\pi} \int d^2z |z\rangle \langle z|t_0\rangle = \frac{1}{\pi} \int d^2z |z(t)\rangle \langle z|t_0\rangle. \tag{56}$$

Из (54) и (29) находим зависимость от времени матрицы плотности в представлении Шредингера:

$$\rho^{\text{Ш}}(t) = \int d^2z P(z) |z(t)\rangle \langle z(t)|, \tag{57}$$

которая определяет эволюцию статистики в случае смешанного начального состояния, допускающего P-представление.

Найдем теперь динамику оператора уничтожения в различных представлениях. Из (46) и (13) следует закон изменения оператора «огибающей»

$$a^{\text{М}}(t) \equiv \mathcal{S}^+ a \mathcal{S} = a + \alpha(t), \tag{58}$$

отличающийся от гейзенберговского оператора тривиальным экспоненциальным множителем

$$a^{\Gamma}(t) \equiv \mathcal{U}^+ a \mathcal{U} = [a + \alpha(t)]e^{-x}. \tag{59}$$

Полагая здесь $\alpha = 0$, получим оператор a^0 в представлении взаимодействия (50). Таким образом, заданный ток добавляет к операторам рождения и уничтожения «скалярную» величину, равную классической вынужденной амплитуде (3.1.22) (формулы типа (58) более правильно писать в виде $a + I\,\alpha\,(t)$. Наконец, в «штрихованном» представлении (2.3.10) согласно (52)

$$a'\,(t) \equiv \mathcal{R}^{+}a\mathcal{R} = a + \alpha\,(t)\,e^{-x}. \tag{60}$$

Наблюдаемые величины, конечно, не зависят от представления. Например, при когерентном начальном состоянии в представлениях Шредингера и Гейзенберга средняя амплитуда моды равна согласно (54) и (59):

$$\langle (z + \alpha)e^{-x} \mid a \mid (z + \alpha)\,e^{-x}\rangle = \langle z \mid (a + \alpha)\,e^{-x} \mid z\rangle = (z + \alpha)e^{-x}.$$

Изменение статистики поля во времени удобно описывать с помощью χ-функции (35), в которой ρ и a надо писать в каком-либо одном представлении. Например, в случае когерентного начального состояния (ср. (39))

$$\chi_{\text{ког}}\,(t) = e^{\mu z^*(t) - \mu^* z(t)}, \tag{61}$$

где функция $z\,(t)$ определена после формулы (55). В случае равновесного начального состояния из (32) следует

$$\chi\,(t) = e^{-\mathcal{N}\mu\mu^* + \mu z^*(t) - \mu^* z(t)}. \tag{62}$$

Такое состояние называется *смещенным гауссовым*, в классической теории вероятностей ему соответствует суперпозиция гармонического сигнала и хаотического шума. Если начальное поле было в состоянии вакуума, то из (61) при $z = 0$ следует

$$\chi\,(t) = \exp\,\{\mu\alpha^*\,(t)\,e^{i\omega t} - \mu^*\alpha\,(t)e^{-i\omega t}\}. \tag{63}$$

Таким образом, классический ток изготавливает поле в когерентном состоянии. Нормально-упорядоченные моменты при этом будут равны $\langle a^{+n}a^n\rangle = |\,\alpha\,(t)\,|^{2n}$.

Матрица рассеяния поля. Мы рассмотрели эволюцию статистики поля в простейшем случае — под действием детерминированного тока. Как правило, однако, следует ток также считать оператором и рассматривать совместное изменение общей статистики поля и вещества в результате их взаимодействия. При описании оптических экспериментов нас обычно не интересует эволюция состояния вещества, и его роль сводится к преобразованию статистики падающего поля (которое в общем случае может быть нестационарным, импульсным). Таким образом, задачей теории является вычисление χ-функции (или матрицы плотности) рассеянного поля $\chi\,(\infty) \equiv \chi'$ через $\chi\,(-\infty) \equiv \chi$ и начальную χ-функцию

вещества. Подчеркнем, что преобразование $\chi \to \chi'$ с исключенными переменными вещества уже не является унитарным, и поэтому оно описывается кинетическим уравнением (вместо уравнений Шредингера или Гейзенберга). С феноменологической точки зрения, наличие образца эквивалентно действию некоторого оператора $\chi' = \hat{U}\chi$, зависящего от параметров образца (температуры, формы и т. д.). Практически обычно задаются на «входе» ($t_0 = -\infty$) и измеряются на «выходе» ($t = \infty$) лишь моменты низшего порядка, и задача сводится к отысканию матриц рассеяния, осуществляющих преобразование $\{\langle a_k\rangle, \langle a^+_{k_1}a_{k_2}\rangle, \ldots\} \to \{\langle a_k\rangle', \langle a^+_{k_1}a_{k_2}\rangle', \ldots\}$.

§ 3.4. Функция Грина и квантование макроскопического поля в среде

Внутри вещества, кроме поля от внешних источников, имеется поле, созданное заряженными частицами вещества. Если не учитывать теплового хаотического движения частиц и соответствующего ему флуктуационного поля, а также пренебрегать мелкой пространственой структурой поля с масштабом порядка межатомного расстояния, то такое усредненное поле, называемое макроскопическим, можно описывать с помощью феноменологических уравнений Максвелла.

Если, далее, пренебречь поглощением, то макрополе можно проквантовать согласно общим правилам перехода от классических уравнений движения к квантовым (§ 2.1). Мы сперва рассмотрим общий случай поглощающей однородной среды и определим функцию Грина уравнений Максвелла в $\boldsymbol{r}\omega$ и $\boldsymbol{k}\omega$-представлениях. Последняя понадобится нам для описания рассеяния света на поляритонах и позволит ввести понятия нормальных волн, ортов поляризации и закона дисперсии.

Феноменологические уравнения Максвелла. Из уравнений (3.1.1) и (3.1.2) следует, что плотности тока и заряда связаны уравнением непрерывности $\dot{\rho} + \operatorname{div} \boldsymbol{j} = 0$ и поэтому их можно описать одним вектором поляризации $\boldsymbol{P}$, который мы определим равенством $\dot{\boldsymbol{P}} = \boldsymbol{j}$. Разделим поляризацию на три части: заданную внешними силами $\boldsymbol{P}$, индуцированную силой Лоренца $\boldsymbol{P}'(\boldsymbol{E}, \boldsymbol{H})$ и вызванную невозмущенным тепловым движением зарядов. Последняя часть приводит к тепловому излучению и пока учитываться не будет (см. гл. 4, 5). Если обозначить $\boldsymbol{D} \equiv \boldsymbol{E} + 4\pi\boldsymbol{P}'$, то уравнения Максвелла — Лоренца примут следующий вид:

$$\dot{\boldsymbol{D}} - c \operatorname{rot} \boldsymbol{H} = -4\pi\dot{\boldsymbol{P}}, \tag{1а}$$

$$\dot{\boldsymbol{H}} + c \operatorname{rot} \boldsymbol{E} = 0, \tag{1б}$$

$$\operatorname{div} \boldsymbol{D} = -4\pi \operatorname{div} \boldsymbol{P}, \tag{1в}$$

$$\operatorname{div} \boldsymbol{H} = 0. \tag{1г}$$

При последовательном квантовом подходе здесь все величины (кроме $\boldsymbol{P}$) следует считать операторами в представлении Гейзенберга, причем $\boldsymbol{P}'$ зависит от операторов и поля и вещества. Однако в макроскопической электродинамике поля обычно считаются детерминированными величинами, усредненными по объему, меньшему λ^3, но все еще содержащему много частиц. При этом $\boldsymbol{P}'(\boldsymbol{E}, \boldsymbol{H})$ вычисляется по теории возмущения и усредняется по ансамблю с помощью матрицы плотности вещества (подробнее см. [8, 11, 13]). Получающиеся в результате макроскопические уравнения Максвелла описывают эволюцию поля под действием внешних источников с учетом затухания и их можно рассматривать как кинетические уравнения (§ 2.5) для первых моментов поля. В окнах прозрачности вещества затуханием можно пренебречь и тогда эти уравнения определяют унитарное преобразование полей, так что последние можно считать операторами.

Возможен и чисто феноменологический подход, при котором постулируется определенная функциональная связь между $\boldsymbol{P}'$ и макрополями $\boldsymbol{E}$, $\boldsymbol{H}$ (мы не вводим новых обозначений для усредненных полей). Если не учитывать явную зависимость от $\boldsymbol{H}$, то эту связь можно записать в следующем символическом виде:

$$\boldsymbol{P}'(\boldsymbol{E}) = \hat{\chi}^{(1)}\boldsymbol{E} + \hat{\chi}^{(2)}\boldsymbol{E}^2 + \hat{\chi}^{(3)}\boldsymbol{E}^3 + \ldots \tag{2}$$

Это формальное равенство исключает из рассмотрения бесчисленное множество микроскопических переменных, описывающих движение зарядов, и позволяет разделить задачу на два этапа — вычисление в рамках той или иной модели явного вида связи (2) и решение уравнений (1) при известной зависимости $\boldsymbol{P}'(\boldsymbol{E})$. В приближении линейной оптики учитывается лишь первое слагаемое в (2) и оптические свойства среды полностью описываются линейной восприимчивостью $\chi^{(1)} \equiv \chi$ или диэлектрической проницаемостью.

Функция Грина для поля в среде. Для «алгебраизации» дифференциальных уравнений Максвелла в случае однородной в пространстве и во времени среды можно разложить поля с помощью четырехмерных интегралов Фурье (3.2.31). При этом (2) в линейном приближении примет вид

$$\boldsymbol{P}(\boldsymbol{k}\omega) = \chi(\boldsymbol{k}\omega) \cdot \boldsymbol{E}(\boldsymbol{k}\omega) \tag{3}$$

(точка означает суммирование — свертку по соседним индексам: $(\chi \cdot \boldsymbol{E})_i \equiv \chi_{ij}E_j$), а уравнения (1) станут алгебраическими:

$$\varepsilon \cdot \boldsymbol{E} - \boldsymbol{n} \times \boldsymbol{H} = -4\pi\boldsymbol{P}, \tag{4а}$$

$$\boldsymbol{H} - \boldsymbol{n} \times \boldsymbol{E} = 0, \tag{4б}$$

$$i\boldsymbol{k} \cdot \varepsilon \cdot \boldsymbol{E} = -4\pi\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{P}, \tag{4в}$$

$$\boldsymbol{k} \cdot \boldsymbol{H} = 0, \tag{4г}$$

где $\boldsymbol{n} \equiv c\boldsymbol{k}/\omega$ и аргументы $\boldsymbol{k}$, ω (которые мы полагаем пока действительными) опущены. Тензор диэлектрической проницаемости $\boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{k}\omega) \equiv \boldsymbol{I} + 4\pi\boldsymbol{\chi}(\boldsymbol{k}\omega)$ при учете зависимости от $\boldsymbol{k}$ (называемой *пространственной дисперсией*) описывает и магнитные свойства среды [8], поэтому мы не различаем магнитную индукцию и магнитное поле: $\boldsymbol{H} \equiv \boldsymbol{B}$. Заметим, что равенство (4в) не является независимым, так как оно следует из (4а) при умножении последнего на $\boldsymbol{k}$. Согласно (4в) в случае свободного поля (когда $\boldsymbol{P} = 0$) вектор индукции $\boldsymbol{D} = \boldsymbol{\varepsilon}\cdot\boldsymbol{E}$ перпендикулярен вектору $\boldsymbol{k}$.

Подставим (4б) в (4а), тогда

$$(n^2\boldsymbol{\pi} - \boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \boldsymbol{E} = 4\pi\boldsymbol{P}, \tag{5}$$

где мы ввели тензор проектирования на перпендикулярную $\boldsymbol{k}$ плоскость:

$$\boldsymbol{\pi} \equiv \boldsymbol{I} - \hat{\boldsymbol{k}}\hat{\boldsymbol{k}} \qquad (\hat{\boldsymbol{k}} \equiv \boldsymbol{k}/k), \tag{6}$$

или в ортогональных координатах: $\pi_{ij} = \delta_{ij} - \hat{k}_i\hat{k}_j$. Определим тензорную функцию Грина

$$\boldsymbol{G}(\boldsymbol{k}\omega) \equiv 4\pi\,(n^2\boldsymbol{\pi} - \boldsymbol{\varepsilon})^{-1}, \tag{7}$$

тогда из (5) и (4б) следует

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{P}, \quad \boldsymbol{H} = \boldsymbol{n}\times(\boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{P}). \tag{8}$$

Таким образом, проблема отыскания полей излучения в однородной анизотропной среде с известной проницаемостью $\boldsymbol{\varepsilon}$ при заданных источниках сводится в $\boldsymbol{k}\omega$-представлении к нахождению обратной матрицы — одной из стандартных задач линейной алгебры.

В Приложении (формула (П.40)) показано, что тензор (7) можно представить в виде следующей суммы трех диад:

$$\boldsymbol{G} = \sum_{\nu=1}^{3} \boldsymbol{G}_\nu = \sum_\nu G_\nu \boldsymbol{e}'_\nu \boldsymbol{e}_\nu, \tag{9}$$

$$G_\nu = \frac{4\pi}{(n^2 - n_\nu^2)\cos^2\rho_\nu} = \frac{4\pi}{\boldsymbol{e}_\nu\cdot(n^2\boldsymbol{\pi} - \boldsymbol{\varepsilon})\cdot\boldsymbol{e}'_\nu}, \tag{10}$$

где n_ν^{-2} и $\boldsymbol{e}_\nu$ — собственные значения и левые собственные векторы матрицы $\boldsymbol{\pi}\cdot\boldsymbol{\varepsilon}^{-1}$, $\boldsymbol{e}'_\nu$ — правые собственные векторы $\boldsymbol{\varepsilon}^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi}$ и ρ_ν — обобщенный угол анизотропии:

$$\begin{gathered}\cos^2\rho_\nu = \boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{\pi}\cdot\boldsymbol{e}'_\nu = \varepsilon_\nu/n_\nu^2,\\ \varepsilon_\nu \equiv \boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{\varepsilon}\cdot\boldsymbol{e}'_\nu, \quad |\boldsymbol{e}_\nu| = 1, \quad n_3^{-2} = 0, \quad \cos\rho_3 = 0.\end{gathered} \tag{11}$$

Согласно (8) и (9) функция Грина для магнитного поля равна

$$\boldsymbol{G}^{(H)} = \sum_{\nu=1}^{2} (\boldsymbol{n}\times\boldsymbol{e}'_\nu)\,\boldsymbol{e}_\nu G_\nu. \tag{12}$$

Нормальные волны. Обычно в оптике решаются граничные задачи, в которых источники поля находятся вне рассматриваемой области L^3 и поле является свободным, т. е. удовлетворяет однородным уравнениям Максвелла. Согласно (5) эти уравнения в $\boldsymbol{k}\omega$-представлении имеют вид

$$(n^2\boldsymbol{\pi} - \boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \boldsymbol{E}^0 = 0. \tag{13}$$

Умножив это равенство слева на $\boldsymbol{\varepsilon}^{-1}/n^2$, получим

$$(\boldsymbol{\varepsilon}^{-1} \cdot \boldsymbol{\pi} - n^{-2}\boldsymbol{I}) \cdot \boldsymbol{E}^0 = 0, \tag{14}$$

откуда следует, что свободное электрическое поле $\boldsymbol{E}^0(\boldsymbol{k}\omega)$ в общем случае является суперпозицией трех *нормальных волн* $\boldsymbol{E}^0_\nu$ с поляризацией $\boldsymbol{e}'_\nu$ и с определенной связью между ω и $\boldsymbol{k}$:

$$(ck/\omega)^2 \equiv n^2 = n_\nu^2(\boldsymbol{k}\omega) \quad (\nu = 1,\ 2), \tag{15а}$$

$$\boldsymbol{e}_3 \cdot \boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{k}\omega) \cdot \boldsymbol{e}'_3 = 0 \qquad (\nu = 3). \tag{15б}$$

Таким образом, в свободном поле (в отличие от вынужденного) ω и $\boldsymbol{k}$ не являются независимыми величинами. Величина n_ν называется коэффициентом преломления. Уравнение (15б) удовлетворяется, лишь если вектор $\boldsymbol{k}$ параллелен одной из главных осей $\boldsymbol{\varepsilon}$ [8] и в дальнейшем этот случай учитывать не будем (его можно считать предельным случаем для волн с $\nu = 1,2$).

Закон дисперсии. Уравнение (15) можно записать в эквивалентном виде (*уравнение Френеля*, см. [143]):

$$\det\{c^2k^2\boldsymbol{\pi} - \omega^2\boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{k}\omega)\} = 0. \tag{16}$$

В поглощающей среде $\boldsymbol{\varepsilon} \neq \boldsymbol{\varepsilon}^+$, так что n_ν — комплексные величины и уравнение Френеля удовлетворяется лишь при комплексных ω и (или) $\boldsymbol{k}$, что соответствует экспоненциальному затуханию ($\operatorname{Im}\omega < 0$) нормальных волн во времени и (или) пространстве. Пусть $\boldsymbol{k}$ — действительный вектор, тогда (15) определяет несколько комплексных функций $\omega = \omega_{\nu\mu}(\boldsymbol{k})$, где $\nu = 1, 2$ — индекс поляризации, а индекс μ учитывает появление дополнительных решений (15) вследствие частотной дисперсии $\varepsilon(\omega)$.

Решение уравнения Френеля при фиксированных ω, ν, μ и $\hat{\boldsymbol{k}}$ (т. е. функция, обратная к $\omega_{\nu\mu}(\boldsymbol{k})$) также может быть многозначным вследствие пространственной дисперсии [8]. Дополнительные решения с бо́льшим значением k соответствуют так называемым «новым» волнам, впервые рассмотренным Пекаром. Новые волны наблюдаются вблизи экситонных частот в кристаллах.

Многозначная функция $\omega_k \equiv \omega_{\nu\mu}(\boldsymbol{k})$, определяющая фазовую скорость нормальной волны $c/n_\nu = \omega_k/k$, называется *законом дисперсии*; совокупность пяти параметров $\{\boldsymbol{k}, \nu, \mu\} \equiv k$ мы будем называть модой, а комплексное число ω_k — собственной ча-

стотой моды. Заметим, что при фиксированном k корни уравнения (15) из-за множителя ω^2 двойные: $\omega_k^{(\pm)} = \pm ck/n_\nu(\omega_k^{(\pm)})$, однако можно показать, что числа $\omega_k^{(+)}$ и $\omega_k^{(-)}$ отличаются лишь знаками действительных частей. Решение с положительной действительной частью мы обозначим через ω_k:

$$\omega_k^{(+)} \equiv \omega_k, \quad \omega_k^{(-)} = -\omega_k^*, \quad \operatorname{Re}\omega_k > 0, \quad \operatorname{Im}\omega_k < 0. \tag{17}$$

Электрическое поле нормальной волны параллельно орту поляризации, определенному при $\omega = \omega_k^{(\pm)}$:

$$e_k^{(\pm)\prime} \equiv e_\nu'(k, \omega_k^{(\pm)}). \tag{18}$$

Итак, в свободном поле частота и длина волны жестко связаны законом дисперсии, а при наличии источников (в частности, при вычислении равновесного поля с помощью ФДТ — см. § 4.2) — независимы. В последнем случае закон дисперсии в форме (15а) ($n = \pm n_\nu$) можно рассматривать как условие «частотно-волнового» резонанса, при котором отклик электромагнитного «вакуума» в среде на возмущение резко возрастает (см. (9)).

Переход к kt-представлению. Умножив (8) на оператор Фурье $\int d\omega \exp(-i\omega t)$, получим

$$\boldsymbol{E}(kt) = \int dt' \boldsymbol{G}(k, t-t') \cdot \boldsymbol{P}(kt'), \tag{19}$$

$$\boldsymbol{G}(kt) \equiv \sum_{\nu=1}^{2} \boldsymbol{G}_\nu(kt) = \frac{1}{2\pi} \sum_{\nu=1}^{2} \int d\omega e^{-i\omega t} G_\nu(k\omega)\, \boldsymbol{e}_\nu' \rho_\nu. \tag{20}$$

Чтобы найти этот интеграл в явном виде, будем рассматривать подынтегральное выражение $f(\omega)$ как функцию комплексного переменного и воспользуемся теоремой вычетов, согласно которой интеграл по замкнутому контуру равен умноженной на $2\pi i$ сумме вычетов в полюсах $f(\omega)$, лежащих внутри контура:

$$\int_C f(\omega)\, d\omega = 2\pi i \sum_\mu \operatorname{Res}\{f(\omega_\mu)\}. \tag{21}$$

Функция $G_\nu(kt)$ — отклик моды на короткий импульс тока или поляризации в момент $t = 0$, и по принципу причинности она должна содержать множитель $\theta(t)$ (ср. (3.1.24)). Далее, функция $f(\omega)$ пропорциональна $\exp(\omega'' t)$, и поэтому контур интегрирования при $t > 0$ надо замыкать полуокружностью в нижней полуплоскости (где $\omega'' < 0$), а при $t < 0$ — в верхней. В последнем случае $\theta(t) = 0$ и, следовательно, спектральная функция Грина $G_\nu(k\omega)$ не должна иметь полюсов «вверху»: $\omega_\mu'' < 0$. Это условие обеспечивает затухание отклика при $t \to \infty$.

Вклад в интеграл (21) от полуокружности равен нулю из-за множителя $\exp(\omega'' t)$, так что с учетом (9) и (10)

$$\boldsymbol{G}_\nu(kt) = -4\pi i \theta(t) \sum_{\mu,\pm} \operatorname{Res}\left\{\frac{\boldsymbol{e}_\nu' \boldsymbol{e}_\nu e^{-i\omega t}}{(n^2 - n_\nu^2)\cos^2\rho_\nu}\right\}_{\omega=\omega_k^{(\pm)}}. \tag{22}$$

Вычет отношения $u(\omega)/w(\omega)$, в котором w имеет простой нуль в точке Ω, равен $u(\Omega)(dw/d\omega)_{\Omega}^{-1}$. Чтобы воспользоваться этим правилом, разложим $f(\omega)$ на простые дроби:

$$\frac{1}{n^2 - n_\nu^2} = \frac{\omega^2}{2c^2k}\left(\frac{1}{k - k_\nu} + \frac{1}{k + k_\nu}\right) \tag{23}$$

$$\left(k_\nu \equiv \frac{n_\nu \omega}{c} = \frac{\omega\sqrt{\varepsilon_\nu}}{c\cos\rho_\nu}\right).$$

В результате (22) принимает вид

$$G_\nu(kt) = \theta(t)\sum_\mu (g_k^{(+)} e^{-i\omega_k t} - g_k^{(-)} e^{i\omega_k^* t}), \tag{24}$$

$$g_k^{(\pm)} \equiv 2\pi i k\left[\frac{e_\nu' e_\nu}{\varepsilon_\nu}\left(\frac{\partial k_\nu}{\partial\omega}\right)^{-1}\right]_{\omega=\omega_k^{(\pm)}}. \tag{25}$$

Знание функции Грина для нормальных волн позволяет с помощью ФДТ (2.4.19) находить равновесные флуктуации макрополей (§ 4.2). Кроме того, по формуле (2.4.8) можно определить и коммутаторы полей, т. е. проквантовать феноменологические уравнения Максвелла.

Далее будем пренебрегать поглощением и пространственной дисперсией. Ниже будет показано, что при этом производную (25) можно выразить через групповую скорость, так что

$$G_\nu(kt) = 4\pi\theta(t)\sum_\mu e_\nu e_\nu \xi_k^2 \omega_k \sin\omega_k t, \tag{26}$$

где коэффициент ξ определен в (35). Сравнение (26) с (3.1.27) при учете $\dot{P} = j$ показывает, что электрическое поле в прозрачной среде в ξ^2 раз больше, чем в вакууме (при одинаковых сторонних поляризациях).

Пусть $P_\nu(kt) = P_0\delta(t)$, тогда согласно (19) и (26) поле в «моде» $k \equiv \{k, \nu, \mu\}$ будет, как и в случае вакуума, зависеть от времени гармонически с собственной частотой ω_k. В веществе, однако, орты поляризации имеют определенную ориентацию (в случае анизотропного вещества), и они могут быть комплексными и не поперечными относительно k. Кроме того, поле с фиксированным и волновым вектором k и типом поляризации ν в общем случае содержит много гармоник, отличающихся индексом μ. Но если нас интересует поле с частотами, близкими к одной из ветвей μ закона дисперсии, то мы можем его представить как сумму гармонических осцилляторов и легко перейти к квантовому описанию (аналогично § 3.2).

Квантование поля в среде. Рассмотрим энергию нормальной волны с амплитудой $E_k^{(+)}$, заключенную в объеме L^3. Из уравне-

ний Максвелла следует (см. [8], с. 97), что

$$\mathcal{H}_k = \frac{1}{4\pi}\int\limits_{-\infty}^{t} dt \int\limits_{L^3} d\boldsymbol{r}(\boldsymbol{E}\cdot\dot{\boldsymbol{D}} + \boldsymbol{H}\cdot\dot{\boldsymbol{H}}) = \\ = \frac{L^3}{4\pi}\left\{\left[\frac{\partial(\omega\varepsilon_\nu)}{\partial\omega}\right]_{\omega_k} |E_k^{(+)}|^2 + |H_k^{(+)}|^2\right\}. \qquad (27)$$

(дисперсией векторов поляризации для простоты пренебрегаем). Энергия магнитного поля в нормальной волне согласно (4б) и (11) пропорциональна величине

$$|\boldsymbol{n}_\nu \times \boldsymbol{e}_\nu|^2 = n_\nu^2[1 - (\boldsymbol{e}_\nu^* \cdot \boldsymbol{e}_3)(\boldsymbol{e}_3 \cdot \boldsymbol{e}_\nu)] = n_\nu^2 \boldsymbol{e}_\nu^* \cdot \boldsymbol{\pi} \cdot \boldsymbol{e}_\nu = \varepsilon_\nu,$$

поэтому ($E_k^{(-)} \equiv E_k^{(+)*}$)

$$\mathcal{H}_k = \frac{L^3}{4\pi}\left\{\left[\frac{\partial(\omega\varepsilon_\nu)}{\partial\omega}\right]_{\omega_k} + \varepsilon_\nu\right\}|E_k^{(+)}|^2 = \frac{L^3}{4\pi}\left[\frac{\partial(\omega^2\varepsilon_\nu)}{\omega\partial\omega}\right]_{\omega_k} E_k^{(-)}E_k^{(+)}. \qquad (28)$$

Будем далее считать амплитуды нормальной волны операторами, пропорциональными операторам a_k^+, a_k в представлении Шредингера (ср. (3.2.29)) с правилами коммутации (3.2.9):

$$E_k^{(+)} \to i\bar{c}_k a_k, \quad E_k^{(-)} \to -i\bar{c}_k a_k^+, \quad [E_k^{(+)}, E_k^{(-)}] = \bar{c}_k^2. \qquad (29)$$

Коэффициенты пропорциональности выберем так, чтобы произведение $\hbar\omega_k a_k^+ a_k$ равнялось энергии свободного поля в моде (28):

$$\bar{c}_k = \xi c_k = \xi\sqrt{2\pi\hbar\omega_k L^{-3}}, \qquad \xi^2 = 2\left[\frac{\partial(\omega^2\varepsilon_\nu)}{\omega\partial\omega}\right]^{-1}_{\omega_k}. \qquad (30)$$

Можно ожидать, что многие соотношения квантовой оптики для вакуума (§§ 3.2, 3.3) сохраняют силу для макрополя в прозрачном веществе при соответствующей замене ортов поляризации и умножении коэффициентов c_k на ξ_k. Следует подчеркнуть, однако, что *фотон в среде* (называемый также *поляритоном* или *светоэкситоном*) является *квазичастицей* со сложным законом дисперсии и конечным временем жизни. Представление поля как «газа» из независимых бозе-частиц имеет смысл лишь в приближении линейной оптики и при пренебрежении поглощением.

Соответствия (29) относятся к свободной волне с определенным направлением распространения. В общем случае их надо заменить на следующее соотношение между операторами в представлении

Гейзенберга (ср. (3.2.14)):

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t) = i\sum_k \boldsymbol{e}_k^* \bar{c}_k a_k(t)\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{э. с.}, \tag{31}$$

$$\boldsymbol{H}(\boldsymbol{r}t) = i\sum_k (\boldsymbol{n}_k \times \boldsymbol{e}_k^*)\, \bar{c}_k a_k(t)\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{э. с.}, \tag{32}$$

$$k \equiv \{\boldsymbol{k}, \nu, \mu\}.$$

Производную в (30) можно выразить через групповую скорость. Пренебрежем частотной дисперсией угла ρ_k между электрическим полем и индукцией, тогда

$$\xi_k^2 = \frac{\omega_k}{c^2 k \cos^2 \rho_k} \frac{\partial \omega_k}{\partial k}. \tag{33}$$

Нетрудно показать [8], что «сигнал» (т. е. огибающая пакета из нормальных волн) со средним волновым вектором $\boldsymbol{k}$ движется (в приближении $\omega_k'' = 0$ и $\partial^2\omega_k/\partial k^2 = 0$) без искажения, причем направление и скорость его распространения определяются вектором групповой скорости $\nabla\omega_k \equiv \boldsymbol{u}_k$. Пусть вектор $\boldsymbol{k}$ получает приращение $\Delta\boldsymbol{k} \parallel \boldsymbol{k}$, тогда собственная частота моды изменяется на $\Delta\omega_k = \boldsymbol{u}_k \cdot \Delta\boldsymbol{k}$, так что

$$\frac{\partial \omega_k}{\partial k} = u_k \cos \bar{\rho}_k, \tag{34}$$

где $\bar{\rho}_k$ — угол между $\boldsymbol{u}_k$ и $\boldsymbol{k}$. Если не учитывать пространственную дисперсию, то $\boldsymbol{u}_k \parallel (\boldsymbol{E}_k \times \boldsymbol{H}_k)$ и $\bar{\rho}_k = \rho_k$, так что

$$\xi^2 = \frac{u_k v_k}{c^2 \cos \rho_k}, \qquad \bar{c}_k = \sqrt{\frac{2\pi\hbar\omega_k u_k}{cL^3 n_k \cos \rho_k}}, \tag{35}$$

где $v_k \equiv c/n_k$ — фазовая скорость.

Представление $\omega\boldsymbol{r}$. Трехмерное фурье-преобразование выражения (9) определит функцию Грина, связывающую $\boldsymbol{E}$ и $\boldsymbol{P}$ в $\omega\boldsymbol{r}$-представлении. В случае изотропной среды без пространственной дисперсии, когда $\varepsilon = \boldsymbol{I}\varepsilon(\omega)$, преобразование дает ($\omega > 0$)

$$\boldsymbol{G}(\omega\boldsymbol{r}) = \frac{\omega^2}{c^2 r} e^{i\varphi} g(\varphi, \hat{\boldsymbol{r}}), \tag{36}$$

$$g(\varphi, \hat{\boldsymbol{r}}) = \boldsymbol{I}\left(1 + \frac{i}{\varphi} - \frac{1}{\varphi^2}\right) - \hat{\boldsymbol{r}}\hat{\boldsymbol{r}}\left(1 + \frac{3i}{\varphi} - \frac{3}{\varphi^2}\right) =$$
$$= \boldsymbol{\pi}\left(1 + \frac{i}{\varphi} - \frac{1}{\varphi^2}\right) - \hat{\boldsymbol{r}}\hat{\boldsymbol{r}}\left(\frac{2i}{\varphi} - \frac{2}{\varphi^2}\right), \tag{37}$$

$$\varphi \equiv k_\omega r, \quad \hat{\boldsymbol{r}} \equiv \boldsymbol{r}/r, \quad \boldsymbol{\pi} \equiv \boldsymbol{I} - \hat{\boldsymbol{r}}\hat{\boldsymbol{r}},$$

$$k_\omega \equiv \frac{\omega}{c}\sqrt{\varepsilon} = \frac{\omega}{\sqrt{2}\, c}\left(\sqrt{|\varepsilon| + \varepsilon'} + i\sqrt{|\varepsilon| - \varepsilon'}\right).$$

Формулу (36) можно также представить в виде

$$\boldsymbol{G}(\omega \boldsymbol{r}) = \left\{ \frac{\omega^2}{c^2} \boldsymbol{I} + \frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{r}} \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{r}} \right\} \frac{e^{ik_\omega r}}{r}. \tag{38}$$

В анизотропной среде трехмерное фурье-преобразование функции $\boldsymbol{G}(\omega \boldsymbol{k})$ можно выполнить в явном виде, лишь если точка наблюдения находится в дальней зоне относительно области с отличной от нуля поляризацией. С помощью диадного представления (9) можно показать, что

$$\boldsymbol{E}(\omega \boldsymbol{R}) = \frac{\omega^2}{c^2 R} \sum_{\nu=1}^{2} \frac{\boldsymbol{e}'_\nu}{\cos^2 \rho_\nu} \int d\boldsymbol{r} e^{i\boldsymbol{k}_\nu \boldsymbol{R} - \boldsymbol{k}_\nu \cdot \boldsymbol{r}} \boldsymbol{e}_\nu \cdot \boldsymbol{P}(\omega \boldsymbol{r}), \tag{39}$$

$$k_\nu \equiv n_\nu \omega / c = \frac{\omega}{c \cos \rho_\nu} \sqrt{\boldsymbol{e}_\nu \cdot \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \boldsymbol{e}'_\nu}, \tag{40}$$

где $\boldsymbol{k}_\nu$ — комплексный волновой вектор ν-й нормальной волны, параллельный $\boldsymbol{R}$ и удовлетворяющий дисперсионному уравнению $\omega = \omega_\nu(\boldsymbol{k})$, и $\boldsymbol{e}_\nu$, $\boldsymbol{e}'_\nu$ — соответствующие единичные векторы поляризации.

Подчеркнем, что в анизотропной среде длина нормальных волн и показатель преломления зависят от направления распространения. Например, для необыкновенных волн в прозрачном одноосном кристалле из уравнения Френеля (15) следует

$$n^e(\alpha) = \left(\frac{\cos^2 \alpha}{\varepsilon_x} + \frac{\sin^2 \alpha}{\varepsilon_z} \right)^{-1/2}, \tag{41}$$

где α — угол между $\boldsymbol{k}$ и оптической осью кристалла и $\varepsilon_x = \varepsilon_y$, ε_z — главные (собственные) значения тензора диэлектрической проницаемости. Обратим внимание, что связь (41) в полярных координатах изображается эллипсом, лишь если оба главных значения положительны. Если же ε_x или ε_z отрицательны, то (41) соответствует пара гипербол.

ГЛАВА 4

ТЕПЛОВОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ В ЛИНЕЙНОМ ПРИБЛИЖЕНИИ

Хотя тепловое излучение (ТИ) нагретого вещества — классический объект физики, изучение которого положило почти сто лет назад начало квантовой механики, некоторые его особенности, связанные с многофотонными переходами, мало исследованы. Предварительно в этой главе будет рассмотрена статистика теплового электромагнитного поля в однофотонном приближении. Влиянию многофотонных элементарных процессов на ТИ посвящена следующая глава.

Следует различать две основные постановки задачи. В первой рассматривается равновесное поле в бесконечном пространстве (пустом или заполненном веществом) или внутри замкнутой полости. Эта задача относится к равновесной статистической физике. Во второй рассматривается ТИ в вакууме, создаваемое образцом конечных размеров (или занимающим полупространство, слой), температура которого поддерживается постоянной во времени и пространстве (несмотря на радиационное охлаждение). Формально такая задача входит в сферу влияния неравновесной статистической физики. Как следует из дальнейшего, связь между ТИ и равновесным полем не всегда тривиальна.

В настоящей главе равновесное поле в вакууме и в линейной сплошной среде обсуждается кратко в §§ 4.1 и 4.2 соответственно, а следующие разделы посвящены ТИ. В § 4.3 дается краткое описание макроскопического метода расчета ТИ с помощью ФДТ. Этот метод развивался в основном Левиным и Рытовым [144, 162], получившими общую формулу («обобщенный закон Кирхгофа»), выражающую вторые моменты поля через диэлектрическую проницаемость и функцию Грина для макроскопических уравнений Максвелла. В § 4.4 выводится новая форма обобщенного закона Кирхгофа (ОЗК), выражающая моменты поперечного поля через матрицу упругого рассеяния $U_{kk'}$ по отношению к фурье-амплитудам E_k (или операторам a_k) [137, 184]. Далее, в § 4.5 ОЗК выводится другим способом — с помощью однофотонного кинетического уравнения для поля, из которого следует гауссов характер статистики ТИ. Наконец, в §§ 4.6 и 4.7 рассматривается связь моментов поля в дальней зоне излучателя с моментами операторов рождения и уничтожения.

§ 4.1. Статистика равновесного поля в свободном пространстве

Статистические свойства «черного излучения», т. е. свободного электромагнитного поля, находящегося в тепловом равновесии, хорошо известны [1, 143, 163], и мы здесь лишь напомним некоторые моменты (в основном логического и терминологического характера).

Равновесный статистический оператор. Как отмечалось в § 2.2, вся информация о произвольной квантовостатистической модели (называемой *системой*) содержится в статистическом операторе ρ. Термин *равновесный* означает, что система находится в контакте с термостатом и ее статистика описывается каноническим ансамблем Гиббса, для которого

$$\rho = \rho^{(T)} = Z^{-1} e^{-\beta \mathscr{H}}, \tag{1}$$
$$Z \equiv \mathrm{Sp}\, e^{-\beta \mathscr{H}}, \quad \beta \equiv 1/\varkappa T.$$

Разложение поля по модам (по плоским волнам в случае бесконечного пространства или по собственным типам колебаний в случае замкнутой полости с зеркальными стенками) позволяет представить гамильтониан поля в виде диагональной квадратичной формы (3.2.15), так что (1) факторизуется:

$$\rho^{(T)} = \prod_k \rho_k^{(T)} = \prod_k Z_k^{-1} \exp(-\hbar\beta\omega_k a_k^+ a_k), \tag{2}$$
$$Z_k^{-1} \equiv 1 - \exp(-\hbar\beta\omega_k).$$

Эта формула означает, что моды статистически независимы.

Характеристическая функция. Зная ρ, можно найти распределение любой наблюдаемой величины или найти ее нормально-упорядоченную χ-функцию (§ 3.3). Согласно (3.3.39) для одной моды

$$\chi_k^{(T)} = \exp(-\mathscr{N}_k \mu_k \mu_k^*), \tag{3}$$

где $\mathscr{N}_k$ — среднее число фотонов в моде:

$$\langle N_k \rangle^{(T)} = \mathscr{N}_k \equiv (\exp \hbar\beta\omega_k - 1)^{-1}. \tag{4}$$

Это число называют также *параметром вырождения*. Важнейшее свойство χ-функции заключается в том, что χ-функция суммы независимых случайных величин равна произведению их χ-функций. В результате из (3) легко получаем χ-функцию всего равновесного поля:

$$\chi^{(T)} = \exp\left(-\sum_k \mathscr{N}_k \mu_k \mu_k^*\right) \equiv \exp(-\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{\mathscr{N}} \cdot \boldsymbol{\mu}^*). \tag{5}$$

Статистика фотонов. Другой интересной характеристикой поля является распределение числа фотонов $P(N)$ в какой-либо моде.

С помощью (2.2.26) и (2) легко находим, что это распределение будет «дискретно-больцмановским» [1]) (индекс k опускаем):

$$P^{(T)}(N) = \mathrm{Sp}\,(\rho\,|\,N\rangle\langle N\,|) = Z^{-1}e^{-\hbar\beta\omega N}\sum_{N'}\delta_{NN'}. \tag{6}$$

Сумма в (6) обеспечивает дискретность распределения. Заметим, что распределение (6) монотонно спадает с ростом аргумента, в отличие от пуассоновского (3.3.22) при $\langle N\rangle > 2$.

Удобной мерой интенсивности относительных флуктуаций случайной величины является корень из дисперсии (т. е. из второго центрального момента), деленный на первый момент. Для теплового распределения

$$\delta N \equiv \frac{\sigma}{\langle N\rangle} = \sqrt{\frac{\langle N^2\rangle}{\langle N\rangle^2} - 1} = \sqrt{\frac{1}{\mathcal{N}} + 1}\,. \tag{7}$$

Второе слагаемое под корнем, отсутствующее в случае пуассоновской статистики, приводит к большим флуктуациям даже при $\mathcal{N} \gg 1$. Такой же результат получается, если применить общие принципы статистической физики к неразличимым бозе-частицам. Иногда говорят, что первое и второе слагаемые под корнем в (7) соответствуют корпускулярной и волновой «компонентам» в дуализме «волна-частица» и что наличие второго слагаемого характеризует стремление фотонов группироваться вместе.

Если наблюдаемой величиной является общее число фотонов N' в нескольких близких по частоте модах $\left(N' = \sum_{k=1}^{g} N_k\right)$, то из (6) следует (см. вывод в [2])

$$\delta N' = \sqrt{\frac{1}{g}\left(\frac{1}{\mathcal{N}} + 1\right)} = \sqrt{\frac{1}{\langle N'\rangle} + \frac{1}{g}}\,. \tag{7а}$$

Таким образом, относительные флуктуации падают с ростом числа степеней свободы. Надо сказать, что в экспериментах по «счету фотонов» с помощью ФЭУ измеряется на N', а число фотоэлектронов n, выбиваемых из фотокатода с квантовой эффективностью $\eta < 1$, поэтому наблюдаемые относительные флуктуации равны

$$\delta n = \sqrt{\frac{1}{g}\left(\frac{1}{\eta\mathcal{N}} + 1\right)} = \sqrt{\frac{1}{\langle n\rangle} + \frac{1}{g}}\,. \tag{7б}$$

Здесь первое слагаемое под корнем обусловлено дробовым шумом, т. е. дискретностью заряда. Число мод g, которые «видит» детектор, определяется установленными перед ним пространственными и частотными фильтрами и временем счета (§ 4.6). Впрочем, мы здесь перешли уже к свойствам ТИ, а не равновесного поля.

---

[1]) Его называют также геометрическим, так как оно образует геометрическую прогрессию, или распределением Бозе — Эйнштейна.

До сих пор речь шла о распределении статических величин или о средних от нескольких одновременных операторов. Однако переход к многовременным наблюдаемым, т. е. к функциям корреляции, тривиален, так как в случае свободного поля операторы a_k зависят от времени гармонически. Например,

$$\langle a^+(t)a(t')\rangle^{T)} = \mathcal{N} e^{i\omega(t-t')}. \tag{8}$$

С помощью (3.2.20) это выражение можно представить в виде

$$\langle a^+(t)a(0)\rangle^{(T)} = -\mathcal{N}\,[a^+(t),\ a(0)] = \mathcal{N}\,(G(t) + G^*(-t)). \tag{9}$$

Эта связь между вторым моментом, коммутатором и функцией Грина в равновесных системах согласно ФДТ (§ 2.4) универсальна (если под $\mathcal{N}$ в случае негармонических переменных понимать оператор $[\exp(-i\hbar\beta\partial/\partial t) - 1]^{-1}$). Она позволяет сразу выразить вторые моменты для компонент электрического или магнитного поля (или для их фурье-образов) через соответствующие функции Грина, что мы и сделаем в следующем параграфе для пространства, заполненного средой.

§ 4.2. Флуктуации макроскопического поля в веществе

Формально здесь также можно исходить из ансамбля Гиббса, однако чтобы сразу исключить не интересующие нас молекулярные переменные и выразить моменты поля через макрохарактеристику среды — диэлектрическую восприимчивость,— проще воспользоваться ФДТ (§ 2.4). Обычно эту задачу решают в два этапа [143, 144]. На первом полагают флуктуирующим параметром поляризацию среды P и находят с помощью ФДТ $\langle P^2\rangle$, а на втором переходят от P к электрическому полю E с помощью уравнений Максвелла: $\langle E^2\rangle = G^2\langle P^2\rangle$ (здесь G — функция или оператор Грина). В однородной среде, однако, можно сразу считать флуктуирующим параметром поле. Ниже мы сравним эти два метода расчета равновесных флуктуаций поля в $\omega\boldsymbol{k}$-представлении.

Далее мы найдем $\langle E^2\rangle$ в $\boldsymbol{k}t$-представлении и обсудим возможность наблюдения равновесных величин. В заключение этого раздела будут получены простые выражения для равновесного $\omega\boldsymbol{k}$-спектра в случае изотропной среды и однополюсной аппроксимации дисперсии.

Будем исходить из следующего выражения для энергии взаимодействия:

$$\mathcal{V} = -\int d\boldsymbol{r}\boldsymbol{P}\cdot\boldsymbol{E} = -8\pi^3 v^{-1}\sum \boldsymbol{P}_{\boldsymbol{k}}\cdot\boldsymbol{E}_{\bar{\boldsymbol{k}}}. \tag{1}$$

Двухэтапный расчет. Положим в (2.4.1) параметром системы f_j компоненту поляризации $P_{k\alpha}$, тогда из (1) следует, что в качестве внешней силы надо взять $8\pi^3 E_{\bar{k}\alpha}/v$. Переходя к спектральным ве-

личинам и определяя восприимчивость среды согласно $\boldsymbol{P}_{k\omega} = \chi_{k\omega}\cdot\boldsymbol{E}_{k\omega}$, находим соответствие

$$\chi_{jj'} \to (2\pi)^{-3} v\delta_{k\bar{k}'}\chi_{k\omega\alpha\alpha'} = (2\pi)^{-3}\delta(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}')\chi_{k\omega\alpha\alpha'}, \tag{2}$$

так что из (2.4.24) следует

$$\langle \boldsymbol{P}_{k\omega}\boldsymbol{P}_{k'\omega'}\rangle = \frac{i\hbar}{(2\pi)^4}\delta(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{k}')\delta(\omega+\omega')\mathcal{N}_{\omega'}(\chi_{k\omega}-\widetilde{\chi}_{\bar{k}\bar{\omega}}). \tag{3}$$

Согласно (2.4.32) $\chi_{k\omega} = \overset{*}{\chi}_{\bar{k}\bar{\omega}}$, поэтому

$$\langle \boldsymbol{P}\boldsymbol{P}'\rangle_{k\omega} = \frac{i\hbar}{(2\pi)^4}\mathcal{N}_{\omega'}(\chi_{k\omega}-\overset{+}{\chi}_{k\omega}), \tag{4}$$

где индексы $\boldsymbol{k}, \omega$ в левой части означают, что соответствующие δ-функции опущены.

На втором этапе $\boldsymbol{P}_{k\omega}$ подставляем в качестве ланжевеновой силы в неоднородные уравнения Максвелла, рассматриваемые как стохастические уравнения для поля. В спектральной форме эти уравнения имеют вид (§ 3.4)

$$\boldsymbol{E}_{k\omega} = \boldsymbol{G}_{k\omega}\cdot\boldsymbol{P}_{k\omega}, \tag{5}$$

$$\boldsymbol{G}_{k\omega} = \left(\frac{n^2}{4\pi}\boldsymbol{\pi}_{\boldsymbol{k}} - \chi_{k\omega}\right)^{-1}. \tag{6}$$

С помощью (5) образуем матрицу вторых моментов поля

$$\langle \boldsymbol{E}_{k\omega}\boldsymbol{E}_{k'\omega'}\rangle = \boldsymbol{G}_{k\omega}\cdot\langle \boldsymbol{P}_{k\omega}\boldsymbol{P}_{k'\omega'}\rangle\cdot\widetilde{\boldsymbol{G}}_{k'\omega'} \tag{7}$$

и, подставив (4), находим

$$\langle \boldsymbol{E}\boldsymbol{E}'\rangle_{k\omega} = \frac{i\hbar}{(2\pi)^4}\mathcal{N}'\boldsymbol{G}\cdot(\chi-\chi^+)\cdot\boldsymbol{G}^+. \tag{8}$$

Прямой путь. С другой стороны, флуктуации равновесного поля в бесконечной среде логичней и проще находить, полагая в ФДТ именно поле наблюдаемой величиной, а поляризацию среды — заданной силой:

$$f_j \to E_{k\alpha}, \quad F_j \to 8\pi^3 v^{-1}\boldsymbol{P}_{\bar{k}\alpha}. \tag{9}$$

Аналогично (4) находим

$$\langle \boldsymbol{E}\boldsymbol{E}'\rangle_{k\omega} = \frac{i\hbar}{(2\pi)^4}\mathcal{N}'(\boldsymbol{G}-\boldsymbol{G}^+). \tag{10}$$

Какая же формула правильная — (8) или (10)? Легко с помощью (6) проверить, что они одинаковы, так как

$$\chi-\chi^+ = (\boldsymbol{G}^{-1})^+ - \boldsymbol{G}^{-1} = \boldsymbol{G}^{-1}\cdot(\boldsymbol{G}-\boldsymbol{G}^+)\cdot(\boldsymbol{G}^+)^{-1} \tag{11}$$

(последнее равенство является матричным аналогом равенства $\operatorname{Im}(z^{-1}) = -\operatorname{Im} z/|z|^2$).

Итак, электромагнитные «шумы» внутри вещества пропорциональны неэрмитовой части функции Грина для уравнений Максвелла $\boldsymbol{G}$, которую можно выразить через линейную восприимчивость χ (сама функция Грина является «восприимчивостью вакуума» по отношению к действующим на него зарядам). В гл. 6 будет показано, как эта связь используется для измерения χ в ИК-диапазоне. Заметим, что правая часть (10) без фактора $\mathcal{N}$ равна согласно (2.4.25) коммутатору операторов невозмущенного поля $\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}\omega}$.

Подчеркнем, что справедливость (10) не ограничена предположением о линейности вещества. Нелинейность изменяет второй момент поля лишь снаружи вещества (с этим обстоятельством связан любопытный парадокс — см. § 5.1), т. е. в рамках второй постановки задачи. Кроме того, нелинейность нарушит связь (6) (так как возникнут дополнительные каналы потерь и дисперсии за счет трансформации волн с разными частотами) и приведет к появлению высших разночастотных моментов как внутри, так и снаружи (см. следующую главу).

В окнах прозрачности вещества матрица χ становится эрмитовой, однако матрица $\boldsymbol{G} - \boldsymbol{G}^+$ остается конечной — при малом поглощении она пропорциональна $\delta(\omega \pm \omega_k)$, где ω_k — дисперсионная функция (§ 3.4).

Аналогичные (10) формулы имеют место и в других представлениях ($\boldsymbol{kt}$, $\boldsymbol{r}\omega$, $\boldsymbol{rt}$), так что задача определения равновесных вторых моментов сводится к отысканию функций Грина в соответствующем представлении, т. е. к решению динамической задачи — феноменологической или микроскопической (заметим, что часто представляет интерес обратная задача вычисления восприимчивости с помощью равновесных моментов). Например, $\boldsymbol{r}\omega$-флуктуации в изотропной среде определяются через $\varepsilon(\omega)$ мнимой частью (3.4.36) (ср. с формулой (90.23) в [143], полученной двухэтапным методом).

***kt*-представление.** Найдем моменты равновесного поля в $\boldsymbol{kt}$-представлении. Из (9) следует

$$\chi_{jj'} \to (2\pi)^{-3} v \delta_{\boldsymbol{k}\bar{\boldsymbol{k}}'} \boldsymbol{G}_{\alpha\alpha'}(\boldsymbol{kt}), \tag{12}$$

так что согласно временной форме ФДТ (2.4.19)

$$\langle \boldsymbol{E}(\boldsymbol{kt})\, \boldsymbol{E}(\boldsymbol{k}'0)\rangle = \frac{i\hbar\delta(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{k}')}{8\pi^3(\hat{\mathcal{R}}-1)} \{\boldsymbol{G}(\boldsymbol{kt}) - \widetilde{\boldsymbol{G}}(\bar{\boldsymbol{k}}\bar{t})\}, \tag{13}$$

где $\hat{\mathcal{R}} = \exp(-i\hbar\beta\partial/\partial t)$ и $\boldsymbol{G}(\boldsymbol{kt})$ можно выразить через $\chi(\boldsymbol{k}\omega)$ с помощью (3.4.25). В прозрачной среде без пространственной дисперсии из (3.4.26) следует

$$\langle E_\alpha(\boldsymbol{kt})\, E_\beta(\boldsymbol{k}'0)\rangle = \delta(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{k}') \sum_{\nu\mu} \frac{\hbar\omega u_\alpha e_\beta}{4\pi^2 cn\cos\rho} [(\mathcal{N}+1)e^{-i\omega t} + \mathcal{N}e^{i\omega t}], \tag{14}$$

где все величины берутся при $\omega = \omega_{\boldsymbol{k}\nu\mu}$.

Проблема наблюдения. Естественно поставить вопрос, что же «на самом деле» является *наблюдаемой* и что *силой*. Эквивалентность формул (8) и (10) показывает некорректность этого вопроса в модели бесконечного или замкнутого пространства. В замкнутой системе, по определению, все параметры ($\boldsymbol{E}$, $\boldsymbol{P}$, χ, $\boldsymbol{G}$) ненаблюдаемы, она является «вещью в себе». Чтобы увидеть черное излучение в замкнутой полости, в ней надо проделать отверстие. Но мы тогда приходим ко второй постановке задачи — о ТИ снаружи вещества, причем теперь надо сделать дополнительное предположение о малости радиационного охлаждения.

Иначе говоря, мы всегда наблюдаем неравновесные или квазиравновесные процессы, например, процесс нагрева холодного детектора раскаленным источником (заметим, что детектор с инверсией населенностей, наоборот, охлаждается). Слабая связь зарядов с детектором и сильная с термостатом-подогревателем ставит $\boldsymbol{E}$ и $\boldsymbol{P}$ в неравноправное положение. Например, одиночная молекула, сильно взаимодействующая с термостатом и слабо — с полем, или молекулярный пучок вблизи источника являются простейшими моделями, в которых дипольные моменты в первом приближении могут считаться равновесными. Радиационные поправки дают естественное уширение и лембовский сдвиг линий, а также приводят к слабому двухфотонному излучению в области прозрачности (§ 5.1).

Однако имеются экспериментальные методы «заглянуть» в макроскопическую систему, практически не возмущая ее. Например, один из эффектов нелинейной оптики — комбинационное рассеяние света на поляритонах — дает возможность измерить равновесные моменты поля и закон дисперсии поляритонов в области малых $\boldsymbol{k}$ (§ 6.6). При рассеянии нейтронов или рентгеновских волн измеряется дисперсия $\omega_{\boldsymbol{k}}$ поляритонов или других элементарных возбуждений конденсированного вещества во всей зоне Бриллюэна.

Флуктуации поля в изотропной среде. Пусть диэлектрическая постоянная является скаляром, тогда (см. Приложение и § 3.4) тензор $\boldsymbol{G}_{\boldsymbol{k}\omega}$ диагонален в системе координат, связанной с направлением $\boldsymbol{k}$, и имеет компоненты

$$G_{xx} = G_{yy} = \frac{4\pi}{n^2 - \varepsilon_{\omega k}}, \quad G_{zz} = -\frac{4\pi}{\varepsilon_{\omega k}}, \tag{15}$$

где $n \equiv ck/|\omega|$. Диагональность тензора Грина обеспечивает согласно (10) независимость декартовых компонент поля: $\langle E_\alpha E_\beta \rangle \sim \delta_{\alpha\beta}$. Подстановка (15) в (10) позволяет выразить моменты поля через температуру и диэлектрическую проницаемость:

$$\langle E^+ E \rangle_{k\omega x} = \frac{\hbar \mathcal{N}}{2\pi^3} \frac{\varepsilon''}{(n^2 - \varepsilon')^2 + \varepsilon''^2}, \tag{16}$$

$$\langle E^+ E \rangle_{k\omega z} = \frac{\hbar \mathcal{N} \varepsilon''}{2\pi^3 |\varepsilon|^2}. \tag{17}$$

Пусть пространственной дисперсии нет, тогда диэлектрическую проницаемость можно выразить через показатель преломления и коэффициент поглощения следующим образом:

$$k_\omega + \frac{i}{2}\alpha_\omega = \frac{|\omega|}{c}\sqrt{\varepsilon_\omega}, \quad n_\omega = \frac{ck_\omega}{|\omega|}. \tag{18}$$

В области слабого поглощения (где $\varepsilon'' \ll \varepsilon'$)

$$n_\omega \approx \sqrt{\varepsilon'_\omega}, \quad \alpha_\omega \approx \frac{|\omega|\,\varepsilon''_\omega}{c\sqrt{\varepsilon'_\omega}} = \frac{\omega^2\varepsilon''_\omega}{c^2 k_\omega}, \tag{19}$$

так что $\boldsymbol{k}\omega$-спектр флуктуаций поперечного поля выражается через независимо измеряемые величины α, n, T:

$$\langle E^+E\rangle_{k\omega x} = \frac{\hbar\omega^2\mathcal{N}}{2\pi^3c^2}\frac{\alpha_\omega k_\omega}{(k^2-k_\omega^2)^2+\alpha_\omega^2k_\omega^2} \approx \frac{\hbar\omega^2\mathcal{N}}{2\pi^3c^2\alpha_\omega k_\omega}\frac{1}{1+4(k-k_\omega)^2/\alpha_\omega^2}. \tag{20}$$

Итак, зависимость спектра флуктуаций от k имеет лоренцеву форму с шириной, равной коэффициенту поглощения. Поперечные коротковолновые флуктуации поля с данной частотой при отсутствии пространственной дисперсии падают, как $1/k^4$ (при $k \gg k_\omega$ и в приближении независимости α от k). В окнах прозрачности $\alpha \to 0$ и $\langle E^2\rangle \sim \delta(k-k_\omega)$.

Рассмотрим теперь спектр флуктуаций в случае однополюсной аппроксимации:

$$\varepsilon_\omega = \varepsilon_\infty\left(1+\frac{a}{x-i}\right), \tag{21}$$

$$x \equiv (\omega_0-\omega)/\gamma, \quad a \equiv (\omega_l-\omega_0)/\gamma,$$

где ω_0, γ и a — частота, ширина и «сила» резонанса, а ω_l — частота, на которой ε'_ω обращается в нуль (полагаем $\omega \sim \omega_0 \gg \gamma$). Подстановка (21) в (16) дает

$$\langle E^+E\rangle_{k\omega x} = \frac{\hbar\mathcal{N}}{2\pi^3\varepsilon_\infty}f_0(x, y), \tag{22}$$

$$f_0 \equiv \frac{a}{y^2+(xy-a)^2}, \qquad y \equiv \frac{c^2k^2}{\omega^2\varepsilon_\infty}-1. \tag{23}$$

Переменная y является мерой отклонения k от «собственного» значения $k_0 = \sqrt{\varepsilon_\infty}\,\omega_0/c$ в отсутствие резонанса. При небольших отклонениях, когда $\omega \sim \omega_0$ и $k \sim k_0$, имеем

$$y \approx \frac{k^2}{k_0^2}-1 \approx 2\frac{k-k_0}{k_0}. \tag{24}$$

Условия максимума функции f_0 приводят к различным определениям «закона дисперсии» для флуктуаций. Так, из равенства $\partial f_0/\partial x = 0$ находим условие частотного максимума флуктуаций

поперечного поля с фиксированным значением k:

$$x_{\max}(y) = \frac{a}{y}, \quad n_\omega^2 = \bar{\varepsilon}_\omega \equiv \varepsilon_\infty \left(1 + \frac{a}{x}\right). \tag{25}$$

Таким образом, положение частотного максимума определяется «исправленной» диэлектрической функцией без мнимого слагаемого в знаменателе, которой соответствует закон дисперсии без аномального участка (см. рис. 4).

Если же интересоваться положением максимума флуктуаций в зависимости от k при фиксированной частоте, то из условия $\partial f_0/\partial y = 0$ найдем «обычный» закон дисперсии с аномальным участком:

$$y_{\max}(x) = \frac{ax}{1+x^2}, \quad n_\omega^2 = \varepsilon'_\omega = \varepsilon_\infty \left(1 + \frac{ax}{1+x^2}\right). \tag{26}$$

Наконец, подставив (21) в (17), найдем независящий от k спектр продольных флуктуаций поля:

$$\langle E^+E\rangle_{k\omega z} = \frac{\hbar\mathcal{N}}{2\pi^3\varepsilon_\infty}\frac{a\gamma^2}{(\omega-\omega_l)^2+\gamma^2} = \frac{\hbar\mathcal{N}}{2\pi^3\varepsilon_\infty}\frac{a}{(x+a)^2+1}. \tag{27}$$

Сравнение (22) с (27) показывает, что тепловое поле с данной частотой по мере уменьшения длины волны становится все более продольным.

§ 4.3. Тепловое излучение нагретых тел

Как найти яркость и другие статистические параметры поля ТИ, излучаемого нагретым (точнее, подогреваемым) телом? Естественно предположить, что состояние такого тела почти равновесное, и попытаться, не прибегая к сложным микромоделям, выразить ТИ через равновесное поле в вакууме или внутри такого же тела бесконечных размеров и другие макропараметры тела. Ниже мы рассмотрим несколько вариантов такого феноменологического подхода к задаче.

Применение ФДТ. Предположение о сильной связи с термостатом (т. е. пренебрежение реакцией излучения и радиационным охлаждением) позволяет для решения неравновесной проблемы о ТИ использовать равновесные моменты поляризации (4.2.4) или токов, полученные с помощью ФДТ. Как и при выводе (4.2.8), сперва решаются феноменологические уравнения Максвелла (линейные в однофотонном приближении) при заданных граничных условиях и сторонних источниках, т. е. отыскивается функция Грина G — «восприимчивость» электромагнитного вакуума к действию движущихся зарядов. Далее образуются вторые моменты для напряженностей электрического и магнитного поля, и в результате получаются формулы вида (4.2.8).

Однако теперь задача пространственно-неоднородна — $\chi = \chi(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}', \omega)$, $G = G(\boldsymbol{k}, \boldsymbol{k}', \omega)$,— и связь $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{k}, \omega)$ с $\boldsymbol{P}(\boldsymbol{k}, \omega)$ становится интегральной, а не алгебраической. В результате разложение по плоским волнам теряет свои преимущества [1]), и проблема сводится к определению функций Грина $\boldsymbol{G}(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{r}', \omega)$ или $\boldsymbol{G}(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{r}', t)$, выражающих поле в точке $\boldsymbol{r}$ через поляризацию или ток в точке $\boldsymbol{r}'$. Решения феноменологических уравнений Максвелла (как и восприимчивость вещества) должны удовлетворять условию симметрии Онсагера (2.4.21), которое в электродинамике называется теоремой взаимности [143, 144] и имеет форму

$$G(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{r}', \omega, \boldsymbol{B})_{\alpha\beta} = G(\boldsymbol{r}', \boldsymbol{r}, \omega, \overline{\boldsymbol{B}})_{\beta\alpha} \tag{1}$$

или в символическом виде: $\boldsymbol{G} = \widetilde{\boldsymbol{G}}$. При вычислении моментов поля в $\boldsymbol{r}$ через источник в $\boldsymbol{r}'$ можно с помощью (1) использовать готовые решения дифракционных задач с обратным расположением источника и точки наблюдения. В книге Левина и Рытова [144] имеются многочисленные интересные примеры применения этой процедуры, и мы не будем их здесь повторять. Отметим лишь, что в оптических экспериментах измеряются нормально-упорядоченные моменты свободного поля $\langle E^{(-)}E^{(+)}\rangle$, которые определяются через такие же моменты источников, и поэтому здесь в формулах типа (4.2.4) фигурирует функция Планка $\mathcal{N}$ без нулевых флуктуаций, которые появляются при вычислении симметризованных моментов.

Итак, ФДТ позволяет представить моменты ТИ через параметры феноменологической теории — макроскопическую восприимчивость χ и функцию Грина G, зависящую от χ и геометрии излучающего тела (и, возможно, других холодных тел — экранов и т. д.). Заметим, однако, что эти величины непосредственно неизмеримы (по крайней мере в оптическом диапазоне), и они имеют чисто теоретическое содержание в рамках традиционного макроскопического подхода с исключенными переменными вещества (§ 3.4). Этот подход не является единственным (например, можно построить теорию поля в кристалле непосредственно в терминах элементарных возбуждений — поляритонов, не прибегая к понятию χ), и, кроме того, последовательное микроскопическое вычисление кинетического параметра χ встречается со значительными трудностями (связанными с различием действующего и макроскопического поля, с учетом пространственной дисперсии и т. д.).

В связи со сказанным представляет, по-видимому, интерес альтернативная формулировка теории ТИ в терминах непосред-

[1]) Для симметричных тел — шара, цилиндра — удобно применять разложение по соответствующим ортогональным функциям [144]. Разложение по временным гармоникам сохраняет смысл всегда в силу стационарности равновесных моментов.

ственно (или наиболее непосредственно) измеримых параметров, независящих от выбора теоретической модели (для таких «операциональных» величин можно указать более или менее реалистичную операцию для их измерения).

В квантовой оптике обычно постулируется, что наблюдаемой величиной является вероятность возбуждения или ионизации одного из атомов детектора. Эту вероятность с помощью теории возмущений можно выразить в свою очередь через нормально-упорядоченные вторые моменты свободного поля, падающего на детектор и усредненного в соответствии с его геометрией и частотной характеристикой [1]. В результате измеряемой величиной в оптических экспериментах можно считать интенсивность света в свободном пространстве. Кроме того, с помощью интерферометров можно сравнивать фазу, а с помощью нескольких детекторов можно определить и высшие моменты [1].

Таким образом, наиболее общая феноменологическая теория ТИ должна устанавливать связи между моментами ТИ данного тела и его оптическими свойствами, измеряемыми с помощью пробного поля от другого источника, иначе говоря, между спонтанными и вынужденными эффектами для образца в целом.

Закон Кирхгофа. Первая такая связь была установлена еще в прошлом веке Кирхгофом (ссылки и цитаты см. в [166]). В простейшем варианте (без учета рассеяния и люминесценции [163]) закон Кирхгофа утверждает пропорциональность излучательной способности $J_{\boldsymbol{k}}$ (данного участка поверхности тела на данных частоте ω и направлении распространения $\boldsymbol{k}/k$) поглощательной способности $\mathcal{A}_{\bar{\boldsymbol{k}}}$, т. е. доле поглощаемой мощности этого же участка поверхности по отношению к пробному лучу с обратным направлением распространения.

По существу $J_{\boldsymbol{k}}$ отличается от спектральной яркости ТИ $S_{\omega\Omega}$ лишь тривиальным множителем $\cos\vartheta$, где ϑ — угол между $\boldsymbol{k}$ и нормалью к поверхности в рассматриваемой точке: $J_{\boldsymbol{k}} = S_{\omega\Omega}\cos\vartheta$. Далее, согласно (1.1.26) спектральную яркость света удобно измерять в единицах «яркости вакуума» $S_{\omega\Omega}^{\text{вак}} \equiv \hbar\omega^3/8\pi^3c^2$, т. е. числом фотонов на моду $N = S_{\omega\Omega}/S_{\omega\Omega}^{\text{вак}}$. Таким образом, закон Кирхгофа для света одной поляризации можно представить в виде

$$N_{\boldsymbol{k}}(\boldsymbol{B}) = \mathcal{A}_{\bar{\boldsymbol{k}}}(\bar{\boldsymbol{B}})\,\mathcal{N}_{\omega}, \tag{2}$$

где мы учли возможную зависимость от постоянного магнитного поля.

Этот закон неоднократно поверялся экспериментально, и на нем основываются существующие эталоны спектральной яркости света. Однако он согласно (3.2.8) определяет лишь диагональные по $\boldsymbol{k}$ моменты поля и, кроме того, он не учитывает рассеяния и дифракции и справедлив лишь в рамках геометрической оптики. Таким образом, закон Кирхгофа, в отличие от формул, получен-

ных с помощью ФДТ, не дает полной статистической информации о ТИ. Недиагональные моменты поля, необходимые для описания интерференции амплитуд или интенсивностей (§§ 4.6, 4.7), отличны от нуля в пределах дифракционного угла $|\hat{\boldsymbol{r}} - \hat{\boldsymbol{r}}'| < \lambda/a$, где a — поперечный размер излучающего тела. Иначе говоря, закон Кирхгофа (как и само понятие яркости) предполагает нулевой радиус поперечной когерентности поля (продольная когерентность описывается частотной дисперсией $\mathcal{A}(\omega)$).

Естественно поставить вопрос, существуют ли чисто феноменологические формулы типа закона Кирхгофа, определяющие вторые (и более высокие) моменты ТИ с учетом конечного радиуса когерентности через независимо измеряемые параметры. Ответ оказывается положительным при довольно общих предположениях в рамках линейного приближения (§§ 4.4, 4.5). Более того, при некоторых дополнительных практически оправданных ограничениях аналогичные связи имеют место и при учете двухфотонных (некаскадных) переходов (§ 5.4), а также в случае модуляции равновесного вещества с частотой, лежащей в области прозрачности, т. е. в случае нерезонансного параметрического или комбинационного рассеяния (гл. 6, 7). В следующих двух параграфах мы выведем такой обобщенный закон Кирхгофа (ОЗК) в линейном приближении тремя способами — сперва «по Найквисту», затем феноменологическим ланжевеновским методом и, наконец, с помощью кинетического уравнения для поля, взаимодействующего с равновесным веществом.

§ 4.4. Обобщенный закон Кирхгофа (ОЗК)

Для выяснения феноменологической связи между статистикой ТИ и амплитудами вынужденных эффектов мы в настоящем параграфе используем квантовый феноменологический метод, основанный на постулировании линейной связи между операторами излучаемого (выходного) образцом поля и операторами падающего на него (входного) зондирующего поля.

Понятие комплексной *матрицы рассеяния* (МР) $\boldsymbol{U}$, связывающей поля на «входе» и «выходе» образца, и *матрицы поглощения* $\boldsymbol{\mathcal{A}} \equiv \boldsymbol{I} - \boldsymbol{U} \cdot \boldsymbol{U}^+$ позволит нам представить закон Кирхгофа в виде, определяющем с учетом дифракции не только яркость, но и функцию корреляции, высшие моменты и χ-функцию ТИ. Мы дадим два эквивалентных операциональных определения коэффициента поглощения $\mathcal{A}_{kk}$. Мы рассмотрим также простую микроскопическую теорию, поясняющую появление пар фотонов в ТИ с точки зрения шредингеровской картины, в которой образец воздействует не на операторы поля, а на его волновую функцию. Наконец, будет приведен второй способ вывода ОЗК, исходящий из условия унитарности преобразования поля образцом.

Входное и выходное поля. Пусть равномерно подогреваемый образец занимает ограниченную область пространства. В оптическом диапазоне измеряется поле вне образца, т. е. свободное поле; более того, обычно детекторы расположены в волновой зоне, где поле можно считать поперечным. Разобьем мысленно это поле на две части — падающее на образец снаружи «входное» поле $\boldsymbol{E}$ от внешних источников и рассеиваемое или излучаемое образцом «выходное» поле $\boldsymbol{E}'$. Такое разбиение при разложении по плоским волнам можно однозначно осуществить с помощью двух ящиков квантования A, B (рис. 6).

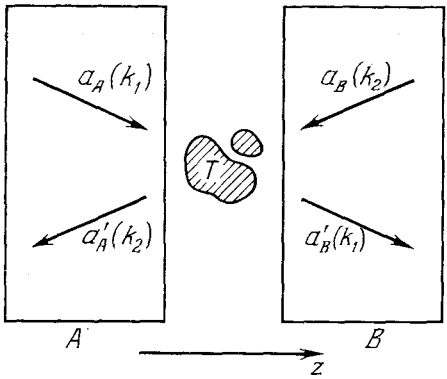

Рис. 6. Разбиение поля вокруг образца на входную и выходную части с помощью двух ящиков квантования.

Гейзенберговские операторы входного и выходного электрического поля в левом ящике равны

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}_A(\boldsymbol{r}t) &= i \sum_{k_z>0} \boldsymbol{e}_k c_k a_{kA}(t)\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{э. с.}, \\ \boldsymbol{E}'_A(\boldsymbol{r}t) &= i \sum_{k_z<0} \boldsymbol{e}_k c_k a'_{kA}(t)\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} + \text{э. с.} \end{aligned} \tag{1}$$

Выражения для полей в правом ящике отличаются лишь обратными знаками z-компонент волновых векторов. В дальнейшем мы включим индекс $q = A, B$ (как и индексы поляризации $\nu_k = 1, 2$) в один общий индекс $k = \{\boldsymbol{k}, \nu_k, q\}$.

Матрица рассеяния. Выходное поле состоит из двух частей. Первая часть линейно связана с входным полем, которое дифрагирует или рассеивается на образце (какая-то доля энергии входной плоской волны поглощается, какая-то рассеивается по другим направлениям и оставшаяся проходит без изменения направления). Вторая часть — собственное ТИ образца, которое остается и при «выключенном», т. е. вакуумном входном поле. Эти части можно назвать также вынужденным и спонтанным излучением.

Итак, предположим, что операторы входного и выходного поля связаны линейным соотношением

$$a'_k = \sum_{k'} U^*_{kk'} a_{k'} + b_k. \tag{2}$$

Здесь b_k — операторы вещества (они пропорциональны операторам дипольных моментов молекул образца), а $U_{kk'}$ — комплекс-

ные числа, совокупность которых мы будем называть матрицей рассеяния (МР). Ее диагональные компоненты U_{kk} имеют смысл амплитудных «коэффициентов передачи» образца по отношению к плоским волнам, а недиагональные компоненты определяют дифракционное «перемешивание» образцом мод свободного пространства. В линейном приближении рассеяние происходит без изменения частоты, и поэтому $U_{kk'} = U^{\omega}_{kk'}\,\delta(\omega_k - \omega_{k'})$, так что суммирование в (2) ведется лишь по направлениям волновых векторов $\hat{\boldsymbol{k}}' = \boldsymbol{k}'/k'$, по двум типам поляризации и по «левым» и «правым» падающим полям.

МР, которая, как будет показано ниже, полностью определяет статистику выходного излучения через статистику входного, можно, в принципе, измерить с помощью когерентного падающего света и интерферометра. Средний ток детектора будет пропорционален величине

$$I_0 = \langle(\zeta^* a_1^+ + a_2'^+)(\zeta a_1 + a_2')\rangle = |\zeta|^2 N_1 + N_2' + N_1 2\mathrm{Re}\,\zeta U_{21}, \qquad (3)$$

где $N_1 \equiv \langle a_1^+ a_1\rangle$ — интенсивность источника, N_2' — суммарная интенсивность теплового и рассеянного излучения и $\zeta = |\zeta|\,e^{i\varphi}$ — коэффициент передачи опорного плеча интерферометра. Наблюдая зависимость $I_0(\varphi)$, можно восстановить $\mathrm{Re}\,U_{21}$ и $\mathrm{Im}\,U_{21}$. При фиксированной частоте величина $|U_{kk'}|$ является функцией угла между $\boldsymbol{k}$ и $\boldsymbol{k}'$, которую можно назвать *индикатрисой* упругого рассеяния (или дифракции) [1]. В сферических координатах эта функция изображается сложной многолепестковой поверхностью. В случае макроскопического сплошного образца индикатриса рассеяния имеет узкий максимум с дифракционной шириной при $\boldsymbol{k} = \boldsymbol{k}'$. Ясно, что практически можно измерить лишь конечное число компонент МР с каким-то шагом в $\boldsymbol{k}^2$-пространстве.

Следует подчеркнуть, что реально наблюдаемый на выходе детектора сигнал биений $I(t)$ даже при идеальном когерентном источнике падающего света будет флуктуировать из-за теплового движения молекул образца. Это движение (которое при $T = 0$) сменяется квантовыми флуктуациями) приводит к амплитудной и частотной модуляции световой волны, рассеиваемой в данном направлении. Чтобы выделить постоянную составляющую (3), соответствующую упруго рассеянному свету с частотой $\omega_k = \omega_{k'}$, надо усреднить $I(t)$ за большой промежуток времени. Если же мы подвергнем $I(t)$ фурье-преобразованию, то мы получим спектр релеевского рассеяния, несущий ценную информацию о движении частиц образца [164, 165]. Впрочем, это явление уже выходит за рамки принятого в этой главе линейного приближения.

С другой стороны, МР можно рассчитать с помощью какой-либо феноменологической или микроскопической модели вещества [2]. Можно ожидать, что результаты таких расчетов при квантовании поля и при использовании полуклассического подхода (когда квантуется лишь вещество) будут совпа-

---

[1]) Способ измерения модуля МР будет описан в § 4.6 (см. (4.6.12)).

[2]) Расчет МР для сплошных тел и экранов простой формы составляет традиционную задачу теории дифракции. Известные формулы Ми (см., например, [167]) определяют МР шара через ε (эти формулы описывают полное вторичное поле, включая продольную часть, а также поле внутри образца). В § 4.6 будет рассмотрена МР для двух простейших моделей (феноменологической и микроскопической).

дать с точностью до небольших комплексных поправок к собственным частотам молекул. Этот «принцип соответствия» для первых моментов поля позволяет использовать более простые полуклассические теории.

Векторные обозначения. Перепишем (2) в более компактных обозначениях:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{a}' &= \boldsymbol{U}^*\cdot\boldsymbol{a} + \boldsymbol{b} = \boldsymbol{a}\cdot\boldsymbol{U}^+ + \boldsymbol{b}, \\ \boldsymbol{a}'^+ &= \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{a}^+ + \boldsymbol{b}^+, \end{aligned} \tag{4}$$

где «вектор» $\boldsymbol{a}$ имеет компоненты $a_1, a_2, \ldots$ (мы для простоты пишем индекс 1 вместо k_1). Заметим, что символ эрмитова сопряжения «+» в (4) имеет двоякий смысл: $\boldsymbol{a}^+$ означает эрмитово-сопряженный к $\boldsymbol{a}$ оператор — т. е. тензор в гильбертовом пространстве, образованном набором всевозможных состояний поля, а $\boldsymbol{U}$ и $\boldsymbol{U}^+$ являются тензорами в «пространстве», образованном набором мод $k_1, k_2, \ldots$, поэтому $(U^+)_{12} \equiv U^*_{21} \equiv \widetilde{U}^*_{12}$. Как легко проверить, выполняется правило $(\boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{a})^+ = \boldsymbol{a}^+\cdot\boldsymbol{U}^+ = \boldsymbol{U}^*\cdot\boldsymbol{a}^+$.

Вывод ОЗК по Найквисту. Определим матрицу вторых нормально-упорядоченных моментов: $N_{12} \equiv \langle a^+ a_2\rangle$, или, в диадных обозначениях,

$$\boldsymbol{N} = \langle \boldsymbol{a}^+\boldsymbol{a}\rangle \qquad (\widetilde{N}_{12} = N_{21}, \quad \widetilde{\boldsymbol{N}} \neq \langle \boldsymbol{a}\boldsymbol{a}^+\rangle). \tag{5}$$

Диагональные компоненты этой матрицы N_{kk} пропорциональны яркости света в направлении $\hat{\boldsymbol{k}}$ с поляризацией $\boldsymbol{e}_{k\nu}$ и частотой $\omega_k = ck$. Из (2) или (4) следует, что моменты входного и выходного полей при условии $\langle \boldsymbol{a}\boldsymbol{b}\rangle = \langle \boldsymbol{a}^+\boldsymbol{b}\rangle = 0$ удовлетворяют матричному соотношению

$$\boldsymbol{N}' = \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{N}\cdot\boldsymbol{U}^+ + \langle \boldsymbol{b}^+\boldsymbol{b}\rangle. \tag{6}$$

Чтобы найти спонтанную часть излучения, поместим мысленно образец в замкнутую полость, заполненную равновесным планковским излучением с температурой, равной температуре вещества. Равновесное поле стационарно, и его матрица вторых моментов $\mathcal{N}$ диагональна по частоте. В случае достаточно большой полости ее можно считать диагональной и по направлению волнового вектора и, кроме того, изотропной, так что $\mathcal{N}_{12} = \delta_{12}\mathcal{N}(\omega_1)$.

Потребуем, чтобы образец не нарушил равновесности поля, тогда $\boldsymbol{N}' = \boldsymbol{N} = \mathcal{N}$, и с помощью (6) можно выразить ТИ через МР:

$$\boldsymbol{N}_{\text{сп}} \equiv \langle \boldsymbol{b}^+\boldsymbol{b}\rangle = \mathcal{N}\cdot(\boldsymbol{I} - \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{U}^+) \equiv \mathcal{N}\cdot\mathcal{A}. \tag{7}$$

Предположим далее, что падающее на образец поле не влияет на ТИ, тогда (7) не изменится, когда мы уберем стенки полости и включим произвольные внешние источники света:

$$\boldsymbol{N}' = \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{N}\cdot\boldsymbol{U}^+ + \mathcal{N}\cdot\mathcal{A}. \tag{8}$$

Эту формулу можно представить также в виде (ср. (1.1.40))

$$\boldsymbol{N}'_{\text{сим}} = \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{N}_{\text{сим}}\cdot\boldsymbol{U}^{+} + \mathcal{N}_{\text{сим}}\cdot\boldsymbol{\mathcal{A}}, \tag{9}$$

$$\boldsymbol{N}_{\text{сим}} \equiv \boldsymbol{N} + \frac{\boldsymbol{I}}{2}, \quad \mathcal{N}_{\text{сим}} \equiv \mathcal{N} + \frac{\boldsymbol{I}}{2} = \frac{\boldsymbol{I}}{2}\operatorname{cth}\frac{\hbar\omega}{2\varkappa T}.$$

Первое слагаемое в (8) соответствует вынужденному эффекту, а второе — спонтанному, т. е. тепловому. Заметим, что, как правило, эти термины относят к ненаблюдаемым элементарным процессам в одной молекуле, здесь же они определены для произвольного образца в целом и имеют четкий операциональный смысл. Иногда удобно различать два типа вынужденных процессов — сопровождающихся излучением и поглощением,— однако физический смысл имеет лишь суммарный эффект [1]), и поэтому мы отождествляем спонтанное и тепловое излучение.

Согласно (7) ТИ определяется «матрицей неунитарности» образца $\boldsymbol{\mathcal{A}}$, которая в случае унитарной МР (когда $\boldsymbol{U}^{+} = \boldsymbol{U}^{-1}$) обращается в нуль, что соответствует прозрачному образцу (точнее, непоглощающему). Диагональную часть (7) можно представить в форме закона Кирхгофа (4.3.2):

$$N_k^{\text{сп}} = \mathcal{A}_k\mathcal{N}, \tag{10}$$

где $\mathcal{A}_1 \equiv \mathcal{A}_{11} = 1 - \sum\limits_2 \mathcal{G}_{12}$ — коэффициент поглощения для моды k_1 и $\mathcal{G}_{12} = |U_{12}|^2$ — энергетический коэффициент передачи из k_2 в k_1.

Формулу (7), выражающую свойства ТИ через МР, естественно назвать обобщенным законом Кирхгофа [2]) (ОЗК). Она в отличие от (4.4.2) не ограничена рамками геометрической оптики и определяет недиагональные элементы матрицы вторых моментов. Знание последних необходимо для расчета радиуса поперечной когерентности ТИ (§ 4.6). Отметим, что матрица $\boldsymbol{N}$ в силу (3.1.18) определяет и моменты $\langle E^2\rangle$, $\langle H^2\rangle$, $\langle EH\rangle$. Кроме того, как мы покажем ниже, ОЗК определяет и высшие моменты ТИ (в однофотонном приближении), описывающие флуктуации интенсивности. Конечно, эта же информация дается и формулами, содержащими вместо МР диэлектрическую проницаемость и функцию Грина, однако, как уже отмечалось, эти величины непосредственно не наблюдаемы. В пользу нашей формы ОЗК говорит и простота приведенного выше вывода. С другой стороны, традиционный подход позволяет вычислять ТИ неравномерно нагретых тел, а также моменты продольного поля в неволновой зоне вблизи по-

---

[1]) В [166] рассматриваются возможные ошибки при трактовке закона Кирхгофа, связанные с терминологической путаницей.

[2]) Согласно [144, 162] формулы, выражающие моменты поля через ε и $\boldsymbol{G}$ в $\omega\boldsymbol{r}$-представлении, также можно считать обобщением закона Кирхгофа.

верхности тел и притяжение между телами за счет теплового поля [143, 144].

Частные случаи. Если образец в каком-то интервале k-пространства полностью непрозрачен, не отражает и не рассеивает падающее излучение, т. е. является *абсолютно черным телом*, то, очевидно, $\boldsymbol{U} = 0$, $\boldsymbol{\mathcal{A}} = \boldsymbol{I}$ и из (7) следует $\boldsymbol{N}^{\text{сп}} = \mathcal{N}$ — ТИ в этом интервале Δk совпадает с равновесным полем с нулевым радиусом когерентности. То же самое имеет место, конечно, если $\boldsymbol{U} \neq 0$, но падающее излучение — равновесное и имеет температуру тела.

Пусть теперь падающее излучение диагонально, т. е. все его моды возбуждены статистически независимо ($N_{12} = N_1\delta_{12}$), тогда согласно (8) числа фотонов на выходе будут равны

$$N_1' = \sum_2 \mathcal{G}_{12} N_2 + \mathcal{A}_1 \mathcal{N}. \tag{11}$$

Отсюда следует, что коэффициенты передачи $\mathcal{G}_{12} = \partial N_1'/\partial N_2$ и поглощения $\mathcal{A}_1 = 1 - \sum_2 \partial N_1'/\partial N_2$ для данной моды k_1 можно измерить по отношению яркости рассеянного в эту моду света к яркости падающего света. В результате закон Кирхгофа принимает вид

$$N_1^{\text{сп}} = \mathcal{N}\left(1 - \sum_2 \partial N_1'/\partial N_2\right). \tag{11а}$$

Возможен и другой способ определения $\mathcal{A}_k$, при котором образец облучается плоской волной в направлении $-\boldsymbol{k}$ при обращенном магнитном поле, а измеряется суммарная мощность рассеянного света:

$$\frac{\sum_2 N_2'}{N_{\tilde{1}}} = \sum_2 \mathcal{G}_{2\tilde{1}}(\bar{\boldsymbol{B}}) = \sum_2 \mathcal{G}_{\tilde{1}2}(\boldsymbol{B}) = 1 - \mathcal{A}_1(\boldsymbol{B}) \tag{11б}$$

(мы здесь применили принцип симметрии Онсагера к МР: $U_{12}(\boldsymbol{B}) = U_{\tilde{2}\tilde{1}}(\bar{\boldsymbol{B}})$).

Если образец представляет собой сплошной однородный плоскопараллельный слой, то с учетом зеркального отражения $\mathcal{G}_{12} = \mathcal{G}_1\delta_{12} + \mathcal{R}_{\tilde{1}\tilde{1}}\delta_{\tilde{1}\tilde{2}}$ (здесь $\tilde{\boldsymbol{k}} = \{k_x, k_y, -k_z\}$, $\mathcal{R}_{k\tilde{k}}$ — коэффициент отражения) и из (11) следует

$$N_1' = \mathcal{G}_1 N_1 + \mathcal{R}_{\tilde{1}\tilde{1}} N_{\tilde{1}} + \mathcal{A}_1 \mathcal{N} \tag{12}$$

(мы не учитываем возможного изменения поляризации). При нормальном падении $\tilde{\boldsymbol{k}} = -\boldsymbol{k}$, и (12) принимает форму «волноводного» закона Кирхгофа [144]. Если, наконец, отражений нет, то $\mathcal{A}_k = 1 - \mathcal{G}_k$ и

$$N' = \mathcal{G}N + (1 - \mathcal{G})\mathcal{N}. \tag{13}$$

Высшие моменты ТИ. Последние легко найти, предположив, что статистика поля гауссова. Это предположение кажется вполне оправданным в случае макроскопического образца, когда поле создают $\sim 10^{23}$ молекул, что позволяет применить центральную предельную теорему теории вероятностей. В следующем параграфе будет показано, что гауссовость ТИ следует из однофотонного кинетического уравнения довольно общего вида. Поэтому высшие моменты ТИ гауссовы и, следовательно, определяются через вторые моменты (7). Соответствующая нормально-упорядоченная χ-функция выражается через матрицу вторых моментов следующим образом:

$$\chi_{\text{сп}} = \exp(-\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{N}_{\text{сп}}\cdot\boldsymbol{\mu}^*) = \exp(-\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{\mathcal{N}}\cdot\boldsymbol{\mathcal{A}}\cdot\boldsymbol{\mu}^*). \tag{14}$$

Пусть статистика падающего поля также гауссова с независимыми модами, но «смещенная» — с добавкой независимых когерентных составляющих $\langle a_k\rangle \equiv z_k$:

$$\chi = \exp(-\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{N}\cdot\boldsymbol{\mu}^* + \boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{z}^* - \boldsymbol{\mu}^*\cdot\boldsymbol{z}). \tag{15}$$

χ-функция суммы независимых случайных величин равна произведению их χ-функций, поэтому после линейного преобразования (2) $\boldsymbol{a} \to \boldsymbol{U}^*\cdot\boldsymbol{a}$ вынужденная часть поля будет снова иметь χ-функцию вида (15), но с заменой

$$\boldsymbol{N} \to \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{N}\cdot\boldsymbol{U}^+, \quad \boldsymbol{z} \to \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{z} \equiv \boldsymbol{z}'. \tag{16}$$

Наконец, полное поле согласно (2) является суммой двух независимых многомерных гауссовых величин — вынужденного и спонтанного поля, и поэтому его χ-функция равна произведению выражений (14) и (15) с заменой (16) и также соответствует смещенной гауссовой статистике:

$$\chi' = \exp[-\boldsymbol{\mu}\cdot(\boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{N}\cdot\boldsymbol{U}^+ + \boldsymbol{\mathcal{N}}\cdot\boldsymbol{\mathcal{A}})\cdot\boldsymbol{\mu}^* + \boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{z}^* + \boldsymbol{\mu}^*\cdot\boldsymbol{U}^*\cdot\boldsymbol{z}] \tag{17}$$

(здесь $\boldsymbol{N}$ и $\boldsymbol{\mathcal{N}}$ — диагональные матрицы). Итак, статистика выходного поля при пренебрежении ангармонизмом вещества полностью определяется первыми и вторыми моментами входного поля, температурой образца и его МР (которая также может зависеть от температуры).

В частности, нормально-упорядоченный четвертый момент ТИ (функция корреляции второго порядка по Глауберу [1]) согласно (17) и правилу определения моментов (3.3.36) равен

$$\langle a_1^+ a_2^+ a_3 a_4\rangle_{\text{сп}} = N_{13}N_{24} + N_{14}N_{23}, \tag{18}$$

$$\langle a_1^+ a_2^+ a_1 a_2\rangle_{\text{сп}} \equiv \langle :\hat{N}_1\hat{N}_2:\rangle_{\text{сп}} = N_1N_2 + |N_{12}|^2, \tag{19}$$

где $\hat{N}_1 = a_1^+ a_1$ и $\boldsymbol{N}$ определяется ОЗК (7). С помощью последнего выражения описывается эффект интерференции интенсивностей (§ 4.7). Первое слагаемое в нем отлично от нуля для пар мод

с любыми частотами и направлением распространения, поэтому оно соответствует «случайному» (или «пуассоновскому») одновременному излучению двух фотонов. Второе слагаемое в (19) имеет заметную величину лишь для достаточно близких в $\boldsymbol{k}$-пространстве мод, принадлежащих одной области когерентности (§§ 4.6, 4.7).

Тепловое поле по теории возмущения. Как следует трактовать формулу (18), полученную нами феноменологически, в терминах элементарных процессов излучения фотонов? Перейдем к представлению Шредингера, в котором меняется вектор состояния $|t\rangle$, а не операторы (§ 2.2). Молекулы в результате столкновений или взаимодействия с решеткой после спонтанного излучения снова возвращаются в возбужденное состояние $|a\rangle$. Пусть падающее поле находится в вакуумном состоянии $|0\rangle$, т. е. начальное состояние системы, которое фигурирует в теории возмущения, будет $|t_0\rangle = |0\rangle \prod_j |a\rangle_j$. В момент t согласно (2.3.4) и (2.3.18): $|t\rangle = \mathcal{U}\,|t_0\rangle$, где

$$\mathcal{U} = \mathcal{U}_0 \left\{ I + (i\hbar)^{-1} \int_{t_0}^{t} dt_1 \mathcal{V}_1 + (i\hbar)^{-2} \int_{t_0}^{t} dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \mathcal{V}_1 \mathcal{V}_2 + \ldots \right\}. \quad (20)$$

Здесь $\mathcal{V}$ — энергия взаимодействия поля и молекул в представлении взаимодействия, которая в дипольном, резонансном и двухуровневом приближении имеет вид

$$\mathcal{V} = i\hbar \sum_{j=1}^{M} \sum_{k} c_{jk} \sigma_j a_k^+ + \text{э. с.}, \quad (21)$$

где оператор $\sigma = |b\rangle\langle a|$ переводит молекулу в основное состояние. Таким образом, волновая функция имеет следующую структуру:

$$|t\rangle = \left\{ I + \sum_{jk} \alpha_{jk} \sigma_j a_k^+ + \sum_{jj'kk'} \beta_{jkj'k'} \sigma_j \sigma_{j'} a_k^+ a_{k'}^+ + \ldots \right\} |t_0\rangle \quad (22)$$

(коэффициенты α, β, ... зависят от t, дипольных моментов, разности частот мод и молекул и от фаз $\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j$). Нас интересует двухфотонное состояние, образуемое двумя операторами рождения:

$$a_k^+ a_{k'}^+ |0\rangle = |1\rangle_k |1\rangle_{k'} \equiv |kk'\rangle.$$

Если в (22) $j = j'$, то $\sigma_j^2 = |b\rangle\langle a|b\rangle\langle a| \sim \delta_{ab} = 0$, так что

$$|t\rangle = |t_0\rangle + \sum_{jk} \alpha_{jk} |b\rangle_j |k\rangle + \sum_{jj'}{}' \sum_{kk'} \beta_{jkj'k'} |b\rangle_j |b\rangle_{j'} |kk'\rangle + \ldots \quad (23)$$

(штрих при знаке двойного суммирования означает отсутствие диагональных элементов).

Итак, двухфотонные состояния $|k\,k'\rangle$ в модели двухуровневых молекул рождаются лишь двумя разными молекулами [1]), т. е. это *двухчастичный* эффект. Усредняя с помощью (23) произведения операторов поля, можно найти явные выражения для моментов $\langle t\,|a_1^+ \ldots a_n\,|\,t\rangle$ через микроскопические параметры молекул, которые должны удовлетворять полученным выше феноменологическим формулам Кирхгофа.

Из сравнения (22) с (2) видно, что амплитуды спонтанного поля в первом порядке теории возмущения равны $\sum\limits_j \alpha_{jk}^* \sigma_j^+$. МР можно найти из (22) во втором порядке теории возмущения при когерентном начальном состоянии поля.

Вывод ОЗК по Ланжевену. Соотношение (2) между входными и выходными операторами поля в случае одинаковых ящиков квантования можно рассматривать как унитарное преобразование, т. е. как смену базиса в гильбертовом пространстве поля (§ 2.2). Унитарность преобразования обеспечивает сохранение нормировки волновой функции (что необходимо ввиду ее вероятностного физического смысла) и сохранение коммутационных соотношений. Из (2) следует

$$[a_1', a_2'^+] = [b_1, b_2^+] + \sum_3 U_{13}^* U_{23} = \delta_{12}, \tag{24}$$

$$[a_1', a_2'] = [b_1, b_2] = 0,$$

где мы приняли, что операторы a и b коммутируют, так как они действуют в различных гильбертовых пространствах — поля и вещества. Условие унитарности (24) в векторных обозначениях можно написать в виде $[\boldsymbol{b}, \boldsymbol{b}^+] = \boldsymbol{I} - \boldsymbol{U}^* \cdot \widetilde{\boldsymbol{U}}$, где $[a, b]_{kl} \equiv a_k b_l - b_l a_k$.

Операторы a_k относятся к свободному пространству и поэтому изменяются в представлении Гейзенберга по гармоническому закону; очевидно, и ланжевеновы операторы b_k также должны быть гармоническими функциями времени. Пусть падающее излучение достаточно слабое, так что нет эффектов насыщения, тогда вещество можно считать равновесным и должно выполняться соотношение (2.4.25):

$$\langle b_1^+ b_2\rangle = -\mathcal{N}_1 \langle [b_1^+, b_2]\rangle. \tag{25}$$

Отсюда с учетом условия унитарности (24) получаем ОЗК (7).

§ 4.5. Вывод ОЗК с помощью кинетического уравнения

Использованные выше найквистовский или ланжевеновский методы не могут считаться строгими. В связи с этим мы воспользуемся здесь методом кинетического уравнения (§ 2.5), который близок к марковскому подходу.

Тепловое излучение и кинетическое уравнение. Впервые простейшее кинетическое уравнение для поля было использовано еще Эйнштейном при выводе формулы Планка. Кинетическое

[1]) Логичней было бы в настоящей главе моделировать молекулы гармоническими осцилляторами, однако оптические уровни атомов и молекул сильно неэквидистантны.

уравнение типа (2.5.5) для матрицы плотности поля, взаимодействующего с веществом — термостатом, рассматривалось Шеном [150] и другими авторами в случае одномодового поля. Строго говоря, такой анализ описывает изменение во времени статистики поля внутри добротного резонатора с неперекрывающимися модами. Переход от характерного для квантовой механики временного описания к пространственному возможен лишь при непрерывной совокупности мод. Следующий ниже анализ является модификацией метода Шена для свободного пространства. Отметим, что он охватывает и случай, когда «образцом» является резонатор с полупрозрачными зеркалами, внутри которого имеется нагретое вещество.

Существенно, что поскольку нас интересует свободное поперечное поле вне образца, то физический смысл имеет стационарное решение кинетического уравнения при $t \to \infty$. Падающее поле задает начальное состояние при $t_0 \to -\infty$. Заметим, что так как образец ограничен в пространстве, то это решение описывает не равновесное поле с температурой вещества, а ТИ. Иначе говоря, мы с помощью кинетического уравнения описываем нагрев термостатом — веществом другого термостата — электромагнитного вакуума. Бесконечная теплоемкость последнего предотвращает выравнивание температур.

Кинетическое уравнение для χ-функции. Будем исходить из дипольного приближения для энергии взаимодействия поля и вещества:

$$\mathscr{V} = -\sum_{j=1}^{M} \boldsymbol{d}_j \cdot \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}_j). \tag{1}$$

Здесь $\boldsymbol{d}_j$ — оператор дипольного момента j-й молекулы, а $\boldsymbol{r}_j$ — координата ее центра. Пусть в (2.5.1) $\mathscr{H}_A$ — гамильтониан свободного поля (нормировочный объем теперь включает образец) и $\mathscr{H}_B$ — гамильтониан вещества без учета поперечного поля. Из сравнения (1) и (2.5.11) следует соответствие

$$f_j \to E_\alpha(\boldsymbol{r}_j), \quad F_j \to d_{j\alpha}. \tag{2}$$

Разложим поле по плоским волнам согласно § 3.1. В представлении взаимодействия (индекс представления опускаем)

$$\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}t) = i\sum_k \boldsymbol{c}_k a_k e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} - i\omega_k t} + \text{э. с.} \tag{3}$$

(фазовый множитель $\exp(i\omega_k t_0)$ включен в определение операторов a_k, $\boldsymbol{c}_k \equiv \boldsymbol{e}_k\sqrt{\hbar\omega_k v}/2\pi$). Теперь (2.5.18) принимает вид

$$E_\alpha^{nm}(\boldsymbol{r}_j t) = \sum_k c_{k\alpha}\left\{\frac{a_k(t)\,e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j}}{\omega_{nm} - \omega_k - i\varepsilon} - \frac{a_k^+(t)\,e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j}}{\omega_{nm} + \omega_k - i\varepsilon}\right\}, \tag{4}$$

где индексы n, m нумеруют собственные состояния невозмущенного вещества в целом. Если пренебречь взаимодействием молекул за счет кулоновских сил или перекрывания электронных орбиталей, то гамильтониан вещества аддитивен и его собственные функции факторизуются:

$$\mathcal{H}_B = \sum_j \mathcal{H}_j, \quad |n\rangle = |n_1\rangle_1 |n_2\rangle_2 \ldots |n_M\rangle_M, \tag{5}$$

где индекс n_j нумерует состояния j-й молекулы (приближение (5) необязательно для дальнейшего).

В результате из (2.5.22) находим следующее кинетическое уравнение для произвольного оператора поля g (без учета нерезонансных слагаемых):

$$\frac{d\langle g\rangle}{dt} = \left\langle \frac{dg}{dt} \right\rangle^0 + \\ + \sum_{kk'} \Big\{ w_{kk'} \langle a_{k'}^+ [g, a_k]\rangle + \overline{w}_{kk'} \langle [a_{k'}^+, [g, a_k]]\rangle + \\ + w_{kk'}^* \langle [a_k^+, g] a_{k'}\rangle + \overline{w}_{kk'}^* \langle [[a_k^+, g], a_{k'}]\rangle \Big\}. \tag{6}$$

Напомним, что все операторы надо брать в представлении взаимодействия (как и матрицу плотности, по которой ведется усреднение). Следует обратить внимание на то, что в отличие от уравнений Гейзенберга в кинетическое уравнение входят уже усредненные величины. Здесь слагаемые, пропорциональные коэффициентам w, содержат разности населенностей и описывают вынужденные эффекты, а слагаемые, пропорциональные коэффициентам $\overline{w}$, содержат населенности возбужденных состояний $\rho_m = \Delta\rho_{nm}\mathcal{N}_{mn}$ и описывают спонтанные эффекты. Явный вид коэффициентов таков:

$$w_{kk'} \equiv \hbar^{-2} \sum_{j, j'} \exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j - i\boldsymbol{k}'\cdot\boldsymbol{r}_{j'}) \sum_{m>n} \Delta\rho_{nm} \frac{(\boldsymbol{d}_{j'nm}\cdot\boldsymbol{c}_{k'})(\boldsymbol{d}_{jmn}\cdot\boldsymbol{c}_k)}{i(\omega_{k'} - \omega_{mn}) + \varepsilon}. \tag{7}$$

Выражение для коэффициентов $\overline{w}$ отличается дополнительным множителем $\mathcal{N}_{mn}$. Ниже будет показано, что в представляющем интерес стационарном случае, когда $\omega_k = \omega_{k'}$, этот множитель можно заменить на $\mathcal{N}(\omega_k)$ и вынести из-под знаков суммирования, так что $\overline{w} = \mathcal{N} w$.

В случае независимых (до включения взаимодействия) молекул из (5) следует, что вклады отдельных молекул в w аддитивны:

$$w_{kk'} = \hbar^{-2} \sum_j \exp[i(\boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}')\cdot\boldsymbol{r}_j] \times \\ \times \sum_{m_1>n_1} \cdots \sum_{m_M>n_M} \Delta\rho_{n_j m_j} \frac{(\boldsymbol{d}_{jn_jm_j}\cdot\boldsymbol{c}_{k'})(\boldsymbol{d}_{jm_jn_j}\cdot\boldsymbol{c}_k)}{i(\omega_{k'} - \omega_{m_jn_j}) + \varepsilon}. \tag{8}$$

Если, кроме того, у молекул имеется лишь по одной паре резонансных с полем уровней, то знаки суммирования по уровням можно опустить. Для дальнейшего представим кинетическое уравнение (6) в случае независимых двухуровневых молекул в виде:

$$\frac{d\langle g\rangle}{dt}=\left\langle\frac{dg}{dt}\right\rangle^0+\hbar^{-2}\sum_j\Delta\rho_j\,\{\mathcal{N}_j\,\langle[f_j'^{+},[g,f_j]]+[f_j',[g,f_j^{+}]]\rangle-$$
$$-\langle f_j'^{+}[f_j,g]+[g,f_j^{+}]\,f_j'\rangle\},\qquad(9)$$

$$f_j'(t)\equiv\int_{-\infty}^{t}dt'\exp\left[i\omega_j(t'-t)+\varepsilon t'\right]f_j(t'),\qquad(10)$$

где $\Delta\rho_j>0$ и $\Delta\rho_j\mathcal{N}_j$ — соответственно относительные разность населенностей и населенность возбужденного уровня j-й молекулы. Операторы поля f_j определены так, что в приближении вращающихся волн

$$\mathcal{V}^{\nu}_{\text{эф}}=\sum_j\sigma_j^{+}f_j+\text{э. с.},\qquad(11)$$

где $\sigma_j=|n_j\rangle\langle m_j|$ — оператор уничтожения возбужденного состояния j-й молекулы. Сравнивая (1) и (9), находим

$$f_j=\sum_k c_{jk}a_k,\qquad f_j'=\sum_k\frac{c_{jk}a_k}{i(\omega_j-\omega_k)+\varepsilon},$$
$$w_{kk'}=\sum_j\frac{\Delta\rho_j c_{jk}c_{jk'}^{*}}{\hbar^2\left[i(\omega_{k'}-\omega_j)+\varepsilon\right]},\qquad(12)$$
$$c_{jk}=\frac{\sqrt{\hbar\omega_k v}}{2\pi i}\,\boldsymbol{d}_j\cdot\boldsymbol{e}_k\exp(i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j),$$

где ω_j и $\boldsymbol{d}_j$ — частота и дипольный момент перехода j-й молекулы.

Перейдем к операторам в представлении Шредингера. Согласно (3.3.50) $a_k^0=a_k\exp(-i\omega_k t)$. Пусть g — функция операторов a_k, a_k^{+}, тогда $\langle dg/dt\rangle^0=0$ и (6) принимает вид

$$\frac{d\langle g\rangle}{dt}=\sum_{kk'}\{w_{kk'}(t)\langle a_{k'}^{+}[g,a_k]\rangle+\overline{w}_{kk'}(t)\langle[a_{k'}^{+},[g,a_k]]\rangle+$$
$$+w_{kk'}^{*}(t)\langle[a_k^{+},g]\,a_{k'}\rangle+\overline{w}_{kk'}^{*}(t)\langle[[a_k^{+},g],a_{k'}]\rangle\},\qquad(13)$$

где

$$w_{kk'}(t)\equiv w_{kk'}\exp(-i\omega_{kk'}t),\qquad\omega_{kk'}\equiv\omega_k-\omega_{k'},\qquad(14)$$

и аналогично для $\overline{w}(t)$. Заметим, что хотя операторы a_k постоянны, средние величины в правой части (13) зависят от времени, так как усреднение ведется по матрице плотности в представлении взаимодействия.

Удобно определить также χ-функцию (§ 3.3):

$$\chi(\boldsymbol{\mu}\boldsymbol{\mu}^{*}t)\equiv\langle\hat{\chi}(\boldsymbol{\mu}\boldsymbol{\mu}^{*}t)\rangle\equiv\langle e^{\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{a}^{+}(t)}e^{-\boldsymbol{\mu}^{*}\cdot\boldsymbol{a}(t)}\rangle,\qquad(15)$$

где мы перешли для краткости к векторным обозначениям. Из (3.2.12) следует

$$[\boldsymbol{a},\ \hat{\chi}]=\boldsymbol{\mu}\hat{\chi},\quad [\boldsymbol{a}^+,\ \hat{\chi}]=\boldsymbol{\mu}^*\hat{\chi}. \tag{16}$$

Полагая в (13) $g=\hat{\chi}$ и используя эти правила коммутации, найдем следующее уравнение для χ-функции:

$$\left\{\frac{\partial}{\partial t}+\left(\boldsymbol{\mu}\cdot\overline{\boldsymbol{w}}(t)\cdot\boldsymbol{\mu}^*+\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{w}(t)\cdot\frac{\partial}{\partial\boldsymbol{\mu}}+\text{к. с.}\right)\right\}\chi=0. \tag{17}$$

В (17) входит комбинация $\boldsymbol{\mu}\cdot(\overline{\boldsymbol{w}}+\overline{\boldsymbol{w}}^+)\cdot\boldsymbol{\mu}^*$, т.е. статистика поля определяется лишь эрмитовой частью матрицы $\overline{\boldsymbol{w}}$, равной согласно (7) и (14)

$$\overline{w}_{kk'}(t)+\overline{w}^*_{k'k}(t)=\hbar^{-2}\sum_{jj'm>n}\mathcal{N}_{mn}\Delta\rho_{nm}(\boldsymbol{d}_{j'nm}\cdot\boldsymbol{e}_k)(\boldsymbol{d}_{jmn}\cdot\boldsymbol{e}_{k'})^*\times$$
$$\times\exp i(\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j-\boldsymbol{k}'\cdot\boldsymbol{r}_j'-\omega_k t+\omega_{k'}t)\left[\frac{1}{i(\omega_{k'}-\omega_{mn})+\varepsilon}+\frac{1}{-i(\omega_k-\omega_{mn})+\varepsilon}\right]. \tag{18}$$

Нас интересует поведение системы при $t-t_0\to\infty$ — ведь процедура адиабатического «включения» взаимодействия является лишь вычислительным приемом, реально взаимодействие существует всегда (это не исключает нестационарных импульсных падающих полей, которые описываются с помощью «пакетов» из возбужденных мод с близкими частотами). При сравнении с экспериментом мы отождествляем:

$$a_k(t_0=-\infty)\equiv a_k,\qquad a_k(t=\infty)\equiv a_k'. \tag{19}$$

Пусть падающее и, следовательно, выходное поля стационарны, тогда будут представлять интерес только частотно-диагональные компоненты матриц $\boldsymbol{w}$ и $\overline{\boldsymbol{w}}$, для которых $\omega_k=\omega_{k'}$. При этом квадратная скобка в (18) равна $2\pi\delta(\omega_{mn}-\omega_k)$, так что можно заменить $\mathcal{N}_{mn}$ на $\mathcal{N}_k$. В результате эрмитовы части матриц $\boldsymbol{w}$ и $\overline{\boldsymbol{w}}$ связаны диагональной равновесной матрицей $\mathcal{N}$, и можно полагать, что $\overline{\boldsymbol{w}}=\mathcal{N}\cdot\boldsymbol{w}=\boldsymbol{w}\cdot\mathcal{N}$.

Теперь (17) принимает вид

$$\left\{\frac{\partial}{\partial t}+\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{w}(t)\cdot\left(\mathcal{N}\cdot\boldsymbol{\mu}^*+\frac{\partial}{\partial\boldsymbol{\mu}}\right)+\left(\boldsymbol{\mu}\cdot\mathcal{N}+\frac{\partial}{\partial\boldsymbol{\mu}^*}\right)\cdot\boldsymbol{w}^+(t)\cdot\boldsymbol{\mu}^*\right\}\chi=0. \tag{20}$$

Первые и вторые моменты поля определяются через χ следующим образом (ср. (3.3.36)):

$$\langle\boldsymbol{a}^+\rangle=\langle\boldsymbol{a}\rangle^*=\frac{\partial\chi}{\partial\boldsymbol{\mu}}\bigg|_0, \tag{21}$$

$$\langle\boldsymbol{a}^+\boldsymbol{a}\rangle\equiv\boldsymbol{N}=-\frac{\partial}{\partial\boldsymbol{\mu}}\frac{\partial}{\partial\boldsymbol{\mu}^*}\chi\bigg|_0, \tag{22}$$

где $\boldsymbol{a}^+\boldsymbol{a}$ означает «внешнее» произведение векторов, т. е. тензор с компонентами $a_k^+a_{k'}$.

Уравнения для моментов. Из (20)—(22) найдем кинетические уравнения для моментов (которые можно найти также прямо из

(13), полагая $g = a_k$ или $a_k^+ a_{k'}$):

$$\frac{d\langle \boldsymbol{a}\rangle^*}{dt} = \frac{\partial^2 \chi}{\partial \boldsymbol{\mu} \partial t}\bigg|_0 = -\boldsymbol{w}(t)\cdot \frac{\partial \chi}{\partial \boldsymbol{\mu}}\bigg|_0 = -\boldsymbol{w}(t)\cdot\langle \boldsymbol{a}\rangle^*, \tag{23}$$

$$\frac{d\boldsymbol{N}}{dt} = \left[\boldsymbol{\mathcal{N}}\cdot \boldsymbol{w}(t) + \boldsymbol{w}(t)\cdot \frac{\partial}{\partial \boldsymbol{\mu}}\frac{\partial}{\partial \boldsymbol{\mu}^*} + \text{э. с.}\right]\chi\bigg|_0 =$$
$$= (\boldsymbol{\mathcal{N}} - \boldsymbol{N})\cdot \boldsymbol{w}(t) + \boldsymbol{w}^+(t)\cdot(\boldsymbol{\mathcal{N}} - \boldsymbol{N}). \tag{24}$$

Как легко проверить, решения линейных уравнений (23), (24) можно формально представить в виде

$$\langle \boldsymbol{a}(t)\rangle = \boldsymbol{U}^*(t - t_0)\cdot\langle \boldsymbol{a}(t_0)\rangle, \tag{25}$$

$$\boldsymbol{N}(t) - \boldsymbol{\mathcal{N}} = \boldsymbol{U}(t - t_0)\cdot[\boldsymbol{N}(t_0) - \boldsymbol{\mathcal{N}}]\cdot \boldsymbol{U}^+(t - t_0); \tag{26}$$

здесь матрица $\boldsymbol{U}(t)$ удовлетворяет уравнению

$$\frac{d\boldsymbol{U}(t)}{dt} = -\boldsymbol{w}(t)\cdot \boldsymbol{U}(t), \qquad \boldsymbol{U}(0) = I \tag{27}$$

(об использовании матриц при решении систем линейных дифференциальных уравнений см. в книге Беллмана [156]). Обозначим $\boldsymbol{U}(\infty) \equiv \boldsymbol{U}$, тогда (26) с учетом (19) принимает вид ОЗК (4.4.8): $\boldsymbol{N}' = \boldsymbol{U}\cdot(\boldsymbol{N} - \boldsymbol{\mathcal{N}})\cdot \boldsymbol{U}^+ + \boldsymbol{\mathcal{N}}$. Далее, если начальная χ-функция $\chi(t_0)$ — смещенная гауссова (4.4.15), то (как можно проверить дифференцированием) решение уравнения (20) остается смещенным гауссовым в любой момент времени — изменяются согласно (23) и (24) лишь параметры гауссова распределения — первый и второй моменты.

Заметим, что коэффициенты $\boldsymbol{w}$ пропорциональны квадрату заряда электрона и поэтому описывают однофотонные элементарные процессы. В то же время матрица рассеяния $\boldsymbol{U}$ согласно (27) зависит от $\boldsymbol{w}$ экспоненциально и включает, следовательно, многофотонные эффекты, но тривиального типа, т. е. происходящие за счет многократных однофотонных процессов (в случае макроскопического образца (27) соответствует закону ослабления Бугера: $U \sim \exp(-wl/c)$, где l — толщина образца).

Шумы квантовых усилителей. Проведенный здесь вывод показывает, что ОЗК выполняется и для усиливающих сред с отрицательной температурой для выделенной пары уровней ($\Delta\rho_{nm} < 0$). Согласно (4.4.13) спектральная яркость в фотонах на моду шумов квантового усилителя (т. е. яркость «сверхлюминесценции») равна

$$N_k^{\text{сп}} = |\mathcal{N}_k|(\mathcal{G} - 1) = \frac{\rho_2(\mathcal{G}_k - 1)}{\rho_2 - \rho_1}, \tag{28}$$

где $\mathcal{G}_k$ — коэффициент усиления моды. Таким образом, при большом усилении и полной инверсии населенностей яркость шумов многомодового усилителя равна «яркости вакуума» (см. (1.1.26)), умноженной на $\mathcal{G}_k$.

Если включить в определение «образца» зеркала лазера, то ОЗК будет определять статистику лазерного поля через МР лазера (работающего в линейном режиме около порога, т. е. без насыщения населенностей). В случае одномодового лазера $\mathcal{G}$ можно выразить через полосу усиления $\Delta\omega$ и полосу резонатора $\Delta\omega_R$ (обусловленную с отличием коэффициента отражения одного из зеркал от 1):

$$\mathcal{G} - 1 = \frac{4\Delta\omega_R^2/\Delta\omega^2}{1 + 4(\omega - \omega_0)^2/\Delta\omega^2}. \tag{29}$$

Из (28) и (29) получаем формулу Таунса, связывающую добротность резонатора $Q = \omega_0/\Delta\omega_R$, населенности, полосу и общую мощность лазера:

$$\mathcal{P}_{\text{сп}} = \frac{\hbar\omega_0 |\mathcal{N}_0|}{2\pi} \int d\omega (\mathcal{G} - 1) = \frac{\hbar\omega_0^2 |\mathcal{N}_0|}{Q^2\Delta\omega}. \tag{30}$$

Эффект насыщения подавляет амплитудные флуктуации и в результате в (30) появляется фактор 1/2 (подробнее см. [4, 5]).

§ 4.6. Тепловое излучение в дальней зоне

В этом параграфе мы получим связь операторов рождения и уничтожения фотонов с полем в дальней зоне и связь моментов поля N_{12} с функцией корреляции и с вероятностью появления фотоимпульса на выходе ФЭУ. С помощью двух простых моделей будет пояснено важное понятие объема когерентности поля.

Дальнее поле и операторы a_k. Обычно оптические измерения производятся в дальней (фраунгоферовой) области пространства по отношению к образцу, в которой выполняется неравенство $\lambda r \gg a^2$, где r — расстояние от центра образца до точки наблюдения и a — поперечный размер образца. Выразим поле $E(\boldsymbol{r}t)$ в дальней зоне через операторы $a_k'(t)$, определенные с помощью ящика квантования, расположенного справа от образца (§ 4.4). Пусть поляризация поля фиксирована, тогда по формуле Кирхгофа [157]

$$E(\boldsymbol{r}\omega) = \frac{\omega}{2\pi ic} \int dx'dy' \frac{\cos\vartheta'}{|\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}'|} e^{i\omega|\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}'|/c} E(\boldsymbol{r}'\omega), \tag{1}$$

где ϑ' — угол между вектором $\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}'$ и осью z и точка $\boldsymbol{r}' = \{x', y', z'\}$ принадлежит примыкающей к образцу грани ящика периодичности (рис. 7), причем $|\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}'| \approx r - \boldsymbol{r}'\cdot\hat{\boldsymbol{r}}$, $\vartheta \approx \vartheta'$ $(\hat{\boldsymbol{r}} = \boldsymbol{r}/r)$.

Представим поле на плоскости интегрирования в виде суммы плоских волн, тогда из (1) и (3.2.30) для $\omega > 0$ следует

$$E^{(+)}(\boldsymbol{r}\omega) = \frac{\omega\cos\vartheta}{2\pi icrv} e^{i\omega r/c} \int d\boldsymbol{k} E_{\boldsymbol{k}}^{(+)} \delta(\omega - \omega_k) \int dx'dy' e^{-i(\omega\hat{\boldsymbol{r}}/c - \boldsymbol{k})\cdot\boldsymbol{r}'}. \tag{2}$$

Интеграл по x', y' равен $4\pi^2\delta(\boldsymbol{k}_\perp - \omega\hat{\boldsymbol{r}}_\perp/c)$, так что

$$\omega_k^2 = \omega^2\sin^2\vartheta + c^2k_z^2, \quad \frac{\partial k_z}{\partial\omega_k} = \frac{1}{c\cos\vartheta},$$
$$\delta(\omega - \omega_k) = \frac{\partial k_z}{\partial\omega_k}\delta\left(k_z - \sqrt{\omega_k^2 - \omega^2\sin^2\vartheta}/c\right) \tag{3}$$

и (2) принимает вид

$$E^{(+)}(\boldsymbol{r}\omega) = \frac{2\pi\omega}{ic^2rv}e^{i\omega r/c}E_{\boldsymbol{k}}^{(+)}, \tag{4}$$

где теперь вектор $\boldsymbol{k}$ фиксирован: $\boldsymbol{k} = \hat{\boldsymbol{r}}\omega/c$. Остается подставить

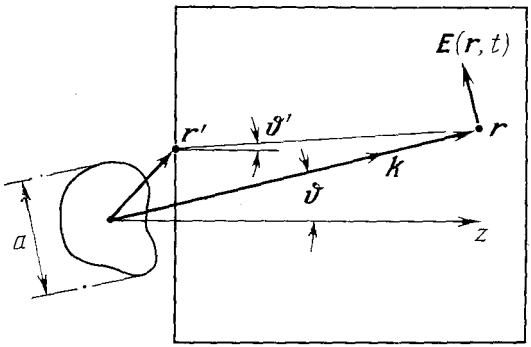

Рис. 7. К определению связи между операторами поля $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}, t)$ в дальней зоне и операторами $a'_{\boldsymbol{k}}$ выходного поля образца.

$E_{\boldsymbol{k}}^{(+)} = i\sqrt{\hbar\omega_k v}a'_k/2\pi$ и проинтегрировать по частоте. Окончательно находим

$$E^{(+)}(\boldsymbol{r}t) = \frac{1}{c^2r}\sqrt{\frac{\hbar}{v}}\int_0^\infty d\omega_k\omega_k^{3/2}e^{ik(r-ct)}a'_{\boldsymbol{k}}. \tag{5}$$

Функция корреляции. Функция корреляции или, иначе, функция взаимной когерентности поля есть, по определению, второй момент электрического поля в $\boldsymbol{r}t$-представлении (поляризацию которого для простоты считаем фиксированной):

$$\Gamma_{12} = \Gamma(\boldsymbol{r}_1\boldsymbol{r}_2\, t_1t_2) \equiv \langle E^{(-)}(\boldsymbol{r}_1t_1)E^{(+)}(\boldsymbol{r}_2t_2)\rangle. \tag{6}$$

Пусть падающее на образец поле и, следовательно, полное выходное поле частотно-диагональное (т. е. стационарное): $N'_{12} = N_{12}^{(\omega)'}\delta(\omega_1 - \omega_2)$ (индекс ω означает деление на δ-функцию), тогда подстановка (5) в (6) дает

$$\Gamma_{12} = \frac{\hbar}{c^4r_1r_2v}\int_0^\infty d\omega_1\omega_1^3e^{i\omega_1\tau_{12}}N_{12}^{(\omega)'}, \tag{7}$$
$$\tau_{12} \equiv t_1 - t_2 - (r_1 - r_2)/c, \quad \boldsymbol{k}_i = \omega\hat{\boldsymbol{r}}_i/c \quad (i = 1, 2).$$

Таким образом, функция корреляции зависит лишь от разности моментов наблюдения, а средняя интенсивность в точке $\boldsymbol{r}_1$ не зависит от времени:

$$S(\boldsymbol{r}_1) = \frac{c}{2\pi}\Gamma_{11} = \frac{\hbar}{2\pi c^3 r_1^2 v}\int_0^\infty d\omega\omega^3 N_1^{(\omega)'}. \tag{8}$$

Введем нормированную функцию корреляции

$$\gamma_{12} \equiv \frac{\Gamma_{12}}{\sqrt{\Gamma_{11}\Gamma_{22}}} = \frac{\int d\omega\omega^3 e^{i\omega\tau_{12}} N_{12}^{(\omega)'}}{\left(\int d\omega\omega^3 N_1^{(\omega)'}\int d\omega\omega^3 N_2^{(\omega)'}\right)^{1/2}}. \tag{9}$$

Фиксируем направление наблюдения и пусть $\boldsymbol{r}_1 \parallel \boldsymbol{r}_2$, тогда γ зависит лишь от одного независимого аргумента — задержки τ_{12}; ширина функции $\gamma(\tau_{12})$, умноженная на c, называется продольной длиной когерентности $l_{\text{ког}}$. Если же точки наблюдения находятся на прямой, перпендикулярной среднему направлению на образец, то ширина функции γ при изменении расстояния между точками наблюдения называется поперечным размером когерентности $r_{\text{ког}}$. Подстановка ОЗК (4.4.7) в (7) определяет функцию корреляции ТИ в дальней зоне через МР и температуру образца.

Измерение модуля МР. Пусть на входе возбуждена одна мода с интенсивностью S_1, так что

$$N_{kk'} = \frac{8\pi^3}{\hbar\omega_1 c v} S_1 \delta_{kk_1}\delta_{k'k_1}, \tag{10}$$

$$N'_{kk} = \frac{8\pi^3}{\hbar\omega_1 c v}|U_{kk_1}|^2 S_1. \tag{11}$$

Подставив последнее выражение в (8), найдем интенсивность рассеянной в направлении $\boldsymbol{k}_2$ волны в точке $\boldsymbol{r}$ дальней зоны:

$$S'_2 = \left(\frac{2\pi\omega_1}{c^2 v r}\right)^2 |U_{21}^{(\omega)}| S_1. \tag{12}$$

Полученная связь дает рецепт экспериментального определения абсолютной величины МР через отношение S'_2/S_1 (физический смысл имеет комбинация $U_{21}^{(\omega)}/v \equiv U_{21}/v\delta(\omega_2 - \omega_1)$).

Микроскопическая модель. В случае оптически неплотного образца можно при расчете ограничиться первым порядком теории возмущения по d^2. Согласно (4.5.23)

$$\langle \boldsymbol{a}^+(t)\rangle \approx \left[I - \int_{t_0}^{t} dt' \boldsymbol{w}(t')\right]\cdot\langle \boldsymbol{a}^+(t_0)\rangle \tag{13}$$

или (см. (4.5.14) и (4.5.19)),

$$\langle a_k^+\rangle' \approx \sum_{k'}[\delta_{kk'} - 2\pi\delta(\omega_k - \omega_{k'})w_{kk'}]\langle a_{k'}^+\rangle, \tag{14}$$

так что согласно определению (4.4.2)

$$U_{kk'} \approx \delta_{kk'} - 2\pi\delta(\omega_k - \omega_{k'}) w_{kk'} \equiv \delta_{kk'} - u_{kk'}. \tag{15}$$

Пусть молекулы образца одинаковы, независимы и имеют по два резонансных уровня с частотой ω_0 и действительным дипольным моментом перехода $\boldsymbol{d}$, направленным по оси x. При этом из (4.5.8) следует

$$w_{kk'} = \frac{\Delta\rho_{ba}\omega_k d^2 e_{kx} e_{k'x} v}{4\pi^2\hbar\,[i(\omega_k - \omega_0) + \varepsilon]} \sum_{j=1}^{M} e^{i(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}')\cdot\boldsymbol{r}_j}. \tag{16}$$

Введем специальное обозначение для суммы экспонент:

$$\frac{1}{M}\sum_j e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j} \equiv f(\boldsymbol{k}). \tag{17}$$

Чтобы выяснить смысл этой функции, введем нормированную функцию концентрации молекул:

$$F(\boldsymbol{r}) \equiv \frac{1}{M}\sum_j \delta(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}_j), \qquad \int d\boldsymbol{r} F(\boldsymbol{r}) = 1. \tag{18}$$

Теперь мы можем представить $f(\boldsymbol{k})$ в виде

$$f(\boldsymbol{k}) = \int d\boldsymbol{r} F(\boldsymbol{r}) e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}. \tag{19}$$

Таким образом, f является трехмерным фурье-образом распределения молекул. Такие величины в теории рассеяния называются *форм-факторами*.

Из (15)—(17) следует

$$u_{kk'} = \frac{\Delta M\omega_k d^2 e_{kx} e_{k'x} v}{2\pi\hbar\,[i(\omega_k - \omega_0) + \Delta\omega/2]}\,\delta(\omega_k - \omega_{k'}) f(\boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}'), \tag{20}$$

где $\Delta M \equiv M\Delta\rho_{ba}$ — разность населенностей, и мы заменили ε на ширину спектральной линии $\Delta\omega/2$ для учета естественного уширения или других возмущений. Подставим (20) в (4.4.7) (слагаемыми порядка d^4 пренебрегаем):

$$N_{12\text{сп}}^{(\omega)} = \mathcal{N}(u_{12}^{(\omega)} + u_{21}^{(\omega)*}) = \hbar^{-1} M_a \omega_1 d^2 e_{1x} e_{2x} v g(\omega_1) f(\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2), \tag{21}$$

где M_a — число возбужденных молекул и введена спектральная форма линии

$$g(\omega) \equiv \frac{\Delta\omega/2\pi}{(\omega - \omega_0)^2 + \Delta\omega^2/4}, \qquad \int d\omega g = 1. \tag{22}$$

Объединив (21), (9) и (7), найдем функцию корреляции ТИ «тонкого» образца в дальней зоне:

$$\gamma_{12} = \int d\omega e^{i\omega\tau_{12}} g(\omega) f\left(\frac{\hat{\boldsymbol{r}}_1 - \hat{\boldsymbol{r}}_2}{c}\omega\right), \tag{23}$$

$$\Gamma_{11} = M_a\left(\frac{k_0^2 d\cos\vartheta}{r_1}\right)^2, \tag{24}$$

где $k_0 \equiv \omega_0/c$, $\cos\vartheta \equiv e_{kx}$ и принято $\omega_0 \gg \Delta\omega$.

Итак, нормированная функция корреляции определяется спектральным g и пространственным f форм-факторами излучателя.

Объем когерентности. Пусть угол между направлениями наблюдения мал, так что $\Delta\vartheta \equiv |\hat{\boldsymbol{r}}_1 - \hat{\boldsymbol{r}}_2| \ll c/a\Delta\omega$, тогда, как легко проверить, можно в (23) пренебречь зависимостью пространственного форм-фактора от ω, и в результате функция корреляции факторизуется:

$$\gamma_{12} = g(\tau_{12}) f(\boldsymbol{\varkappa}_{12}), \tag{25}$$

$$g(\tau) \equiv \int d\omega e^{i\omega\tau} g(\omega) = e^{i\omega_0\tau - \Delta\omega|\tau|/2},$$

$$\boldsymbol{\varkappa}_{12} \equiv k_0(\hat{\boldsymbol{r}}_1 - \hat{\boldsymbol{r}}_2).$$

Таким образом, функция продольной когерентности $g(\tau)$ равна фурье-образу спектральной формы линии $g(\omega)$, а функция поперечной когерентности $f(\boldsymbol{\varkappa})$ равна трехмерному фурье-образу концентрации молекул, т. е. форм-фактору образца.

Если среднее расстояние между молекулами много больше длины волны λ, то можно аппроксимировать $F(\boldsymbol{r})$ гладкой функцией $\bar{F}(\boldsymbol{r})$, т. е. перейти к приближению сплошной среды. Пусть функция $\bar{F}(\boldsymbol{r})$ постоянна вдоль направления $\varkappa$ в интервале $\pm a/2$ и равна нулю вне этого интервала, тогда

$$f(\varkappa) = \operatorname{sinc}(k_0 a \Delta\vartheta/2), \tag{26а}$$

$$\operatorname{sinc} x \equiv x^{-1}\sin x, \quad \Delta\vartheta \equiv |\hat{\boldsymbol{r}}_1 - \hat{\boldsymbol{r}}_2|.$$

Если же $\bar{F}(x) \sim \exp(-x^2/a^2)$, то

$$f(\varkappa) = \exp[-(k_0 a \Delta\vartheta/2)^2]. \tag{26б}$$

Итак, поля коррелируют лишь в пределах длины «цуга» $l_{\text{ког}} \sim 2\pi c/\Delta\omega$ и дифракционного угла $r_{\text{ког}}/r \sim \lambda/a \equiv \Delta\vartheta_{\text{диф}}$ (как и можно было ожидать заранее в модели с независимыми источниками). Функция корреляции γ_{12}, рассматриваемая как функция $\boldsymbol{r}_2$ при фиксированной точке $\boldsymbol{r}_1$ и при $t_1 = t_2$, имеет заметную величину лишь в пределах *объема когерентности* около точки $\boldsymbol{r}_1$, имеющего порядок

$$V_{\text{ког}} \equiv l_{\text{ког}} r_{\text{ког}}^2 = \frac{2\pi c}{\Delta\omega}\left(\frac{\lambda r_1}{a}\right)^2 = \frac{(2\pi c)^3}{\omega^2 \Delta\omega \Delta\Omega_a}, \tag{27}$$

где $\Delta\Omega_a \equiv (a/r_1)^2$ — телесный угол, охватываемый образцом. Можно сказать, что $V_{\text{ког}}^{-1}$ является объемом области в $\boldsymbol{k}$-пространстве (с центром в точке $\boldsymbol{k}_1 = \omega_0\hat{\boldsymbol{r}}_1/c$), в которой моды статистически зависимы (т. е. «флуктуируют» синхронно). Если же выбрать объем квантования равным $V_{\text{ког}}$, то соседние моды будут независимыми: $N_{12} \sim \delta_{12}$. Таким образом, $V_{\text{ког}}$ задает естественный

масштаб для выбора объема квантования поля. Можно для наглядности считать, что фотоны представляют классические пакеты волн с размерами порядка $V_{\text{ког}}$ и формой, определяемой функцией когерентности, и что разные пакеты не интерферируют друг с другом. Ниже мы дадим несколько иное определение объема когерентности.

Найдем с помощью (24) вероятность излучения фотона одним из возбужденных атомов. Общий поток фотонов равен умноженному на $c/2\pi\hbar\omega_0$ интегралу от (24) по сфере радиусом r. Разделив на M_a, получаем обычное выражение для вероятности спонтанного излучения ($\tilde{\vartheta}$ — угол между $\boldsymbol{d}$ и $\boldsymbol{k}$):

$$W_{\text{сп}} = \frac{k_0^3 d^2}{2\pi\hbar} \int d\Omega \sin^2 \tilde{\vartheta} = \frac{4k_0^3 d^2}{3\hbar}. \tag{28}$$

Счет фотонов. Экспериментально W или Γ_{11} можно определить с помощью фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). Добавив к ФЭУ интерферометр Юнга или Майкельсона, можно измерить и γ_{12}. С помощью теории возмущения можно показать [1], что вероятность P появления одного фотоэлектрона в интервале времени T пропорциональна интегралу от мгновенной интенсивности поля $S(\boldsymbol{r}t)$ по поверхности фотокатода A и по интервалу T:

$$P \sim \frac{c}{2\pi} \int\limits_A dA \int\limits_t^{t+T} dt' \langle E^{(-)}(\boldsymbol{r}t') E^{(+)}(\boldsymbol{r}t') \rangle, \tag{29}$$

т. е. энергии поля в объеме детектирования $V_{\text{дет}} \equiv cTA$. Здесь предполагается, что объем детектирования и интенсивность достаточно малы, так что $P \ll 1$ и можно пренебречь вероятностью появления двух или большего числа фотонов. Кроме того, в (29) подразумевается, что полоса частот поля много меньше полосы чувствительности ФЭУ. Моменты включения t и выключения $t+T$ детектора можно задавать с помощью электронной схемы.

Подстановка (5) в (29) дает вероятность фотоотсчета в дальней зоне:

$$P = \frac{1}{2\pi c^2 v} \int\limits_{\Delta\Omega} d\Omega \int\limits_0^\infty d\omega\, d\omega' \omega\omega' \xi^*(\omega) \xi(\omega') N'_{kk'} \int\limits_t^{t+T} dt' e^{i(\omega-\omega')\bar{t}}, \tag{30}$$

где $\boldsymbol{k} = \hat{\boldsymbol{r}}\omega/c$, $\boldsymbol{k}' = \hat{\boldsymbol{r}}\omega'/c$, $\bar{t} = t' - r/c$ и в (5) для учета частотной фильтрации добавлен амплитудный коэффициент передачи оптического тракта $\xi(\omega)$ и множитель $1/\sqrt{\hbar\omega}$, который делает правую часть (30) безразмерной. Мы предположили, что поверхность фотокатода перпендикулярна направлению на образец, и заменили поверхностный интеграл интегралом по телесному углу $\Delta\Omega = A/r^2$, охватываемому катодом. Если $A \ll \lambda r$, то направление $\hat{\boldsymbol{r}}$ можно

считать постоянным по апертуре детектора. Итак, согласно (30) ФЭУ измеряет диагональные по направлению нормально-упорядоченные моменты поля, усредненные по объему детектирования и «заглаженные» частотным коэффициентом передачи тракта.

Заметим, что если перед ФЭУ установлены пространственные фильтры (экраны с отверстиями, зеркала и т. д.), то вероятность отсчета будет зависеть и от недиагональных по направлению моментов. Так, с помощью экрана с двумя отверстиями можно измерить функцию поперечной когерентности. В общем случае вероятность одного отсчета можно представить в виде

$$P \sim \sum_{kk'} \eta_{kk'} \langle a_k^+ a_{k'} \rangle, \tag{31}$$

где коэффициенты η определяют суммарную частотную и пространственную фильтрацию мод детектором.

В случае стационарного поля вероятность (30) пропорциональна T и можно определить среднюю скорость счета фотонов:

$$W \equiv \frac{P}{T} = \frac{1}{2\pi c^3 v_\xi^4} \int d\Omega d\omega \omega^2 \eta(\omega) N_k^{(\omega)}, \tag{32}$$

где $\eta \equiv |\xi|^2$ — энергетический коэффициент передачи с учетом квантового выхода ФЭУ. Эта формула (которую можно было получить сразу из (8)) устанавливает связь между непосредственно наблюдаемой величиной W и диагональными элементами матрицы $\boldsymbol{N}$. Обратим внимание на различие между формулами (32) и (1.1.23) (последняя справедлива в «ближней» зоне, где свет падает на поверхность детектора под различными углами).

Феноменологическая модель. Рассмотрим феноменологическую модель образца, соответствующую абсолютно черному телу, полностью поглощающему падающее излучение. Последнее означает, что коэффициент поглощения плоской волны пропорционален отношению площади «тени» a^2, отбрасываемой телом на плоскость, перпендикулярную направлению наблюдения $\hat{\boldsymbol{r}}$, к сечению объема квантования (также перпендикулярного $\hat{\boldsymbol{r}}$): $\mathcal{A} \sim a^2/L_x L_y$. Чтобы учесть упругость рассеяния, добавим безразмерный множитель $2\pi\delta(k - k')/L_z$:

$$\mathcal{A} = \frac{vca^2}{4\pi^2} \delta(\omega_k - \omega_{k'}). \tag{33}$$

Подставив (33) и (4.4.13) в (32), найдем

$$W = \frac{a^2 \Delta\Omega_{\text{дет}}}{8\pi^3 c^2} \int d\omega \omega^2 \eta(\omega) \mathcal{N}. \tag{34}$$

Если перед детектором стоит узкополосный фильтр с полосой $\Delta\omega_{\text{дет}}$, то (34) можно представить в виде

$$W = \eta \mathcal{N} \frac{\Delta\Omega_{\text{дет}}}{\Delta\Omega_{\text{ког}}} \frac{\Delta\omega_{\text{дет}}}{2\pi}, \quad \Delta\Omega_{\text{ког}} \equiv \frac{\lambda^2}{a^2}. \tag{35}$$

Пусть теперь тень от тела не абсолютно черная, и ее плотность зависит от частоты:

$$\mathcal{A}^{(\omega)} = \frac{vca^2}{4\pi^2} D(\omega). \tag{36}$$

Пренебрежем зависимостью η и $\mathcal{N}$ от частоты, тогда вероятность одного отсчета P за время выборки T можно представить в виде

$$P = \eta D_{\max} \mathcal{N} \frac{\Delta\Omega_{\text{дет}}}{\Delta\Omega_{\text{ког}}} \frac{\Delta\omega_{\text{эф}} T}{2\pi}, \tag{37}$$

где $\Delta\omega_{\text{эф}} \equiv D_{\max}^{-1} \int d\omega D(\omega)$ и $D_{\max}$ — оптическая плотность тела в центре его полосы поглощения. Так как, по предположению, вероятности двух или большего числа отсчетов много меньше P, то P имеет также смысл среднего числа отсчетов $\langle n \rangle$. Если принять

$$\tau_{\text{ког}} = \frac{2\pi}{\Delta\omega_{\text{эф}}}, \quad V_{\text{ког}} = cr^2 \tau_{\text{ког}} \Delta\Omega_{\text{ког}}, \quad D_{\max} = \eta = 1,$$

то (37) принимает следующую простую форму:

$$\langle n \rangle = \mathcal{N} V_{\text{дет}} / V_{\text{ког}}. \tag{38}$$

Таким образом, при $D = \eta = 1$ среднее число фотоотсчетов в дальней зоне равно среднему числу фотонов в равновесном поле, имеющем температуру тела, умноженному на число независимых мод $V_{\text{дет}}/V_{\text{ког}}$, которые «видит» детектор.

В случае полупрозрачной пластины можно принять, что $D = 1 - \exp(-\alpha l)$, где коэффициент поглощения α в модели независимых молекул равен

$$\alpha = \frac{4\pi^2 d^2 \Delta M \omega g(\omega)}{\hbar c a^2 l}. \tag{39}$$

При $\alpha l \ll 1$ $D \approx \alpha l$ и согласно (36)

$$\mathcal{A}^{(\omega)} = \hbar^{-1} v d^2 \Delta M \omega g(\omega), \tag{40}$$

что совпадает с результатом, полученным ранее (см. (21)). При этом вместо (38) получаем

$$\langle n \rangle = \alpha l \mathcal{N} V_{\text{дет}} / V_{\text{ког}}. \tag{41}$$

§ 4.7. Интерференция интенсивностей

Эффект интерференции или, точнее, корреляции интенсивностей был обнаружен Брауном и Твиссом в 1956 г. [39] (см. также [1, 2, 6, 18]) и применен ими для измерения угловых диаметров звезд. В отличие от обычной интерференции света, он определяется функцией корреляции поля второго порядка, т. е. моментами четвертого порядка (4.4.18). Для наблюдения эффекта используются два ФЭУ, измеряющих мгновенную интенсивность в двух обла-

стях теплового поля. Очевидно, что эти интенсивности в случае достаточно близких (в пределе — совпадающих, что можно осуществить с помощью полупрозрачного зеркала) областей должны флуктуировать синхронно, причем можно ожидать, что корреляция, как и в случае интерференции амплитуд, будет наблюдаться, лишь если оба объема детектирования (§ 4.6) принадлежат хотя бы частично общему объему когерентности. В настоящем разделе корреляция интенсивностей будет рассмотрена с помощью обобщенного закона Кирхгофа (ОЗК).

Вероятность совпадения фотоотсчетов. Пусть выходы двух ФЭУ соединены со схемой совпадений, которая фиксирует с разрешением T факт одновременного появления импульсов в обоих каналах (длительность импульсов много меньше T). Таким образом, наблюдаемой величиной можно считать вероятность P_c обнаружения двух фотоэлектронов в интервалах времени $0 - T$ и $\Delta t - (T + \Delta t)$, где Δt — время электронной задержки, введенной в один из каналов (сразу полагаем поле стационарным). По аналогии с (4.6.29) можно предполагать, что P_c пропорциональна среднему от произведения операторов интенсивности в двух точках поля, проинтегрированному по двум областям детектирования:

$$P_c \sim \frac{c^2}{4\pi^2} \int dA_1 dA_2 \int\limits_0^T dt_1 \int\limits_{\Delta t}^{\Delta t+T} dt_2 \langle E_1^{(-)} E_2^{(-)} E_1^{(+)} E_2^{(+)} \rangle. \qquad (1)$$

Операторы здесь расположены в нормальной последовательности, что следует из рассмотрения процесса детектирования с помощью теории возмущения [1].

Подставив в (1) дальнее поле (4.6.5) с дополнительным фактором $\xi(\omega)/\sqrt{\hbar\omega}$, учитывающим дисперсию квантового выхода ФЭУ и дополнительную фильтрацию, и заменив dA/r^2 на $d\Omega$, найдем (ср. (4.6.30)):

$$P_c = (2\pi c^3 v)^{-2} \int d\Omega_1 d\Omega_2 d\omega_1 d\omega_1' d\omega_2 d\omega_2' \times$$
$$\times \omega_1 \omega_1' \omega_2 \omega_2' \xi_1^*(\omega_1) \xi_1(\omega_1') \xi_2^*(\omega_2) \xi_2(\omega_2') \langle a_1^+ a_2^+ a_{1'} a_{2'} \rangle \times$$
$$\times \int dt_1 dt_2 \exp i\,[(\omega_1 - \omega_1')\,\bar{t}_1 + (\omega_2 - \omega_2')\,\bar{t}_2], \qquad (2)$$

где $\boldsymbol{k}_i = \hat{\boldsymbol{r}}_i \omega_i / c$, $\boldsymbol{k}_i' = \hat{\boldsymbol{r}}_i \omega_i' / c$, $\bar{t}_i = t_i - r/c$ $(i = 1, 2)$ и $\hat{\boldsymbol{r}}_i$ — единичные векторы.

В случае стационарных полей момент содержит δ-функцию, дающую равенство $\omega_1 - \omega_1' = \omega_2' - \omega_2$, поэтому

$$\int dt_1 dt_2 \ldots \sim T^2 \operatorname{sinc}^2 \left(\frac{\omega_1 - \omega_1'}{2} T \right) \exp i\,(\omega_1' - \omega_1)\,\tau, \qquad (3)$$

где $\tau \equiv \Delta t + (r_1 - r_2)/c$ — суммарная задержка. Если фотокатоды умещаются в первые зоны Френеля, то τ не зависит от Ω_i.

Формула (2) связывает четвертый момент поля с непосредственно наблюдаемой величиной (если убрать угловые скобки, то она будет определять «оператор совпадений»). В (2) входит пять временных параметров (разрешение схемы совпадений T, задержка τ, обратные полосы фильтров $\Delta\omega_i^{-1}$ и время корреляции поля $\Delta\omega^{-1}$), влияющих на P_c. Кроме того, P_c зависит от соотношения между угловыми апертурами детекторов $\Delta\Omega_i$ и углом поперечной когерентности, совпадающим в случае ТИ с дифракционным углом λ/a.

Согласно (4.4.18) в случае ТИ

$$\langle a_1^+ a_2^+ a_{1'} a_{2'}\rangle = N_{11'}^{(\omega)} N_{22'}^{(\omega)} \delta(\omega_1 - \omega_{1'})\,\delta(\omega_2 - \omega_{2'}) + \\ + N_{12'}^{(\omega)} N_{21'}^{(\omega)} \delta(\omega_1 - \omega_{2'})\,\delta(\omega_2 - \omega_{1'}), \qquad (4)$$

так что (2) принимает вид

$$P_c = P_1 P_2 + \\ + (2\pi c^3 v)^{-2} \int d\Omega_1 d\Omega_2 \int_0^T dt_1 dt_2 \left| \int d\omega \omega^2 \xi_1^*(\omega)\, \xi_2(\omega)\, e^{i\omega(t_1 - t_2 + \tau)} N_{12}^{(\omega)} \right|^2, \qquad (5)$$

где вероятности P_i определены формулой (4.6.32). Первое слагаемое в (5) можно назвать вероятностью «случайных» совпадений, которые происходят и при статистически независимых лучах света, падающих на детекторы. Второе слагаемое соответствует «истинным» совпадениям, оно исчезает при независимых лучах. Иначе говоря, это слагаемое соответствует *центральному* моменту интенсивностей:

$$\langle (I_1 - \langle I_1\rangle)(I_2 - \langle I_2\rangle)\rangle = \langle I_1 I_2\rangle + \langle I_1\rangle\langle I_2\rangle \qquad (6)$$

и характеризует их корреляцию.

Фактически измеряются числа импульсов n_i ($i = 1, 2, c$) на входах и выходе схемы совпадений за большой промежуток времени t. Если $P_{1,2} \ll 1$, то можно пренебречь случаями появления двух или большего числа импульсов в одном канале за время T. В случае стационарного поля $P_{1,2}$ согласно (4.6.32) пропорционально T, и можно ввести скорости счета $W_i = n_i/t = P_i/T$. Скорость случайных совпадений равна $W_1 W_2 T$, так что (5) можно представить в виде

$$W_c = W_1 W_2 T\,(1 + m), \qquad (7)$$

где $m \equiv P_c/P_1P_2 - 1$ — важный с точки зрения эксперимента параметр («контраст»), равный отношению истинных и случайных совпадений.

Роль объема детектирования. Сравнение (5) с (4.6.9) показывает, что относительная вероятность истинных совпадений выражается через модуль функции корреляции амплитуд (исправ-

ленной с учетом фильтрации):

$$m = \frac{2}{T^2 \Delta\Omega_1 \Delta\Omega_2} \int d\Omega_1 \Delta\Omega_2 \int_0^T dt\,(T-t)\,|\gamma(r_1, r_2, t, \Delta t)|^2. \qquad (8)$$

Функция корреляции, в свою очередь, определяется МР и температурой образца согласно (4.6.9) и ОЗК.

Рассмотрим сперва идеальный детектор совпадений высокого разрешения, у которого $\Delta\Omega_i \ll \lambda^2/a^2$, $T \ll \Delta\omega^{-1}$, или, короче, $V_{\text{дет}} \ll V_{\text{ког}}$ (a — поперечные размеры образца, $\Delta\Omega_i$ — угловые размеры апертур). Функция γ по определению мало меняется в пределах $V_{\text{ког}}$, и поэтому ее можно вынести из-под интеграла в (8), так что

$$m = |\gamma(\boldsymbol{r}_1, \boldsymbol{r}_2, 0, \Delta t)|^2, \qquad (9)$$

где r_i — теперь координаты центров фотокатодов. Если и они принадлежат общему объему когерентности и $\Delta t \ll \Delta\omega^{-1}$, то $m = 1$; в противном случае $m = 0$. Таким образом, наблюдение зависимости скорости совпадений от координат детекторов и от электронной задержки позволяет измерить модуль функции корреляции и тем самым измерить частотный и пространственный форм-факторы источника (см. (4.6.23)). Однако при $V_{\text{дет}} \ll V_{\text{ког}}$ согласно (4.6.38) $P_i \ll \eta\mathcal{N}$ (η — квантовый выход ФЭУ и $\mathcal{N}$ — фактор вырождения), так что абсолютная скорость совпадений будет очень мала (при обычных температурах источников и оптических частотах). Таким образом, необходим компромисс между разрешением и временем измерения, достигаемый при $V_{\text{дет}} \sim V_{\text{ког}}$. Заметим, что условие $T \ll \Delta\omega^{-1}$ трудно выполнимо, так как быстродействие электроники в лучшем случае порядка 1 нс. Дополнительные случайные совпадения, уменьшающие контраст наблюдаемого сигнала, дают темновые точки ФЭУ.

Существенно, что при $V_{\text{дет}} \gg V_{\text{ког}}$ вероятность истинных совпадений растет пропорционально $V_{\text{дет}}$, а вероятность случайных — $V_{\text{дет}}^2$, и поэтому контраст примерно равен обратному числу независимых мод g, которые «видит» детектор совпадений:

$$m \sim \frac{V_{\text{ког}}}{V_{\text{дет}}} \equiv \frac{1}{g}. \qquad (10)$$

Действительно, подставим в (8) функцию корреляции (4.6.25). При этом (8) также факторизуется:

$$m = \frac{1}{g_{\parallel} g_{\perp}}, \qquad (11)$$

$$g_{\parallel}^{-1} \equiv \frac{2}{T^2} \int_0^T dt\,(T-t)\,e^{-\Delta\omega t} \equiv \frac{\varphi(\Delta\omega T)}{\Delta\omega T}, \qquad (12)$$

$$g_{\perp}^{-1} \equiv \frac{1}{A_1 A_2} \int dA_1\, dA_2 \exp\left\{-\left(\frac{k_0 a}{r}\right)^2 [(x_1 - x_2)^2 + (y_1 - y_2)^2]\right\}, \tag{13}$$

$$\varphi(\beta) \equiv 1 - \frac{1 - e^{-2\beta}}{2\beta} = \begin{cases} \beta & (\beta \ll 1), \\ 1 & (\beta \gg 1), \end{cases} \tag{14}$$

где $\Delta\omega$ — ширина спектра, a — радиус образца (мы взяли гауссову функцию корреляции (4.6.26б)), r — расстояние до образца. Пусть апертуры ФЭУ совпадают в пространстве (это можно по существу сделать с помощью полупрозрачного зеркала) и имеют квадратную форму со стороной b, тогда

$$g_{\perp}^{-1} = \frac{4}{b^4} \left\{\int_0^b dx\,(b - x) \exp\left[-(k_0 a x/r)^2\right]\right\}^2 \equiv \Psi^2(\alpha), \tag{15}$$

$$\Psi(\alpha) \equiv \frac{\sqrt{\pi}\,\Phi(\alpha)}{\alpha} - \frac{1 - e^{-\alpha^2}}{\alpha^2} = \begin{cases} 1 - \dfrac{\alpha^2}{6} & (\alpha \ll 1), \\ \sqrt{\pi}/\alpha & (\alpha \gg 1), \end{cases} \tag{16}$$

$$\Phi(\alpha) \equiv \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\alpha} dt\, e^{-t^2}, \qquad \alpha \equiv \frac{k_0 a b}{r}.$$

Таким образом, при $\Delta\omega T \gg 1$ и $k_0 a b \gg r$

$$m \to \frac{2\pi r^2}{\Delta\omega T k_0^2 a^2 b^2} \sim \frac{1}{g}. \tag{17}$$

Интерпретация эффекта. Хотя эксперимент Брауна — Твисса иногда называют первым экспериментом квантовой оптики, по существу эффект корреляции интенсивностей — классическое явление, не требующее для его понимания квантования поля (в отличие от эффекта корреляции фотонов при двухфотонном распаде возбужденных состояний молекул или фотонов накачки — см. главы 5, 6). Его можно наблюдать и с помощью аналоговых корреляторов. Если $\hbar\omega \ll \varkappa T$, то яркость ТИ определяется формулой Релея — Джинса, не содержащей $\hbar$. Далее, уменьшение относительной величины эффекта m при увеличении $V_{\text{дет}}$ является проявлением общей закономерности теории вероятностей; относительные флуктуации суммы g независимых случайных величин падают при увеличении g.

Конечно, последовательная квантовая теория также описывает эксперимент Брауна — Твисса, однако наглядные фотонные представления приводят к некоторым трудностям, вызвавшим на первых порах оживленную дискуссию. Например, по Дираку фотон может интерферировать лишь «сам с собой», и поэтому полупрозрачное зеркало должно расщепить его на две части. Но, как известно, фотон не может расщепиться с сохранением частоты. Мы вынуждены разрешить интерферировать двум разным фотонам при условии, что они принадлежат одной моде (что, по существу, и имеет место в случае полупрозрачного зеркала). Интересная

интерпретация дана Перселлом [151] в терминах равновесного фотонного «газа» частиц, подчиняющихся статистике Бозе — Эйнштейна. Роль вынужденных процессов обсуждается в [168]. Заметим, наконец, что наш феноменологический подход позволяет описать и эксперимент с полупрозрачным зеркалом, если включить последний в понятие образца.

В заключение отметим, что если интересоваться статистикой поля в одной точке пространства, то можно использовать один ФЭУ (при условии, конечно, $V_{\text{дет}} \ll V_{\text{ког}}$). Наблюдая распределение вероятности появления заданного числа отсчетов за время T, можно определить высшие моменты поля. Связь статистик фотоотсчетов и поля дается известной формулой Манделя [1, 2]. Такие эксперименты представляют большой интерес для исследования статистики лазерного излучения (которое с хорошей точностью описывается смещенным гауссовым состоянием (4.4.15)) и для изучения вещества с помощью квазиупругого рассеяния света и метода «оптического смешения» [164, 165].

ГЛАВА 5

ВЛИЯНИЕ АНГАРМОНИЗМА ВЕЩЕСТВА НА ЕГО ТЕПЛОВОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ

Понятие ангармонизма вещества на оптических частотах появилось в связи с развитием нелинейной оптики. Такие эффекты, как генерация гармоник, сложение и вычитание частоты, самофокусировка, нелинейное поглощение, просветление, вынужденные рассеяния, удобно описывать с помощью иерархии нелинейных восприимчивостей $\chi^{(n)}$, которые вычисляются в рамках полуклассической теории излучения [9—11].

Наиболее изучены и теоретически, и экспериментально вынужденные эффекты, не требующие для расчета квантования поля. Однако фотонные представления очень наглядны, и трактовка нелинейных эффектов, связанных с изменением частотного спектра поля, с помощью элементарных многофотонных процессов получила широкое распространение. С другой стороны, спонтанные нелинейные эффекты типа многофотонного излучения последовательно описываются лишь квантовой теорией поля и вещества. Некоторые смешанные спонтанно-вынужденные эффекты, наблюдаемые при участии падающего поля — накачки (например, параметрическое рассеяние света — см. гл. 6), удается достаточно полно отразить феноменологической «полуквантовой» теорией, в которой переменные вещества исключены с помощью нелинейных восприимчивостей.

Настоящая глава посвящена в основном элементарному рассмотрению спонтанного нелинейного эффекта — двухфотонного излучения нагретого вещества [184]. В § 5.1 обсуждается связь многофотонных переходов и высших моментов поля. В § 5.2 эти моменты с помощью теории возмущений выражаются через равновесные моменты вещества, что позволило в § 5.3 оценить третий момент поля, излучаемого нецентросимметричным веществом. В § 5.4 с помощью кинетического уравнения и эффективного двухфотонного гамильтониана выводится приближенный [1]) нелинейный ОЗК, дающий связь между вторыми и четвертыми моментами теплового излучения (ТИ) и кубической матрицей рассеяния (МР) излучателя. В конце § 5.4 рассмотрен ОЗК для случая, когда одновременно разрешены одно- и двухфотонные переходы (при этом третий момент ТИ выражается через квадратичную МР).

[1]) Стратонович недавно рассмотрел общие соотношения между кумулянтами произвольного порядка и функционалом преобразования излучателя [185].

§ 5.1. Многофотонные переходы и высшие моменты поля

Ангармонизм и корреляция разночастотных мод. Возбужденная молекула может перейти в основное состояние посредством двухфотонного перехода, при котором излучаются два фотона с частотами ω_1 и ω_2 (см. рис. 5, *г*). Эти фотоны при отсутствии реального промежуточного уровня возникают практически одновременно. В случае каскадного (т. е. резонансного) двухфотонного перехода второй фотон излучается с задержкой, равной в среднем радиационному времени жизни промежуточного состояния. Существенно, что в обоих случаях фотоны появляются парами, и в результате компоненты поля с частотами ω_1 и ω_2 оказываются статистически зависимыми. Аналогично, n-фотонные переходы связывают n спектральных компонент поля ТИ. В то же время линейные системы — например, гармонический осциллятор — имеют эквидистантный набор уровней, так что $\omega_1 = \omega_2 = \ldots$, и поэтому каскадные многофотонные переходы в таких системах не приводят к корреляции между различными частотными компонентами поля. Ясно, что корреляция разночастотных мод не специфична для квантовых моделей.

Равновесная и неравновесная задачи. При рассмотрении теплового электромагнитного поля с учетом ангармонизма вещества, как и в линейном случае (гл. 4), возможны две постановки задачи, т. е. следует различать равновесное излучение внутри бесконечной нелинейной среды (или в замкнутой полости с нелинейным элементом, перемешивающим моды [1])) и тепловое излучение снаружи нелинейного подогреваемого вещества, занимающего конечную область пространства.

Первая задача охватывается, в принципе, гиббсовским формализмом равновесной термодинамики, и задача сводится к определению независимых степеней свободы системы, т. е. к математической проблеме диагонализации гамильтониана системы «вещество + поле». Аналогичная проблема решается в теории экситонов, в теории многих взаимодействующих частиц, в квантовой электродинамике.

Вторая задача — о тепловом излучении во внешнее пространство с учетом ангармонизма — формально относится к неравновесной термодинамике и до сих пор, по-видимому, не привлекала внимания. Ясно, что при общей постановке она является чрезвычайно сложной, и мы здесь ограничимся выяснением лишь основных и доступных непосредственному наблюдению закономерностей с помощью простых моделей.

---

[1]) Заметим, что, в принципе, без такого элемента («угольная пылинка» Кирхгофа) невозможен обмен энергией между разночастотными модами и, следовательно, установление планковского распределения.

Роль вещества в линейных оптических явлениях принято выражать через его диэлектрическую проницаемость ε или линейную восприимчивость $\chi^{(1)} = (\varepsilon - 1)/4\pi$ (которая может быть связана с линейной МР $U^{(1)}$). Наблюдение ТИ вещества (например, плазмы) несет информацию об ε и, следовательно, о состоянии и строении вещества. По аналогии можно поставить вопрос о том, какую дополнительную информацию может дать наблюдение проявлений «многофотонности» в ТИ. Нельзя ли измерить таким образом нелинейные восприимчивости $\chi^{(n)}$? Нельзя ли и в нелинейном случае выразить моменты ТИ вещества через его динамические макроскопические параметры $\chi^{(n)}$ или $U^{(n)}$? И существуют ли связи между спонтанными и вынужденными процессами типа закона Кирхгофа при учете ангармонизма?

Двухфотонный парадокс. Чтобы показать, что эти вопросы не совсем тривиальны, приведем следующие два противоречивых суждения.

1. При выводе линейной ФДТ (§ 2.4) или обычного закона Кирхгофа (§ 4.3) не предполагается линейность системы [1]), поэтому если на какой-либо частоте ω_1 нелинейный образец прозрачен, то в силу (4.2.4) флуктуаций поляризации и, следовательно, излучения на этой частоте не будет:

$$\langle E_1^{(-)} E_1^{(+)} \rangle \sim \operatorname{Im} \chi^{(1)}(\omega_1) = 0 \tag{1}$$

— прозрачное вещество не излучает света, сколько его ни грей!

2. Но, с другой стороны, пусть молекулы того же образца имеют возбужденный уровень с энергией $\hbar(\omega_1 + \omega_2)$, который связан разрешенным двухфотонным некаскадным переходом с основным. Этот уровень под действием термостата заселяется, и, следовательно, образец будет излучать свет в широком диапазоне частот, и в том числе на частоте ω_1:

$$\langle E_1^{(-)} E_1^{(+)} \rangle \neq 0. \tag{2}$$

Это противоречие между линейной ФДТ и двухфотонным излучением в полосе прозрачности разрешается лишь отказом от традиционной схемы расчета ТИ через равновесные моменты поляризации вещества (§ 4.3). Молекулы, «нагруженные» на электромагнитный вакуум, нельзя при строгом рассмотрении считать равновесными, так как надо учитывать реакцию излучения. Последняя, помимо *естественного* лоренцева уширения однофотонных спектральных линий и их небольшого *лембовского* сдвига, приводит в случае ангармонических молекул к сплошному спектру ТИ (не связанному с крыльями лоренцевых линий).

---

[1]) В случае ФДТ это обстоятельство специально обсуждалось Бункиным (см. [144], с. 266).

Отметим также, что часто статистика ТИ макроскопических образцов, содержащих $\sim 10^{23}$ независимых молекул, полагается гауссовой на основании центральной предельной теоремы. Однако строго гауссовость ТИ следует лишь в однофотонном приближении (§ 4.5). Как будет показано в § 5.4, двухфотонное ТИ — существенно не гауссово, что в эксперименте проявляется в отсутствии случайных совпадений фотоотсчетов, а в теории — в отличии от нуля кумулянтов более высокого порядка, чем второй (см. (3.3.42)). Другим интересным проявлением оптического ангармонизма вещества является наличие нечетных моментов поля ТИ (§ 5.3).

§ 5.2. Вычисление моментов поля с помощью теории возмущения

Обычно в квантовой механике динамические процессы описываются с помощью вероятностей переходов, которые определяются «золотым» правилом Ферми (2.3.32). Вероятности излучения одного, двух, . . . фотонов пропорциональны диагональным моментам четного поряда $\langle a_1^+ a_1 \rangle$, $\langle a_1^+ a_2^+ a_1 a_2 \rangle$, . . . Однако для описания интерференционных экспериментов надо знать недиагональные моменты $\langle a_1^+ a_2 \rangle$, . . ., и, кроме того, как будет ясно из дальнейшего, ангармоническое вещество может излучать моменты нечетного порядка $\langle a_1^+ a_2 a_3 \rangle$.

В связи с этим мы используем вместо золотого правила более универсальный формализм, основанный на общей теории возмущения (§ 2.3). Для этого выберем в формуле (2.3.20) в качестве оператора наблюдаемой величины интересующий нас одновременный [1]) момент

$$f(t) \equiv a_1(t) \ldots a_n(t) \tag{1}$$

или характеристический оператор $f(t) \equiv \hat{\chi}(t)$, который после усреднения по начальному состоянию позволит вычислить любой нормально-упорядоченный момент.

Энергию взаимодействия возьмем снова в простейшем приближении — дипольном с неподвижными атомами. Объединим в (3.2.14) индексы: $k = \{\boldsymbol{k}, \nu_k, s_{k\nu}\}$, где $s_{k\nu} = \pm 1$, тогда оператор электрического поля в центре j-й молекулы в представлении взаимодействия выразится через операторы рождения и уничтожения следующим образом:

$$\boldsymbol{E}^0(\boldsymbol{r}_j t) = -i\hbar \sum_k \boldsymbol{c}_{kj} a_k^0 \exp(i s_k \omega_k t), \tag{2}$$

---

[1]) Переход к разновременным моментам в случае свободного поля тривиален.

где

$$a_{\boldsymbol{k}\nu+} \equiv a^{+}_{\boldsymbol{k}\nu}, \quad a_{\boldsymbol{k}\nu-} \equiv a_{\boldsymbol{k}\nu},$$
$$\boldsymbol{c}_{\boldsymbol{k}\nu sj} \equiv s_k \sqrt{\frac{\omega_k v}{4\pi^2\hbar}}\, \boldsymbol{e}_{\boldsymbol{k}\nu} \exp(-is_k \boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}_j). \tag{3}$$

Коммутаторы для новых операторов равны

$$[a_k, a_{k'}] = -s_k \delta_{k\bar{k}} \equiv -s_k \delta_{\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}'} \delta_{\nu\nu'} \delta_{s\bar{s}'}. \tag{4}$$

Снова объединим индексы:

$$q \equiv \{j, \alpha, k\} \equiv \{j, \alpha, \boldsymbol{k}, \nu_k, s_{k\nu}\}, \tag{5}$$

тогда энергия взаимодействия свободного поля с образцом в момент времени t_n примет вид:

$$\mathscr{V}^0(t_n) \equiv \mathscr{V}_n = i\hbar \sum_q c_q d_q^{(n)} a_q e^{i\omega_q t}, \tag{6}$$
$$d_q^{(n)} \equiv d^0_{j\alpha}(t_n), \quad \omega_q \equiv s_k \omega_k, \quad c_q^* = -c_{\bar{q}},$$
$$(a_q)^+ = a_{\bar{q}}, \quad \bar{q} \equiv \{j, \alpha, \boldsymbol{k}, \nu_k, -s_{k\nu}\}.$$

Связь выходных и входных моментов. Подставив (1) и (6) в (2.3.2) и усреднив по начальному состоянию с независимыми полем и веществом, получим общее выражение для моментов выходного поля через моменты входного (т. е. начального) поля в n-м порядке теории возмущения:

$$\langle a'_{k_1} \ldots a'_{k_m} \rangle^{(n)} = \sum_{p=0}^{n} \mathscr{M}^{(np)}_{k_1 \ldots k_m}, \tag{7}$$

$$\mathscr{M}^{(np)}_{k_1 \ldots k_m} \equiv \sum_{q_1 \ldots q_n} u^{(np)}_{q_1 \ldots q_n} \langle a_{q_1} \ldots a_{q_p} a_{k_1} \ldots a_{k_m} a_{q_{p+1}} \ldots a_{q_n} \rangle, \tag{8}$$

$$u^{(np)}_{q_1 \ldots q_n}(\omega_{q_1} \ldots \omega_{q_n}) \equiv (-1)^p (2\pi)^n\, c_{q_1} \ldots c_{q_n}\, \hat{\Phi}\{\varphi^{(np)}_{q_1 \ldots q_n}(t_1 \ldots t_n)\}, \tag{9}$$

$$\varphi^{(np)}_{q_1 \ldots q_n}(t_1 \ldots t_n) \equiv \langle d^{(1)}_{q_1} \ldots d^{(n)}_{q_n} \rangle\, \theta_{21} \ldots \theta_{p,\, p-1} \theta_{p+1,\, p+2} \ldots \theta_{n-1,\, n}, \tag{10}$$

$$\hat{\Phi}\{f(t_1 \ldots t_n)\} \equiv (2\pi)^{-n} \int dt_1 \ldots dt_n f(t_1 \ldots t_n) \exp i\,(\omega_1 t_1 + \ldots \omega_n t_n) \tag{11}$$

(если один из индексов θ-функции меньше 1, то $\theta \equiv 1$).

Теория возмущений в форме (7) определяет закон преобразования моментов падающего поля образцом, т. е. полностью определяет все его оптические свойства. Заменив в (7) моменты (1) на характеристический оператор и воспользовавшись правилами коммутации (4.5.16), получим закон преобразования χ-функции.

В частности, полагая начальное состояние поля вакуумным, найдем χ-функцию спонтанного поля, излучаемого образцом. Если при этом считать начальное состояние вещества равновесным с температурой T и пренебречь радиационным охлаждением, то спонтанное излучение переходит в тепловое. Далее, если в падающем излучении возбуждена одна мода, то (7) описывает рассеяние света, как упругое, так и комбинационное. В случае когерентного состояния падающего поля и $m = 1$ (7) определяет последовательность матриц рассеяния $U^{(n)}$ через равновесные моменты образца. $U^{(2)}$ при этом, естественно, совпадает с (4.6.15). $U^{(3)}$ описывает эффекты сложения и вычитания двух частот, включая удвоение и оптическое выпрямление. $U^{(4)}$ описывает преобразование трех частот и т. д.

Полученные соотношения не учитывают многие существенные факторы, однако мы здесь лишь стремились на простом примере подчеркнуть возможность феноменологического описания оптических свойств образца конечных размеров, которая должна сохраниться и в более реалистичных моделях.

Итак, согласно (7)—(10) вся индивидуальность образца заключена в иерархической последовательности матриц $\boldsymbol{u}^{(np)}$, которые являются фурье-образами функций корреляции для дипольных моментов $\varphi^{(np)}$, «усеченных» с помощью θ-функций. Это усечение обеспечивает причинную последовательность взаимодействий во времени и формально эквивалентно замене преобразования Фурье на преобразование Лапласа. В спектральном представлении умножению на θ-функцию соответствует свертка с $\tilde{\theta}(\omega)$ (см. 2.4.7а). Для краткости эту операцию будем называть преобразованием Гильберта (хотя последнему отвечает лишь 1-е слагаемое в (2.4.7а)). При $n \geqslant 3$ в (10) имеется $n - 1$ θ-функций, чему соответствует многомерное преобразование Гильберта (случай $n = 3$ см. в [152]). В результате моменты поля (т. е. его спектральные функции) оказываются пропорциональными гильберт-образам спектральных функций молекул, что и приводит к превращению дискретного спектра молекул в сплошной спектр многофотонного спонтанного излучения.

Операторы поля в правой части (7) можно с помощью (4) представить в виде суммы нормально-упорядоченных операторов, например [1]),

$$
\begin{aligned}
a_1a_2 &= :a_1a_2: + \delta_{\bar{1}\bar{2}},\\
a_1a_2a_3 &= :a_1a_2a_3: + a_1\delta_{\bar{2}\bar{3}} + a_2\delta_{\bar{1}\bar{3}} + a_3\delta_{\bar{1}\bar{2}},\\
a_1a_2a_3a_4 &= :a_1a_2a_3a_4 + a_3a_4\delta_{\bar{1}\bar{2}} + a_1a_2\delta_{\bar{3}\bar{4}} + a_1a_3\delta_{\bar{2}\bar{4}} +\\
&\quad + a_1a_4\delta_{\bar{2}\bar{3}} + a_2a_3\delta_{\bar{1}\bar{4}} + a_2a_4\delta_{\bar{1}\bar{3}} : + \delta_{\bar{1}\bar{2}}\delta_{\bar{3}\bar{4}} + \delta_{\bar{1}\bar{3}}\delta_{\bar{2}\bar{4}} + \delta_{\bar{1}\bar{4}}\delta_{\bar{2}\bar{3}}.
\end{aligned}
\tag{12}
$$

[1]) Эта процедура в более сложных случаях облегчается применением теоремы Вика [152].

Символы Кронекера здесь определены следующим образом:

$$\delta_{\bar{1}2} \equiv \delta_{k_1k_2}\delta_{\nu_1\nu_2}\delta_{s_1-1}\delta_{s_2 1}; \tag{13}$$

операторы в произведениях, окруженных двоеточиями, следует располагать в нормально-упорядоченной последовательности. Если входное поле находится в состоянии вакуума, то вклад в (7) дадут лишь неоператорные слагаемые в (12).

Общие свойства преобразования. Рассмотрим некоторые общие свойства разложения (7) и многочастотных спектральных функций $u^{(np)}$. Из определения (8) следует

$$\mathcal{M}^{(np)} = \mathcal{M}^{(n,\, n-p)*}. \tag{14}$$

Эрмитовость операторов d и определения (9), (10) дают

$$u^{(np)}_{q_1 \ldots q_n} = u^{(n,\, n-p)*}_{\bar{q}_n \ldots \bar{q}_1}, \tag{15}$$

где черта над индексом q означает обратный знак частотного индекса s. В (7) вместо операторов $\langle a_1 \ldots a_m \rangle$ можно взять любой оператор поля, в частности, тождественный оператор

$$\langle I \rangle^{(n)} = \delta_{n0} = \sum_{p=0}^{n} \sum_{q} u^{(np)}_{q_1 \ldots q_n} \langle a_{q_1} \ldots a_{q_n} \rangle.$$

Очевидно, это равенство может выполняться при всех состояниях поля лишь если

$$\sum_{p=0}^{n} u^{(np)}_{q_1 \ldots q_n} = 0. \tag{16}$$

Таким образом, число независимых матриц $u^{(np)}$ с различными индексами p равно порядку теории возмущения n. Связь (16) можно получить также из определения (9) и тождества $\theta_{12} + \theta_{21} = 1$:

$$\sum_p u^{(np)} \sim \sum_p (-1)^p \theta_{21} \ldots \theta_{p,\, p-1} \theta_{p+1,\, p+2} \ldots \theta_{n-1,\, n} = 0. \tag{17}$$

Например, при $n = 2, 3$:

$$\theta_{12} - 1 + \theta_{21} = 0, \qquad \theta_{12}\theta_{23} - \theta_{23} + \theta_{21} - \theta_{21}\theta_{32} = 0. \tag{18}$$

Формулы (12) и (16) позволяют уменьшить порядок моментов в правой части (7) на 2, так как старшие члены в (12) благодаря (16) сокращаются. В результате выходной момент порядка m в n-м порядке теории возмущения определяется через входные моменты порядка $m' \leqslant m + n - 2$ (это следует также из (2.3.22)).

Пусть теперь матрица плотности вещества диагональна в энергетическом представлении, тогда временные моменты $\varphi(t_1 \ldots t_n)$ стационарны (т. е. не меняются при смещении всех аргументов на произвольный интервал τ), а спектральные моменты пропорциональны δ-функции:

$$u^{(np)}_{q_1 \ldots q_n} = u^{(np)(\omega)}_{q_1 \ldots q_n} \delta(\omega_{q_1} + \ldots + \omega_{q_n}). \tag{19}$$

Отсюда знаковые индексы s (которые иногда удобно выписывать отдельно над общим индексом q) не могут быть все одинаковыми. Например:

$$u_{q_1q_2}^{(--)(2p)} = u_{q_1q_2}^{(++)(2p)} = 0, \tag{20}$$

$$u_{q_1q_2}^{(+-)(22)} = u_{q_2q_1}^{(+-)(20)*} =$$
$$= 4\pi^2 c_{q_1} c_{q_2} \widehat{\Phi} \{\langle d_{j_1\alpha_1}^0(t_1)\, d_{j_2\alpha_2}^0(t_2)\rangle\, \theta(t_2 - t_1)\} =$$
$$= 2\pi\delta(\omega_1 - \omega_2)\, c_{q_1} c_{q_2} \int dt e^{i\omega_1 t} \theta(-t) \langle d_{j_1\alpha_1}^0(t)\, d_{j_2\alpha_2}^0(0)\rangle, \tag{21}$$

$$u_{q_1q_2}^{(+-)(21)} = -2\pi\delta(\omega_1 - \omega_2)\, c_{q_1} c_{q_2} \int dt e^{i\omega_1 t} \langle d_{j_1\alpha_1}^0(t)\, d_{j_2\alpha_2}^0(0)\rangle. \tag{22}$$

Сравнение (10) с (2.4.6) (при отождествлении операторов f_j и $d_{j\alpha}$) показывает, что $\varphi^{(22)} = \varphi^{(-)}$. Аналогично, $\varphi^{(20)} = \varphi^{(+)}$ и $\varphi^{(21)} = \varphi$, где φ — «полная» функция корреляции. Отметим, что здесь, в отличие от § 2.4, обе величины d и E, образующие энергию возмущения,— операторные. Преобразование (7) до усреднения и при $\varepsilon = 0$ является унитарным, полностью учитывающим квантовую динамику взаимодействующих систем. Этот формализм можно применить и к одиночному атому, и он, в принципе, охватывает явление естественного уширения атомного спектра и его лембовский сдвиг при вакуумном падающем поле. Мы будем считать, что эти малые поправки учтены заранее в спектре нулевого приближения вещества с помощью замены $\varepsilon \to \Delta\omega$ [1]). Заметим, что (7) при $M > 1$ описывает и многочастичные эффекты — элементарные процессы с участием нескольких молекул.

Высшие поправки. Существенно, что МР $U^{(n)}$ содержит, кроме основного слагаемого n-го порядка по заряду электрона, еще поправки высших порядков, происхождение которых ясно из процедуры нормального упорядочения (12). Примером поправки четвертого порядка к $U^{(2)}$ является первое слагаемое в (5.4.9). Такие поправки в квантовой теории поля интерпретируются как результат рождения и уничтожения виртуальных фотонов. Чтобы точно рассчитать эффект порядка n, необходимо просуммировать бесконечное число поправок порядка $n + 2k$. Для этой процедуры разработан ряд приемов, использующих диаграммы Фейнмана, теорему Вика и т. д. [152]. Фактически при решении кинетического уравнения (§ 4.5) также суммируются высшие поправки.

С помощью (7) при вакууме на входе можно найти также второй момент или спектр ТИ образца. Во втором порядке спектр поля будет обычным однофотонным повторением спектра веще-

---

[1]) Можно надеяться, что с помощью такой замены осуществляется переход от рассматриваемой здесь системы «молекулы + поле» (с медленно остывающими молекулами) к системе «термостат + молекулы + поле» (с постоянной температурой молекул) в случае, когда можно пренебречь эффектами насыщения и сдвига уровней под действием падающего поля.

ства (22), который можно было бы получить и с помощью ФДТ (§ 4.3). Однако при учете поправки четвертого порядка спектр из дискретного становится непрерывным, что уже противоречит ФДТ (см. конец § 5.1). Формально это происходит из-за умножения функции корреляции вещества на θ-функцию, т. е. из-за гильберт-трансформации спектра. Физически же такое излучение в окнах прозрачности можно объяснить реакцией излучения на движение зарядов (как и сдвиг Лемба). Аналогично, как будет ясно из следующего параграфа, двухчастотный третий момент ТИ пропорционален не равновесному двухчастотному спектру вещества, определяемому квадратичной ФДТ и содержащему лишь молекулярные частоты, а его гильберт-трансформанте.

§ 5.3. Третий момент теплового поля

В настоящем разделе мы в качестве примера использования общей формулы (5.2.7) найдем третий момент спонтанного поля $E_{\text{сп}}$ в первом неисчезающем (третьем) порядке теории возмущений. Существование стационарного момента нечетного порядка в ТИ кажется на первый взгляд неожиданным, и мы приведем простые классические и квантовомеханические соображения, поясняющие смысл этого результата. Далее, после численной оценки будет рассмотрена возможность обнаружения эффекта с помощью обратного процесса, вероятность которого содержит слагаемое, пропорциональное $\langle E^3\rangle$. При этом будет использована модификация формулы (5.2.7), описывающая отклик молекулярных наблюдаемых на падающее поле.

Связь с двухвременной функцией корреляции молекул. Найдем сперва момент выходного поля $\langle a_1^+ a_2^+ a_3\rangle = \langle a_1 a_2 a_3^+\rangle^* \equiv \mathscr{M}_{123}$ в случае вакуумного падающего поля в третьем порядке теории возмущения. Моды k_1, k_2, k_3 имеют разные частоты, и поэтому операторы можно переставлять. Чтобы воспользоваться общей формулой (5.2.7), надо найти вакуумные моменты шестого порядка

$$\langle 0\,|\,a_{q_1}\ldots a_{q_p} a_1^+ a_2^+ a_3 a_{q_{p+1}}\ldots a_{q_3}\,|\,0\rangle. \tag{1}$$

Так как $a^{(-)}\,|\,0\rangle = \langle 0\,|\,a^{(+)} = 0$, то (1) будет не равно нулю лишь при $p = 2$:

$$\langle 0\,|\,a_{q_1} a_{q_2} a_1^+ a_2^+ a_3 a_{q_3}\,|\,0\rangle = \delta_{\bar{q}_1 k_1}\delta_{\bar{q}_2 k_2}\delta_{q_3 \bar{k}_3} + (k_1, k_2), \tag{2}$$

где (k_1, k_2) означает слагаемое с переставленными индексами k_1 и k_2; определение δ-символов дано в (5.2.13). Подставив (2) в

(5.2.7), найдем

$$\mathcal{M}_{123} = \sum_{q_1q_2q_3} u^{(32)}_{q_1q_2q_3}(\bar{\omega}_1\bar{\omega}_2\omega_3) + (k_1, k_2) =$$

$$= \left(\frac{v}{\hbar}\right)^{3/2} \sqrt{\omega_1\omega_2\omega_3} \sum_{j_1j_2j_3}^{M} \exp\left[i\left(\boldsymbol{k}_1\cdot\boldsymbol{r}_{j_1} + \boldsymbol{k}_2\cdot\boldsymbol{r}_{j_2} - \boldsymbol{k}_3\cdot\boldsymbol{r}_{j_3}\right)\right] \times$$

$$\times \hat{\Phi}\left\{\theta(t_{21})\langle \boldsymbol{d}^0_{j_1}(t_1)\,\boldsymbol{d}^0_{j_2}(t_2)\,\boldsymbol{d}^0_{j_3}(t_3)\rangle\right\} : \boldsymbol{e}_1\boldsymbol{e}_2\boldsymbol{e}_3 + (k_1, k_2). \qquad (3)$$

Пусть в начальном состоянии молекулы независимы, тогда в тройной сумме по молекулам останутся лишь диагональные члены:

$$\mathcal{M}_{123} = \left(\frac{v}{\hbar}\right)^{3/2} \sqrt{\omega_1\omega_2\omega_3} \sum_{j=1}^{M} \exp\left[i\left(\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3\right)\cdot\boldsymbol{r}_j\right] \times$$

$$\times \varphi^{(32)}_j(\bar{\omega}_1\bar{\omega}_2\omega_3) : \boldsymbol{e}_1\boldsymbol{e}_2\boldsymbol{e}_3 + (k_1, k_2), \qquad (4)$$

$$\varphi^{(32)}_j(\bar{\omega}_1\bar{\omega}_2\omega_3) \equiv \hat{\Phi}\left\{\theta(t_{21})\langle \boldsymbol{d}^0_j(t_1)\,\boldsymbol{d}^0_j(t_2)\,\boldsymbol{d}^0_j(t_3)\rangle\right\}. \qquad (5)$$

Мы выразили третий момент теплового поля через сумму двухчастотных «усеченных» (запаздывающих) спектральных функций молекул, являющихся фурье-образами двухвременных функций корреляций.

Существенно, что вклад каждой молекулы содержит множитель синхронизма $\exp i(\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3)\cdot\boldsymbol{r}_j$. В нашей модели $k_i = \omega_i/c$, и этот множитель равен 1 при параллельных $\boldsymbol{k}_i$. Однако, по-видимому, правильней учесть в законе дисперсии вклад однофотонных переходов. При этом третий момент (4) будет иметь резкий максимум при выполнении условия синхронизма: $|\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3|\, l \lesssim 1$, где l — линейный размер образца. Если мы будем измерять момент в одной точке $\boldsymbol{r}$ дальней зоны, то волновые векторы в (4) будут параллельны друг другу и направлению $\hat{\boldsymbol{r}}$, так что должен выполняться «одномерный» синхронизм. Легко убедиться, что при синхронизме будет подавляться эффект Допплера, за счет которого каждая частота получает поправку $\omega' - \omega = -\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{v}_j$ (v_j — скорость молекулы j):

$$(\omega_1' + \omega_2' - \omega_3') = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - (\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3)\cdot\boldsymbol{v}_j.$$

Третий момент теплового поля можно с помощью квадратичной ФДТ (§ 2.4) выразить через локальную квадратичную восприимчивость среды. Для этого в (5) представим θ-функцию в виде

$$\theta(t) = -\frac{1}{2\pi}\int d\omega\, \frac{e^{-i\omega t}}{i\omega - \varepsilon}, \qquad (6)$$

так что

$$\varphi^{(32)}_j(\omega_1\omega_2\omega_3) = \int d\omega\, \frac{\varphi(\omega_1 - \omega,\ \omega_2 + \omega,\ \omega_3)}{2\pi(i\omega + \varepsilon)}, \qquad (7)$$

где двухчастотная спектральная функция равна фурье-трансформанте полной (не усеченной) двухвременной корреляционной функции:

$$\varphi_j(\omega_1\omega_2\omega_3) \equiv \hat{\Phi}\{\langle \boldsymbol{d}(t_1)\,\boldsymbol{d}(t_2)\,\boldsymbol{d}(t_3)\rangle_j\}. \tag{8}$$

Это определение совпадает с (2.4.46) при $f \to d$ и $F \to E$. При этом $\chi_j(\omega_1\omega_2\omega_3)$ (см. (2.4.46)) является квадратичной восприимчивостью (гиперполяризуемостью) молекулы по отношению к классическому полю, так что третий момент (4) можно выразить через χ_j и температуру образца с помощью (2.4.49). Далее, считая молекулы ориентированными, можно ввести макроскопическую восприимчивость $\chi = M\chi_j/V$.

Интерпретация эффекта. Чтобы оценить величину третьего момента и дать толкование его происхождению, распишем функцию корреляции молекулы в энергетическом представлении (индекс j опускаем):

$$\varphi^{(32)}(\bar{\omega}_1\bar{\omega}_2\omega_3) = (2\pi)^{-3}\sum_{abc}\rho_a\boldsymbol{d}_{ab}\boldsymbol{d}_{bc}\boldsymbol{d}_{ca}\int_{-\infty}^{\infty}dt_2\int_{-\infty}^{t_2}dt_1\int_{-\infty}^{\infty}dt_3\,\times$$
$$\times\exp[i(\omega_{ab}-\omega_1)t_1 + i(\omega_{bc}-\omega_2)t_2 + i(\omega_{ca}+\omega_3)t_3 + \varepsilon t_1] =$$
$$= \frac{\delta(\omega_1+\omega_2-\omega_3)}{2\pi}\sum_{abc}\delta(\omega_3-\omega_{ac})\frac{\rho_a\boldsymbol{d}_{ab}\boldsymbol{d}_{bc}\boldsymbol{d}_{ca}}{i(\omega_{ab}-\omega_1)+\varepsilon}, \tag{9}$$

где ρ_a — относительная населенность уровня a и $\boldsymbol{d}_{ab}$ — матричный элемент дипольного момента. Таким образом, бо́льшая из трех частот должна совпадать с одной из молекулярных частот ω_{ac}, и эффект усиливается при приближении частот ω_1 и ω_2 к частотам ω_{ab} и ω_{bc} соответственно (см. рис. 5, *е*). Поле ω_2 излучается позже ω_1, чему соответствует функция $\theta(t_2 - t_1)$ в (9).

К сожалению, все переходы между тройкой уровней разрешены в электродипольном приближении, лишь если симметрия молекулы не имеет центра инверсии. Кроме того, чтобы вклады отдельных молекул складывались, необходимо, чтобы все молекулы были одинаковыми и были одинаково ориентированы, т. е. весь образец должен быть нецентросимметричным (иметь выделенную полярную ось). Этим свойством обладают пьезокристаллы. В аморфном веществе, жидкости, газе можно ориентировать молекулы сильным постоянным электрическим полем. Итак, нагретый пьезокристалл или, вообще, поляризованное вещество создает в окружающем пространстве неравный нулю стационарный куб поля $\langle E^3\rangle$.

Этот эффект легко объяснить, предположив, что молекулы излучают «тригармонические» волновые пакеты, в которых частоты гармоник связаны условием $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ (в частности, может быть $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3/2$), а фазовые сдвиги фиксированы. Куб электрического поля в такой волне имеет стационарную

составляющую:

$$\langle E^3(t)\rangle \sim \langle \cos(\omega_1 t + \varphi_1)\cos(\omega_2 t + \varphi_2)\cos(\omega_3 t + \varphi_3)\rangle = \\ = \frac{1}{4}\cos(\varphi_1 + \varphi_2 - \varphi_3). \qquad (10)$$

Значение косинуса для данной тройки частот является параметром молекулы. Заметим, что интенсивные лучи света со стационарным кубом поля легко генерировать методами нелинейной оптики.

С квантовой точки зрения третий момент поля — результат интерференции одно- и двухфотонного спонтанных переходов из возбужденного состояния в основное (см. рис. 5,*е*). Хотя этот эффект труден для наблюдения, он представляет эвристический интерес в качестве примера оптического явления, который, как мы сейчас покажем, нельзя трактовать в терминах излучения определенного числа фотонов.

Перейдем к шредингеровской картине, в которой операторы постоянны, а эволюционирует вектор состояния. Пусть начальное состояние системы «молекула + поле» будет $|t_0\rangle = |000a\rangle$. В приближении вращающихся волн энергия взаимодействия трех мод поля с трехуровневой молекулой равна (ср. (4.4.21))

$$\mathscr{V} = c_1\sigma^{ba}a_1^+ + c_2\sigma^{cb}a_2^+ + c_3\sigma^{ca}a_3^+ + \text{э. с.} \qquad (11)$$

Подставив (11) в (4.4.20), найдем, что со временем вектор состояния системы приобретает под действием возмущения примесь одно- и двухфотонного состояний поля и основного состояния молекулы $|c\rangle$:

$$|t\rangle = |000a\rangle + \alpha\,|001c\rangle + \beta\,|110\,c\rangle, \qquad (12)$$

где α и β — коэффициенты, зависящие от $t - t_0$. Отсюда третий момент поля равен

$$\langle t\,|\,a_1^+a_2^+a_3|t\rangle = \alpha\beta^*. \qquad (13)$$

С помощью (12) можно найти также средние числа фотонов и пар фотонов:

$$\langle\hat{N}_3\rangle = |\alpha|^2, \quad \langle\hat{N}_1\hat{N}_2\rangle = |\beta|^2, \quad \langle\hat{N}_1\hat{N}_3\rangle = \langle\hat{N}_2\hat{N}_3\rangle = 0. \qquad (14)$$

Таким образом, фотоны в модах k_1, k_2 излучаются вместе, а пары фотонов в модах k_1, k_3 и k_2, k_3 в рамках приближения (12) не появляются («антикорреляция»), как это и должно быть в случае альтернативных событий $a \to c$ и $a \to b \to c$ (см. рис. 5,*е*). Трехфотонное состояние $|111\rangle$ также не возникает, так как $\sigma^{cb}\sigma^{ba}\sigma^{ca} \sim \langle a\,|\,c\rangle = 0$.

В состоянии

$$|\psi\rangle \equiv |t\rangle - |t_0\rangle = \alpha\,|001\rangle + \beta\,|110\rangle \qquad (15)$$

(этот вектор ненормирован) энергия поля при условии $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ имеет определенное значение, равное $\hbar\omega_3$:

$$\mathscr{H}|\psi\rangle = \sum_{i=1}^{3} \hbar\omega_i \hat{N}_i |\psi\rangle = \hbar\omega_3 |\psi\rangle; \tag{16}$$

в то же время это состояние не является собственным для оператора общего числа фотонов, так как

$$\hat{N}|\psi\rangle \equiv \sum_i \hat{N}_i |\psi\rangle = \alpha|001\rangle + 2\beta|110\rangle \neq N|\psi\rangle. \tag{17}$$

Можно рассматривать три связанные моды как одну общую степень свободы, в которой энергия принимает дискретное значения, кратные $\hbar\omega_3$. При этом переход молекулы в основное состояние сопровождается излучением «трифотона».

Оценка куба поля. Найдем с помощью (4.6.5) средний куб электрического поля в дальней зоне образца:

$$\langle E_x^3(r)\rangle = \frac{1}{r^3c^6}\left(\frac{\hbar}{v}\right)^{3/2}\int d\omega_1\, d\omega_2\, d\omega_3\, (\omega_1\omega_2\omega_3)^{3/2} \times$$
$$\times\, 2\,\mathrm{Re}\,\{\xi_1^*\xi_2^*\xi_3 \mathscr{M}_{123} \exp[i(\omega_1+\omega_2-\omega_3)(t-r/c)]\}, \tag{18}$$

где $\boldsymbol{k}_i \| \boldsymbol{r}$, $\boldsymbol{e}_i \| \boldsymbol{x} \perp \boldsymbol{r}$ и $\xi(\omega_i)$ — амплитудные коэффициенты пропускания фильтра и других элементов оптического тракта [1]). Подставив сюда (4), (9) при условии синхронизма и считая все молекулы одинаковыми и моменты переходов — действительными, получим

$$\langle E_x^3\rangle = \frac{M}{r^3c^6}\int d\omega_1\, d\omega_2\, d\omega_3\, (\omega_1\omega_2\omega_3)^2 \times$$
$$\times\, 2\,\mathrm{Re}\,\{\xi_1^*\xi_2^*\xi_3[\varphi_{xxx}^{(32)}(\bar{\omega}_1\bar{\omega}_2\omega_3) + \varphi_{xxx}^{(32)}(\bar{\omega}_2\bar{\omega}_1\omega_3)]\} =$$
$$= \frac{M}{2\pi r^3c^6}\sum_{abc}\rho_a d_{ab} d_{bc} d_{ca}\int_0^\infty d\omega\omega^2(\omega_{ac}-\omega)^2\omega_{ac}^2 \times$$
$$\times\, 2\,\mathrm{Re}\left\{\xi^*(\omega)\xi^*(\omega_{ac}-\omega)\xi(\omega_{ac})\left[\frac{1}{i(\omega_{ab}-\omega)+\varepsilon} + \frac{1}{i(\omega_{cb}+\omega)+\varepsilon}\right]\right\}. \tag{19}$$

Если фильтрации нет, то $2\mathrm{Re}\{\ldots\} \approx 2\pi\delta(\omega-\omega_{ab}) + 2\pi\delta(\omega-\omega_{bc})$ и в результате

$$\langle E^3\rangle = \frac{2M}{r^3}\sum_{abc}\rho_a d_{ab} d_{bc} d_{ca} k_{ab}^2 k_{bc}^2 k_{ca}^2. \tag{20}$$

---

[1]) Отметим, что $\langle E_x^3\rangle$ является действительной (положительной или отрицательной) величиной и что, меняя параметры фильтра, можно измерить обе составляющие комплексной величины $\mathscr{M}_{123}$ в каждой точке плоскости (ω_1, ω_2).

Если, далее, существенна лишь одна тройка уровней и можно пренебречь различием частот и дипольных моментов переходов, то

$$\langle E^3\rangle \sim M_a\left(\frac{k^2 d_{ab}}{r}\right)^3, \tag{21}$$

где M_a — число возбужденных молекул. Пусть $\lambda = 0{,}3$ мкм, $M_a = 10^{12}$, $r = 10$ см и $d_{ab} = 10^{-18}$ СГС тогда $\langle E^3\rangle^{1/3} = 10^{-2}$ В/см.

Согласно (4.6.24) за счет однофотонного излучения $\langle E^2\rangle \sim \sim M_a\,(k^2 d/r)^2$, так что

$$\frac{\langle E^3\rangle^{1/3}}{\langle E^2\rangle^{1/2}} \sim M_a^{-1/6} \sim 10^{-2}. \tag{22}$$

Проблема детектирования. Как можно измерить куб электрического поля на оптических частотах? Очевидный способ создания такого «кубометра» — использование процесса, обратного излучению третьего момента. Как мы сейчас покажем, интерференция вынужденных однофотонных ($c \to a$) и двухфотонных ($c \to b \to a$) переходов вверх в нецентросимметричной трехуровневой системе приводит к появлению в скорости перехода слагаемого, пропорционального $\langle E^3\rangle$. Иначе говоря, если детектор отличается от излучателя только более низкой температурой, то скорость его нагрева будет зависеть от сдвига фаз, вносимого разделяющим излучатель и детектор фильтром. Вероятность перехода можно рассчитать непосредственно из (2.3.32), однако, мы рассмотрим более универсальный подход.

Использованный в § 5.2 формализм легко модифицировать для определения отклика вещества на падающее поле. Для этого в (2.3.20) в качестве наблюдаемой величины надо теперь подставить оператор вещества $f(t)$ [1]). Аналогично (5.2.7) — (5.2.11) легко найти, что

$$\begin{aligned}\langle f(t)\rangle^{(n)} &= \sum_{p=0}^{n} \langle f(t)\rangle^{(np)} = \\ &= \sum_{pq_1\ldots q_n} (-1)^p c_{q_1}\ldots c_{q_n}\,\langle a_{q_1}\ldots a_{q_n}\rangle \times \\ &\times \int dt_1\ldots dt_n \theta_{21}\ldots\theta_{p,\,p-1}\theta_{p+1,\,p+2}\ldots\theta_{n-1,\,n} \times \\ &\times \exp i\,(\omega_{q_1}t_1 + \ldots + \omega_{q_n}t_n)\langle d_{q_1}^{(1)}\ldots d_{q_p}^{(p)} f^0(t)\, d_{q_{p+1}}^{(p+1)}\ldots d_{q_n}^{(n)}\rangle.\end{aligned} \tag{23}$$

Если $f = f^+$, то $\langle f\rangle^{(np)} = \langle f\rangle^{(n,\,n-p)*}$.

Применим эту формулу для описания принципа действия «кубометра» в случае одной молекулы (при этом $q = \{\alpha, \boldsymbol{k}, \nu_k, s_{k\nu}\}$). Если положить $f = d_x$, то (23) будет определять гиперполяризуе-

[1]) В случае многовременной наблюдаемой $f_1(t_1)f_2(t_2)\ldots$ надо до усреднения найти по (2.3.20) каждый сомножитель в соответствующем порядке теории возмущения (ср. примечание к (5.2.1)).

мости молекулы. Чтобы найти вероятность P_{ac} перехода на уровень a, надо взять $f = \widehat{P}_a = |a\rangle\langle a|$, где $\widehat{P}_a$ — оператор населенности уровня (см. (2.2.26)). Пусть начальное состояние молекулы — основное $|c\rangle$ и $a \neq c$, тогда из (23) найдем в первом порядке

$$P_{ac}^{(10)} = P_{ac}^{(11)*} = \sum c_q \langle a_q\rangle \int dt e^{i\omega_q t} \langle c|a\rangle\langle a|d_q^0(t)|c\rangle = 0. \quad (24)$$

Множитель δ_{ca} появится и во всех порядках n в крайних членах ряда по p, поэтому $P_{ac}^{(n0)} = P_{ac}^{(nn)} = 0$. Во втором порядке

$$P_{ac}^{(2)} = P_{ac}^{(21)} = \frac{v}{\hbar} \sum_{k_1 k_2} \omega_1 e^{i(\boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_1)\cdot \boldsymbol{r}} \langle a_1^+ a_2\rangle \times$$
$$\times (\boldsymbol{d}_{ca}\cdot \boldsymbol{e}_1)(\boldsymbol{d}_{ac}\cdot \boldsymbol{e}_2)\,\delta(\omega_1 - \omega_2)\,\delta(\omega_1 - \omega_{ac}). \quad (25)$$

Если в падающем свете возбуждена одна мода k_0 со средним числом фотонов N_0, то $\langle a_1^+ a_2\rangle = \delta_{12}\delta_{10}N_0$; при этом $\omega_1 = \omega_2$, и надо заменить в (25) $\delta(\omega_1 - \omega_2)$ обратно на $(t - t_0)/2\pi$. В результате населенность уровня растет пропорционально времени, и можно ввести вероятность индуцированного перехода

$$W_{\text{инд}}^{(2)} = \frac{\omega_0 |\boldsymbol{d}_{ac}\cdot \boldsymbol{e}_0|^2 v}{2\pi\hbar} N_0 \delta(\omega_0 - \omega_{ca}). \quad (26)$$

Здесь $vN_0/8\pi^3 = N_0/L^3$ — объемная плотность падающих фотонов. В случае обратного перехода вниз в (25) должно стоять $\langle a_1 a_2^+\rangle = \langle a_1^+ a_2\rangle + \delta_{12}$, так что в (26) надо заменить N_0 на $N_0 + 1$. При $N_0 = 1$ (26) есть вероятность спонтанного перехода в одну моду. Общая вероятность будет

$$W_{\text{сп}}^{(2)} = \frac{1}{vN_0}\int d\boldsymbol{k} W_{\text{инд}}^{(2)} = \frac{k_{ca}^3}{2\pi\hbar}\int d\Omega\, |d_{ca}\cdot e_k|^2, \quad (27)$$

что совпадает с (4.6.28).

Перейдем к менее тривиальному третьему порядку. При $n = 3$ из (23) следует

$$P_{ac}^{(3)} = 2\operatorname{Re} P_{ac}^{(32)} = 8\pi^2 \operatorname{Re} \sum_{123} c_1 c_2 c_3 \langle a_1 a_2 a_3\rangle \times$$
$$\times \sum_b \frac{\boldsymbol{d}_{cb}\cdot \boldsymbol{e}_1 \boldsymbol{d}_{ba}\cdot \boldsymbol{e}_2 \boldsymbol{d}_{ac}\cdot \boldsymbol{e}_3}{i(\omega_1 - \omega_{bc}) + \varepsilon}\,\delta(s_3\omega_3 + \omega_{ac})\,\delta(s_1\omega_1 + s_2\omega_2 + s_3\omega_3). \quad (28)$$

Отсюда $s_3 = -1$. Если падающее на молекулу излучение тепловое, то в нем согласно (3) отличны от нуля моменты с $(s_1 s_2 s_3) = (1,1,-1)$ и $(-1,-1,1)$, причем они уже содержат δ-функцию, и поэтому (28) будет пропорционально времени.

Итак, скорость вынужденного перехода $c \to a$, кроме обычной однофотонной скорости (26), содержит интерференционное

слагаемое

$$\bar{W}^{(3)} \sim \mathrm{Re}\,\langle a_1^+ a_2^+ a_3\rangle\, e^{i(\mathbf{k}_3-\mathbf{k}_2-\mathbf{k}_1)\cdot\mathbf{r}}, \tag{29}$$

где $\mathbf{r}$ — координата центра молекулы. Оно может быть отрицательным и даже может полностью подавить переходы.

§ 5.4. Двухфотонный закон Кирхгофа

В четвертом порядке теории возмущения (5.2.7) будет определять вторые и четвертые моменты поля с учетом двухфотонных эффектов — нелинейного поглощения падающего поля и спонтанного излучения пар фотонов. С другой стороны, формула (5.3.23) позволяет выразить вероятность двухфотонных переходов $W^{(4)}$ через собственные частоты и моменты переходов молекул. Мы здесь выберем третий метод описания — феноменологический, который позволит нам обобщить закон Кирхгофа на слабо нелинейные среды в двухуровневом приближении. Метод основан на подстановке в двухуровневое кинетическое уравнение (§ 4.5) эффективного гамильтониана взаимодействия, учитывающего только интересующий нас элементарный двухфотонный процесс. Из полученного кинетического уравнения для произвольной наблюдаемой поля f мы найдем в первом порядке приращение $\Delta\langle f\rangle$, получаемое в результате взаимодействия с веществом. Выбирая затем в качестве f первые, вторые и четвертые моменты, мы выразим приращения этих моментов через коэффициенты кинетического уравнения. В результате мы получим приближенный ОЗК, выражающий вероятность двухфотонного излучения через кубическую МР. Из полученных соотношений следует заранее очевидный вывод об одновременности излучения фотонов в парах (в отличие от ТИ линейного приближения). Далее, двухфотонный ОЗК будет использован для оценки скорости совпадений по коэффициенту двухфотонного поглощения. Наконец, мы найдем связь между третьим моментом ТИ и квадратичной МР.

Эффективное кинетическое уравнение. Ограничимся сперва случаем центросимметричных молекул, в которых действует альтернативный запрет — между данной парой уровней переход может быть либо одно-, либо двухфотонным. В последнем случае для квазирезонансных мод ($\omega_1 + \omega_2 \approx \omega_0$) взаимодействие с молекулами можно описывать с помощью феноменологического эффективного гамильтониана (4.5.11), в котором [1])

$$f_j = \sum_{k_1 k_2} c_{j12} a_1 a_2. \tag{1}$$

[1]) Мы для простоты не учитываем слагаемые вида a^+a, описывающие рамановские двухфотонные переходы.

Здесь

$$c_{j12} \equiv -(2\pi)^{-2}\hbar v\sqrt{\omega_1\omega_2}\,\varkappa_{j12}e^{i(\boldsymbol{k}_1+\boldsymbol{k}_2)\cdot\boldsymbol{r}_j},$$

$$\varkappa_{j12} \equiv \frac{1}{2\hbar}\sum_b \frac{\boldsymbol{e}_1\cdot\boldsymbol{d}_{ab}^{(j)}\boldsymbol{d}_{bc}^{(j)}\cdot\boldsymbol{e}_2}{\omega_{ab}-\omega_1} + (1,2).$$

Подставим (1) в кинетическое уравнение (4.5.9) для поля, взаимодействующего с M двухуровневыми молекулами:

$$\frac{d\langle f\rangle}{dt} = \left\langle\frac{df}{dt}\right\rangle^0 + \sum_{k_1k_2k_3k_4}\{w_{1234}\langle\mathcal{N}_0[a_4a_3,[f,a_2^+a_1^+]] - [f,a_1^+a_2^+]a_3a_4\rangle + w_{1234}^*\langle\mathcal{N}_0[a_4^+a_3^+,[f,a_2a_1]] - a_4^+a_3^+[a_2a_1,f]\rangle\}, \tag{2}$$

где

$$w_{1234} \equiv (2\pi)^{-4}v^2\sqrt{\omega_1\omega_2\omega_3\omega_4}\times \sum_{j=1}^{M}\frac{\Delta\rho_j\varkappa_{j12}^*\varkappa_{j34}}{i(\omega_0-\omega_3-\omega_4)+\varepsilon}\exp[i(\boldsymbol{k}_4+\boldsymbol{k}_3-\boldsymbol{k}_2-\boldsymbol{k}_1)\cdot\boldsymbol{r}_j], \tag{3}$$

$$w_{1234} = w_{2134} = w_{1243}, \tag{4}$$

$\Delta\rho_j$ — относительные разности населенностей, $\omega_0 = \omega_{ac}$ — частота перехода, одинаковая для всех молекул (это условие не обязательно — см. § 4.5), и $\mathcal{N}_0 = [\exp(\hbar\omega_0/\varkappa T) - 1]^{-1}$.

Перейдем к представлению Шредингера, тогда первое слагаемое в (2) сократится, и произойдет замена

$$w_{1234} \to w_{1234}(t) \equiv w_{1234}\exp i(\omega_1+\omega_2-\omega_3-\omega_4). \tag{5}$$

В случае свободного пространства физический смысл имеют решения уравнения (2) при $t - t_0 = \infty$, причем $f(\infty) = f'$ будет относиться к выходному полю, а $f(-\infty) = f$ — к входному (падающему на образец — см. § 4.4).

Двухфотонное поглощение зависит от интенсивности падающего поля S квадратично. В случае не слишком больших S и размеров образца можно при решении (2) ограничиться первым порядком по коэффициентам w (это будет четвертый порядок по дипольным моментам), т. е. можно считать моменты в правой части (2) не зависящими от времени моментами падающего поля. Интегрирование коэффициентов $w(t)$ приведет согласно (5) к появлению δ-функций:

$$\int dt\,w_{1234}(t) = 2\pi\delta(\omega_1+\omega_2-\omega_3-\omega_4)\,w_{1234} \equiv u_{1234}. \tag{6}$$

При этом из определения (3) следует

$$u_{1234} + u^*_{3412} = \\ = \delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)\,\delta(\omega_0 - \omega_3 - \omega_4)\frac{v^2}{4\pi^2}\sqrt{\omega_1\omega_2\omega_3\omega_4} \times \\ \times \sum_j \Delta\rho_j \varkappa^*_{j12}\varkappa_{j34} \exp i(\boldsymbol{k}_4 + \boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_1)\cdot \boldsymbol{r}_j. \tag{7}$$

Итак, произвольная наблюдаемая поля получает в результате двухфотонных переходов следующее приращение:

$$\Delta\langle f\rangle \equiv \langle f\rangle' - \langle f\rangle = \\ = \sum\{u_{1234}\langle \mathcal{N}_0[a_4a_3, [f, a_2^+a_1^+]] - [f, a_1^+a_2^+]\,a_3a_4\rangle + \\ + u^*_{1234}\langle \mathcal{N}_0[a_4^+a_3^+[f, a_2a_1]] - a_4^+a_3^+[a_2a_1, f]\rangle\}. \tag{8}$$

Первые моменты. Полагая $f = a_{k_1} \equiv a_1$, найдем с помощью правил коммутации приращение первых моментов поля:

$$\Delta\langle a_1\rangle = \mathcal{N}_0\sum_2 u_{12}\langle a_2\rangle - 2\sum_{234} u_{1234}\langle a_2^+a_3a_4\rangle, \tag{9}$$

$$u_{12} \equiv 4\sum_3 u_{1332} \sim \delta(\omega_1 - \omega_2). \tag{10}$$

Первое слагаемое в (9) описывает своеобразное упругое рассеяние, которое пропорционально населенности верхнего уровня. Произведение $\mathcal{N}_0 u_{12}$ является поправкой четвертого порядка к линейной МР.

В приближении сплошной среды при макроскопических размерах образца за счет этой поправки происходит усиление амплитуды плоской волны. Заменяя в (3) $\sum_j \to (M/V)\int d\boldsymbol{r}$ и устремляя V к бесконечности (бездифракционное приближение), находим, что

$$u_{12} \sim \delta(\boldsymbol{k}_1 - \boldsymbol{k}_2), \quad u_{1234} \sim \delta(\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_4). \tag{11}$$

Второе слагаемое в (9) пропорционально разности населенностей. Коэффициенты u_{1234} (с обратными знаками) являются компонентами кубической (четырехиндексной) МР $\boldsymbol{U}^{(3)}$. В случае когерентного падающего поля с независимыми модами из (9) при пренебрежении линейным слагаемым следует

$$\Delta\langle a_1\rangle = -2\sum_{234} u_{1231}\langle a_2\rangle^*\langle a_3\rangle\langle a_4\rangle. \tag{12}$$

Эта формула описывает хорошо известный в нелинейной оптике эффект трехчастотного преобразования в условиях двухфотонного резонанса: $\omega_4 + \omega_3 - \omega_2 \to \omega_1$. Таким образом, кубическую МР в принципе можно измерить с помощью многочастотных интерференционных экспериментов.

Вторые моменты. Для приращения вторых моментов из (8) следует такое выражение:

$$\Delta N_{12} = \\ = \mathcal{N}_0 \Big[u_{12}^* + u_{21} + \sum_3 (u_{23} N_{13} + u_{13}^* N_{32}) + 4 \sum_{34} (u_{2341} + u_{1432}^*) N_{34} \Big] - \\ - 2 \sum_{345} (u_{2345} \langle a_1^+ a_3^+ a_4 a_5 \rangle + u_{1345}^* \langle a_5^+ a_4^+ a_3 a_2 \rangle). \tag{13}$$

При вакуумном падающем поле нормально-упорядоченные моменты равны нулю, и остается лишь спонтанное (т. е. тепловое) двухфотонное излучение:

$$N_{12}^{\text{сп}} = 4 \mathcal{N}_0 \sum_3 (u_{1332}^* + u_{2331}). \tag{14}$$

Это выражение можно рассматривать как обобщение закона Кирхгофа на случай слабого двухфотонного поглощения.

Пусть теперь падающее поле имеет гауссову статистику с независимыми модами:

$$N_{12} = N_1 \delta_{12}, \\ \langle a_1^+ a_2^+ a_3 a_4 \rangle = N_1 N_2 (\delta_{13}\delta_{24} + \delta_{14}\delta_{23}), \tag{15}$$

тогда (13) принимает более простой вид:

$$\Delta N_{12} = 4 \sum_3 \{ u_{2331} [\mathcal{N}_0 (N_1 + N_3 + 1) - N_1 N_3] + \\ + u_{1332}^* [\mathcal{N}_0 (N_2 + N_3 + 1) - N_2 N_3] \}. \tag{16}$$

Заметим, что здесь согласно (6) $\omega_1 = \omega_2$, и если падающее излучение изотропно, то $N_1 = N_2$ и в силу (7) $\omega_1 + \omega_3 = \omega_0$.

Приравняв (16) нулю, мы найдем необходимое условие инвариантности вторых моментов поля при его преобразовании нелинейным веществом. Для этого надо, чтобы в парах мод (k_1, k_3), связанных условием $\omega_1 + \omega_3 = \omega_0$, числа фотонов удовлетворяли равенству

$$\frac{N_1 N_3}{N_1 + N_3 + 1} = \text{const} = \mathcal{N}_0 \tag{17}$$

или

$$(N_1^{-1} + 1)(N_3^{-1} + 1) = \mathcal{N}_0^{-1} + 1 = \exp \frac{\hbar(\omega_1 + \omega_3)}{\varkappa T}. \tag{18}$$

Это функциональное уравнение для функции распределения фотонов N_k не имеет однозначного решения. Например, оно удовлетворяется как в случае «белого» излучения: $N_k = \text{const}$, так и в случае «черного» излучения с температурой, равной температуре вещества: $N_k = \mathcal{N}(\omega_k)$.

Если интересоваться только диагональными моментами, то, приравняв в (16) индексы 1 и 2, найдем

$$\Delta N_1 = \sum_2 \mathcal{A}_{12} [\mathcal{N}_0 (N_1 + N_2 + 1) - N_1 N_2], \tag{19}$$

где $\mathcal{A}_{12} = 8\mathrm{Re}\, u_{1221}$. Эту формулу можно получить элементарно методом Эйнштейна, рассматривая две моды и добавляя к вероятности переходов вниз по одному лишнему фотону для учета флуктуаций вакуума:

$$\frac{dN_1}{dt} = \frac{dN_2}{dt} \sim \rho_a (N_1 + 1)(N_2 + 1) - \rho_c N_1 N_2 = \\ = (\rho_c - \rho_a) [\mathcal{N}_0 (N_1 + N_2 + 1) - N_1 N_2] \tag{20}$$

(здесь ρ_a и $\rho_c = \rho_a \exp \hbar\omega_0/\varkappa T$ — населенности верхнего и нижнего уровней соответственно).

Формула (19) описывает четыре типа двухфотонных переходов (см. рис. 5, *г*):

1) спонтанное излучение:

$$N_1^{\text{сп}} = \mathcal{N}_0 \sum_2 \mathcal{A}_{12}, \tag{21}$$

2) спонтанно-вынужденное излучение:

$$N_1' = \mathcal{N}_0 \mathcal{A}_{12} N_2, \tag{22}$$

3) вынужденно-спонтанное усиление:

$$\frac{\Delta N_1}{N_1} = \mathcal{A}_{12} \mathcal{N}_0, \tag{23}$$

4) индуцированное поглощение:

$$\frac{\Delta N_1}{N_1} = -\mathcal{A}_{12} N_2 \tag{24}$$

(здесь предполагается, что на входе возбуждены только две моды k_1 и k_2). Как правило, $\mathcal{N}_0 \ll 1$ и легче наблюдать последний эффект (24), который широко исследуется в спектроскопических, а также прикладных [153] целях. При инверсии населенности $\mathcal{A}_{12}$ и $\mathcal{N}_0$ отрицательны, и, в принципе, возможно создание двухфотонного перестраиваемого по частоте усилителя или лазера. Интересно, что за счет эффекта (23) (еще не наблюдавшегося) возможно когерентное усиление с сохранением фазы без инверсии населенностей. Эффекты (21) и (22) наблюдались в работах [22] и [154] соответственно.

Четвертые моменты. Подставив, далее, в (8) $f = a_1^+ a_2^+ a_3 a_4$, найдем следующее выражение для четвертого момента ТИ:

$$\langle a_1^+ a_2^+ a_3 a_4 \rangle = 4\mathcal{N}_0 (u_{4321} + u_{1234}^*) \sim \\ \sim \delta(\omega_0 - \omega_1 - \omega_2)\, \delta(\omega_0 - \omega_3 - \omega_4). \tag{25}$$

Обратим внимание, что здесь все четыре коррелирующие моды могут иметь разные частоты. Отметим также, что поскольку мы использовали первое приближение при решении кинетического уравнения, то молекулы вещества дают во все моменты аддитивный вклад, т. е. многочастичные эффекты не учитываются.

Для диагональных моментов из (25) следует

$$\langle a_1^+ a_2^+ a_1 a_2 \rangle \equiv \langle :\hat{N}_1 \hat{N}_2: \rangle = \mathcal{N}_0 \mathcal{A}_{12}. \tag{26}$$

Появление корреляции между модами можно описывать и в шредингеровском представлении. Состояние поля в момент t в первом порядке теории возмущения по $\mathcal{V}_{\text{эф}}$ равно (ср. (5.3.12))

$$| t \rangle = (I + \beta a_1^+ a_2^+) \, | 0 \rangle = | 0 \rangle + \beta \, | 11 \rangle, \tag{27}$$

т. е. со временем к основному состоянию добавляется примесь двухфотонного. Связанные моды (k_1, k_2) можно считать одной степенью свободы, имеющей элементарное возбуждение с энергией $\hbar(\omega_1 + \omega_2)$ — «бифотон».

Двухфотонный закон Кирхгофа. Итак, согласно (9), (13) и (25) первые, вторые и четвертые моменты выходного поля выражаются через одни и те же комплексные коэффициенты u_{1234}, т. е. через кубическую МР: $\boldsymbol{U}^{(3)} = \boldsymbol{I} - \boldsymbol{u}$, которую можно измерить с помощью когерентных полей (см. (12)). Эти соотношения аналогичны обобщенному закону Кирхгофа для линейного образца (§ 4.4).

С другой стороны, формулы (19) и (26) для диагональных моментов содержат действительные коэффициенты $\mathcal{A}_{12}$, пропорциональные вероятности двухфотонного перехода. $\mathcal{A}_{12}$ можно измерить с помощью некогерентных полей по любому из вынужденных эффектов (22) — (24). Результаты таких экспериментов позволяют, в принципе, предсказать тепловое двухфотонное некаскадное излучение (ср. (4.4.11а)):

$$N_1^{\text{сп}} = \sum_2 \frac{\partial N_1'}{\partial N_2} = \sum_2 \frac{\partial N_1'}{\partial N_1} - 1 = -\mathcal{N}_0 \sum_2 \frac{\partial^2 N_1'}{\partial N_1 \partial N_2}, \tag{28а}$$

$$\langle :\hat{N}_1 \hat{N}_2: \rangle^{\text{сп}} = \frac{\partial N_1'}{\partial N_2} = \frac{\partial N_1'}{\partial N_1} - 1 = -\mathcal{N}_0 \frac{\partial^2 N_1'}{\partial N_1 \partial N_2}. \tag{28б}$$

Эти формулы выражают двухфотонный закон Кирхгофа, справедливый в условиях малой нелинейности. Интересно, что в первые две связи не входит температура вещества. Последняя связь в (28б) будет использована ниже для численной оценки.

Возможна и другая постановка вопроса. Пусть $N_1 = 0$, тогда отношение (22) к (21), т. е. относительное приращение интенсивности на выходе при добавлении входного сигнала с «дополнительной» частотой $\omega_2 = \omega_0 - \omega_1$, определяет абсолютное число фотонов во входных модах. Если приписать единицу в (19), ответ-

ственную за спонтанное излучение, действию нулевых флуктуаций, то можно сказать, что этот метод измерения яркости света основан на сравнении с нулевыми флуктуациями (см. также § 6.4).

Сравнение с однофотонным ТИ. Из сравнения (21) и (26) получаем

$$N_1 = \sum_2 \langle : \hat{N}_1 \hat{N}_2 : \rangle, \tag{29}$$

т. е. вероятность появления фотона в данной моде k_1 равна вероятности появления пары фотонов: одного в этой же моде, а другого — в любой моде с частотой $\omega_0 - \omega_1$. Формулы (26) и (29) интересно сравнить со связью между вторыми и четвертыми диагональными моментами гауссова поля:

$$\langle : \hat{N}_1 \hat{N}_2 : \rangle = N_1 N_2 + | N_{12} |^2. \tag{30}$$

Здесь первое слагаемое соответствует случайному одновременному появлению фотонов в любой паре мод (k_1, k_2); второе слагаемое отлично от нуля лишь для пар мод, принадлежащих общему объему когерентности (§§ 4.6, 4.7).

В двухфотонном ТИ случайных совпадений согласно (26) нет [1]), т. е. статистика этого поля существенно не гауссова. Кроме того, здесь коррелирующие моды могут иметь любое направление волнового вектора, так что поперечный масштаб взаимной когерентности неограничен (слабую угловую зависимость корреляции [2]) вносят лишь тензоры $\varkappa$ в (3)). Такой результат вполне согласуется с наглядной картиной вылетающей из одной молекулы пары фотонов. Напомним, что в однофотонном ТИ пары возникают лишь в пределах дифракционного угла в результате двухчастичных процессов (см. (4.4.23)).

Указанные две особенности двухфотонных полей позволяют сравнительно легко их обнаруживать (несмотря на малую оптическую нелинейность вещества), так как они приводят к высокому «контрасту» (отношению сигнал/шум) и позволяют использовать детекторы совпадений с большой апертурой.

Подчеркнем, что, в то время как эффект Брауна — Твисса допускает классическое объяснение (§ 4.7), корреляция фотонов при двухфотонном распаде возбужденного состояния молекул или фотонов падающего излучения (см. главы 6, 7) — специфический квантовый эффект [3]). Заметим, что такие пары коррелированных фотонов являются примером объектов, лежащих в основе

---

[1]) Это справедливо лишь в рассматриваемом низшем приближении.

[2]) Эта зависимость широко используется в γ-спектроскопии для получения информации о промежуточных уровнях ядер.

[3]) В то же время феноменологические кирхгофовские связи позволяют описывать двухфотонные эффекты с помощью полуклассических расчетов кубической МР.

известного парадокса Эйнштейна — Подольского — Розена. Клаузер (см. [23б]) наблюдал поляризационные характеристики каскадного двухфотонного излучения, которые противоречат так называемой *неоклассической* теории излучения.

Отметим еще возможность антикорреляции, которая должна возникать, например, в результате обратного процесса при прохождении света через двухфотонно поглощающее вещество [23б]. С наглядной точки зрения такое вещество действует как ограничитель интенсивности света [156], подавляющий его флуктуации и, следовательно, распределяющий фотоны равномерно во времени, так что вероятность появления двух фотонов рядом падает[1]). Эффект антикорреляции недавно наблюдался при однофотонном излучении молекулярного пучка [160].

Скорость совпадений фотоотсчетов. Найдем с помощью (25) и (4.7.2) вероятность совпадений, которые будут регистрироваться двумя детекторами в дальней зоне:

$$P_c = \frac{2}{\pi v^2 c^6} \int d\Omega_1\, d\Omega_2\, d\omega_1\, d\omega_1'\, d\omega_2\, d\omega_2' \omega_1 \omega_1' \omega_2 \omega_2' \xi_1^* \xi_1' \xi_2^* \xi_2' \times$$
$$\times \exp\left[i(\omega_1' - \omega_1)\tau_{12}\right] \left[\frac{\sin(\omega_1 - \omega_1')T/2}{(\omega_1 - \omega_1')/2}\right]^2 \times$$
$$\times \mathcal{N}_0 \left(w_{2'1'21} + w^*_{121'2'}\right) \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_1' - \omega_2'), \qquad (31)$$

где $\boldsymbol{k}_i \parallel \boldsymbol{k}_i' \parallel \boldsymbol{r}_i$ $(i = 1, 2)$ и $\tau_{12} = (r_1 - r_2)/c$. Коэффициенты w заметно изменяются при изменении частоты на $\Delta\omega$ — ширину распадающихся уровней. Если исключить случай очень узких уровней, то практически всегда $T \gg \Delta\omega^{-1}$. Пусть также $T \gg \Delta\omega_i^{-1}$, τ_{12}, тогда функция от T в (31) равна $2\pi T\delta(\omega_1 - \omega_1')$, и мы получаем следующее простое выражение для скорости совпадений:

$$W_c = \mathcal{N}_0 \sum_{k_1 k_2} \eta_1 \eta_2 w_{12} \qquad (w_{12} \equiv 8\,\mathrm{Re}\, w_{1212}), \qquad (32)$$

где коэффициенты η_i учитывают частотную и пространственную фильтрацию. Таким образом, величина $\mathcal{N}_0 w_{12}$ имеет смысл вероятности излучения бифотона за единицу времени. Это следует и сразу из (26) с учетом (6), если, как обычно, заменить $2\pi\delta(0)$ на время взаимодействия:

$$\frac{d}{dt} \langle : \hat{N}_1 \hat{N}_2 : \rangle = \mathcal{N}_0 w_{12}. \qquad (33)$$

Как уже отмечалось, w слабо зависит от направлений, и поэтому (32) пропорционально произведению апертур детекторов $\Delta\Omega_1 \Delta\Omega_2$.

---

[1]) В то же время в лазере схожий нелинейный эффект — эффект насыщения — распределяет фотоны хаотически, по Пуассону, и антикорреляция отсутствует.

Выразим w_{12} через коэффициент индуцированного поглощения $\mathscr{K}_{12}$, определяемый экспериментально из следующего закона взаимного ослабления двух пересекающихся лучей света в двухфотонно поглощающей среде:

$$\frac{dF_1}{dz} = \frac{dF_2}{dz} = -\mathscr{K}_{12}F_1F_2, \tag{34}$$

где F — плотность потока фотонов в лучах, имеющая размерность $см^{-2}\cdot с^{-1}$. При межзонных переходах в полупроводниках $\mathscr{K}/\hbar\omega \sim$ ~ 1 см/ГВт или $\mathscr{K} \sim 3\cdot 10^{-28}$ см·с (при $\lambda_1 = \lambda_2 = 0{,}7$ мкм) [153]. Пусть размеры образца и «ящика» квантования равны, соответственно: $l_xl_yl_z \equiv V$, $L_xL_yL_z \equiv L^3 \equiv 8\pi^3/v$. Из определений (34) и (24)

$$\frac{\Delta N_1/N_1}{\Delta F_1/F_1} = \frac{w_{12}tN_2}{\mathscr{K}_{12}l_zF_2} = \frac{w_{12}L_zL^3}{\mathscr{K}_{12}l_zc^2}, \tag{35}$$

где мы приняли время взаимодействия равным L_z/c и заменили F_2 на cN_2/L^3. С другой стороны, (35) должно, очевидно, равняться отношению сечений l_xl_y/L_xL_y, так что

$$\frac{w_{12}}{\mathscr{K}_{12}} = \frac{c^2V}{L^6} = \frac{c^2v^2V}{(2\pi)^6}. \tag{36}$$

Переходя в (32) от суммирования к интегрированию по правилу (1.1.22), найдем

$$W_c = \frac{V\Delta\Omega_1\Delta\Omega_2}{(2\pi)^6c^4}\int\limits_{\Delta\omega_1} d\omega_1 \int\limits_{\Delta\omega_2} d\omega_2\omega_1^2\omega_2^2\mathscr{N}(\omega_1+\omega_2)\mathscr{K}(\omega_1\omega_2). \tag{37}$$

Пусть в образце с M активными в двухфотонном поглощении центрами возбужденные уровни образуют сплошную полосу, в которой каким-либо способом (оптическая или электронная накачка, инжекция в полупроводнике) поддерживается населенность M_a частиц. Пусть эти частицы находятся в квазиравновесии с решеткой и, поэтому, распределены в полосе частот порядка $\varkappa T/\hbar \equiv$ $\equiv \Delta\omega_T$. Для грубой оценки будем считать $\mathscr{K}$ постоянным в этой полосе и примем, что полосы пропускания фильтров $\Delta\omega_i \equiv \Delta\omega_ф$ много больше $\Delta\omega_T$, тогда

$$\int d\omega_1\, d\omega_2\mathscr{N} \sim \Delta\omega_ф\Delta\omega_T M_a/M.$$

Если $\omega_1 \sim \omega_2$ и $\Delta\Omega_1 = \Delta\Omega_2$, то из (37) получаем

$$W_c \sim \frac{c^2\Delta\Omega^2V\mathscr{K}M_a}{\lambda^6M}\,\frac{\Delta\omega_ф\Delta\omega_T}{\omega_1^2} \sim \frac{M_a}{M}10^{15}\ с^{-1}. \tag{38}$$

Эта оценка для $\mathscr{K} = 10^{-28}$ см·с, $\lambda = 0{,}7$ мкм, $V = 1$ см^3, $\Delta\Omega = 1$ ср, $\Delta\omega_1/\omega_1 = 0{,}1$, $\Delta\nu_T = 100$ см$^{-1}$ показывает, что при

возбуждении 10^{-15} от общего числа частиц будет регистрироваться одна пара фотонов в секунду.

ОЗК для третьего момента. Применим теперь метод кинетического уравнения и эффективного гамильтониана к двухуровневой нецентросимметричной системе, в которой между данной парой уровней разрешены одно- и двухфотонные переходы одновременно. Для этого достаточно в качестве энергии возмущения в кинетическом уравнении (4.5.9) взять сумму однофотонного (4.5.11) и двухфотонного (1) эффективных гамильтонианов, т. е.

$$f_j = \sum_k c_{jk} a_k + \sum_{kk'} c_{jkk'} a_k a_{k'}. \tag{39}$$

В результате получим следующие уравнения для произвольного момента поля (с исключенной гармонической зависимостью от времени):

$$\frac{d\langle f\rangle}{dt} = \sum_{123} \{w_{12,3}(t)\langle \mathcal{N}_0 [a_3, [f, a_2^+ a_1^+]] - [f, a_1^+ a_2^+] a_3\rangle +$$

$$+ w_{1,23}(t)\langle \mathcal{N}_0 [a_3 a_2, [f, a_1^+]] - [f, a_1^+] a_2 a_3\rangle\} + \text{к. с.} + (2) + (4.5.13) \tag{40}$$

(при добавлении комплексно-сопряженного выражения оператор f надо считать эрмитовым). Здесь, кроме одно- и двухфотонных членов (которые мы не повторяем явно), появились перекрестные слагаемые с коэффициентами связи:

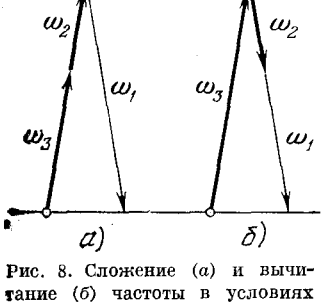

Рис. 8. Сложение (а) и вычитание (б) частоты в условиях двухфотонного резонанса.

$$w_{12,3} \equiv \hbar^{-2} \sum_j \frac{\Delta\rho_j c_{j12}^* c_{j3}}{i(\omega_0 - \omega_3) + \varepsilon} e^{i(\omega_1+\omega_2-\omega_3)t},$$

$$w_{1,23} \equiv \tag{41}$$

$$\equiv \hbar^{-2} \sum_j \frac{\Delta\rho_j c_{j1}^* c_{j23}}{i(\omega_0 - \omega_2 - \omega_3) + \varepsilon} e^{i(\omega_1-\omega_2-\omega_3)t}.$$

Полагая в (40) $f = a_1$, найдем в первом порядке по $\mathcal{V}_{\text{фэ}}$ приращение первого момента поля на «выходе»:

$$\Delta\langle a_1\rangle = 2\mathcal{N}_0 u_1 - \sum_{23} (u_{1,23}\langle a_2 a_3\rangle + 2u_{12,3}\langle a_2^+ a_3\rangle), \tag{42}$$

$$u \equiv \int dt\, w(t), \quad u_1 \equiv \sum_2 u_{12,2};$$

здесь опущены линейные и кубические слагаемые, уже определенные ранее. Первое слагаемое в (42) дает вклад лишь на нулевой частоте (он описывает статическую поляризацию, вызванную нулевыми флуктуациями). Второе и третье слагаемые описывают

однорезонансное сложение и вычитание трех частот (рис. 8). Эти эффекты позволяют измерить коэффициенты u_{123}, которые (с обратными знаками) составляют квадратичную (трехиндексную) МР в первом неисчезающем порядке теории возмущения.

Пусть теперь $f = a_1^+ a_2^+ a_3$, тогда из (40) при вакууме на входе получается следующее выражение для третьего момента на выходе:

$$\langle a_1^+ a_2^+ a_3 \rangle_{\text{сп}} = 2\mathcal{N}_0 (u_{3,21} + u_{12,3}^*) \sim \delta(\omega_3 - \omega_0)\, \delta(\omega_3 - \omega_2 - \omega_1). \qquad (43)$$

Из определений (41) следует, что бóльшая из трех частот совпадает с собственной частотой вещества; две другие частоты в силу использованного двухуровневого приближения не должны принадлежать области поглощения (т. е. исключаются «каскадные» частоты).

Итак, мы снова выразили спонтанные эффекты (43) через соответствующую МР и температурный множитель.

ГЛАВА 6

ПАРАМЕТРИЧЕСКОЕ РАССЕЯНИЕ

Как уже говорилось в § 1.1, параметрическое (ПР) и поляритонное (РП) рассеяния наглядно объясняются распадом фотонов накачки на пары фотонов с дробными энергиями. Мы здесь попытаемся рассмотреть это явление более подробно, исходя из различных точек зрения.

Обычно в квантовой электродинамике используется описание поля с помощью операторов рождения и уничтожения фотонов a_k, a_k^+, независящих от времени (шредингеровское представление). При этом конечным результатом квантовой теории рассеяния, который сравнивается с экспериментом, является вероятность перехода в единицу времени или сечение рассеяния. В § 6.1 будет использован этот традиционный для квантовой механики путь, на основании которого в §§ 6.2 и 6.3 будут рассчитаны основные энергетические характеристики ПР. Рассмотрение общих статистических свойств рассеянного поля будет проведено в § 6.4 с помощью уравнений Гейзенберга для $a_k(t)$ и эффективно трехфотонного гамильтониана. В результате моменты поля рассеяния будут определены через квадратичную матрицу рассеяния (МР) в духе обобщенного закона Кирхгофа (ОЗК).

С другой стороны, в классической линейной и нелинейной оптике более привычно оперировать напряженностью поля $E(\boldsymbol{r}t)$ или $E(\boldsymbol{r}\omega)$, а также медленно-меняющимися амплитудами (ММА). Разложение по модам и введение в качестве основных величин амплитуд мод применяется здесь лишь при наличии реальных резонаторов. В связи с этим в § 6.5, посвященном теории параметрической сверхлюминесценции, в приближении заданной накачки устанавливается связь между операторами a_k и ММА, а также вводится представление $(\omega \boldsymbol{k}_\perp z)$.

Последний параграф главы будет посвящен феноменологическому описанию РП (т. е. ПР при наличии поглощения на холостой частоте). Здесь также будет использовано несколько подходов с помощью линейной и нелинейной ФДТ, а также кинетического уравнения. Последний метод позволит в приближении заданной накачки сформулировать ОЗК, охватывающий ПР и РП, и показать, что статистика рассеянного поля является «квазигауссовой» (которая отличается от гауссовой корреляцией между сигнальными и холостыми модами).

§ 6.1. Скорость генерации бифотонов

Если интересоваться только диагональными моментами поля ПР, то можно воспользоваться «золотым правилом». Спонтанному ПР соответствует трехфотонный спонтанно-вынужденный переход, и можно ограничиться третьим порядком теории возмущения. В этом приближении фотоны излучаются только сильно коррелированными парами, которые мы будем называть «бифотонами». В настоящем параграфе мы определим скорость генерации бифотонов W_{12} с заданными импульсами и поляризациями k_1, k_2 в рамках модели «ориентированного газа» и дипольного взаимодействия с поперечным полем. При этом W_{12} можно выразить через квадратичную поляризуемость χ и ввести эффективную энергию взаимодействия $\mathscr{V}_{\text{эф}}$, которая описывает спонтанное ПР уже в первом порядке теории возмущения [44, 88, 89].

Третий порядок теории возмущения. Рассмотрим простейшую модель кристалла в виде M регулярно расположенных неподвижных и невзаимодействующих друг с другом молекул. Пусть размер каждой молекулы много меньше длины волны, так что применимо дипольное приближение для энергии взаимодействия молекул с электромагнитным полем (4.5.1). Чтобы воспользоваться «золотым правилом» (2.3.32), надо задать начальное $|\, i\rangle$ и конечное $|\, f\rangle$ состояния. Пусть в начальный момент времени все молекулы находятся в основном состоянии $|\, a\rangle_j$ и в поле имеется N_1, N_2, N_3 фотонов в модах k_1, k_2, k_3 (для краткости обозначаем $(\boldsymbol{k}, \nu_k) \equiv k$, $N_{k_1} \equiv N_1$ и т. д.):

$$|\, i\rangle = |\, aN_1N_2N_3\rangle \equiv |\, a\rangle\, |i'\rangle. \tag{1}$$

ПР соответствует конечное состояние

$$|\, f\rangle = |\, a, N_1 + 1, N_2 + 1, N_3 - 1\rangle \equiv |\, a\rangle\, |\, f'\rangle. \tag{2}$$

Переходы такого типа — при которых вещество возвращается в начальное состояние, а меняется лишь поле — называются в нелинейной оптике параметрическими или когерентными.

Согласно § 3.2 оператор напряженности поля равен сумме операторов рождения и уничтожения, изменяющих число фотонов лишь на единицу, поэтому амплитуда перехода $\mathscr{S}_{fi}$ для рассматриваемого трехфотонного процесса отлична от нуля лишь в третьем или более высоких порядках теории возмущений. Исключим пока случай параметрической сверхлюминесценции, тогда можно ограничиться третьим порядком. Согласно (2.3.32) скорость перехода в единицу времени (т. е. скорость рождения бифотонов) равна

$$W_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar}\, |\, T_{fi}|^2\, \delta\,(\mathscr{E}_f - \mathscr{E}_i), \tag{3}$$

$$T_{fi} = \sum_{v_1 v_2} \frac{\langle f\,|\,\mathscr{V}\,|\,v_2\rangle\,\langle v_2\,|\,\mathscr{V}\,|\,v_1\rangle\,\langle v_1\,|\,\mathscr{V}\,|\,i\rangle}{(\mathscr{E}_i - \mathscr{E}_{v_2})\,(\mathscr{E}_i - \mathscr{E}_{v_1})}. \tag{4}$$

Здесь суммирование по индексам виртуальных состояний v_1, v_2 должно включать все возможные «пути» перехода. При возведении в квадрат различные пути могут подавлять или усиливать друг друга (эффект квантовой интерференции). Мы опустили мнимые члены в знаменателе (4), так как предполагается, что промежуточных резонансов нет.

Рассмотрим один из путей перехода. Например, j-я молекула может сперва излучить фотон в моду k_1 и перейти в возбужденное состояние $|b\rangle_j$. Этому этапу в числителе (4) соответствует следующий матричный элемент энергии возмущения:

$$\langle v_1 | \mathscr{V} | i\rangle = -\langle N_1+1, b_j | \boldsymbol{d}_j \cdot \boldsymbol{E}_j | N_1, a_j\rangle = -\langle v_1' | \boldsymbol{d}_{jba} \cdot \boldsymbol{E}_{j1}^{(-)} | i'\rangle, \tag{5}$$

где индекс «—» выделяет отрицательно-частотную часть свободного (невозмущенного) поля, содержащую только операторы рождения фотонов, и штрихованные индексы состояний относятся к состояниям поля. Мы, как всегда, используем смешанные обозначения для матричных элементов: $d_{ba} \equiv \langle b \mid d \mid a\rangle$. «Дефицит» энергии в первом виртуальном состоянии равен $\mathscr{E}_i - \mathscr{E}_{v_1} = \hbar(\omega_{ab} - \omega_1)$, так что первый этап рассматриваемого пути дает множитель

$$-\left\langle v_1' \left| \frac{\boldsymbol{d}_{jba} \cdot \boldsymbol{E}_{j1}^{(-)}}{\hbar(\omega_{ab} - \omega_1)} \right| i' \right\rangle,$$

где $|v_1'\rangle = |N_1+1, N_2, N_3\rangle$. На втором этапе та же молекула может перейти в состояние $|c_j\rangle$, излучив другой фотон k_2; этот этап дает множитель

$$-\left\langle v_2' \left| \frac{\boldsymbol{d}_{jcb} \cdot \boldsymbol{E}_{j2}^{(-)}}{\hbar(\omega_{ac} - \omega_2)} \right| v_1' \right\rangle,$$

где $|v_2'\rangle = |N_1+1, N_2+1, N_3\rangle$. На третьем этапе из-за δ-функции в (3), обеспечивающей сохранение энергии при переходе в целом, та же молекула должна вернуться в исходное состояние с поглощением фотона с частотой $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, что дает множитель

$$-\langle f' | \boldsymbol{d}_{jac} \cdot \boldsymbol{E}_{j3}^{(+)} | v_2'\rangle.$$

В результате рассмотренный путь при учете всех виртуальных состояний молекулы b, c дает амплитуду перехода

$$T_{321}^{(j)} = -\left\langle f' \left| \sum_{bc} \frac{(\boldsymbol{d}_{jac} \cdot \boldsymbol{E}_{j3}^{(+)})(\boldsymbol{d}_{jcb} \cdot \boldsymbol{E}_{j2}^{(-)})(\boldsymbol{d}_{jba} \cdot \boldsymbol{E}_{j1}^{(-)})}{\hbar^2(\omega_{ac} - \omega_2)(\omega_{ab} - \omega_1)} \right| i' \right\rangle. \tag{6}$$

Выбранная здесь последовательность излучения и поглощения фотонов (3, 2, 1) является одной из $6 = 3!$ возможных (вырожденный случай $k_1 = k_2$ мы исключаем), поэтому полная амплитуда

рассеяния на j-й молекуле равна сумме перестановок по индексам (1, 2, 3):

$$T^{(j)} = T^{(j)}_{321} + T^{(j)}_{312} + T^{(j)}_{123} + \ldots \equiv \sum_{(3,\,2,\,1)}^{6} T^{(j)}_{321}. \tag{7}$$

Эффективный гамильтониан. Введем величину

$$\beta^{\overline{3}\overline{2}\overline{1}}_{kji} \equiv \sum_{(3k,\,2j,\,1i)}^{6} \sum_{bc} \frac{(\boldsymbol{d}_{ac})_k (\boldsymbol{d}_{cb})_j (\boldsymbol{d}_{ba})_i}{\hbar^2 (\omega_{ac} - \omega_2)(\omega_{ab} - \omega_1)}, \tag{8}$$

которая, как легко убедиться, имеет смысл тензора квадратичной гиперполяризуемости молекулы (индекс j опущен; $i, j, k = x, y, z$). Каждая из 27 компонент тензора β является функцией двух (так как $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$) переменных, однако, из-за наличия суммы по перестановкам в определении (8) эти функции инвариантны к одновременной перестановке частотных и декартовых индексов ($\beta^{\overline{1}\overline{2}\overline{3}}_{xyz} = \beta^{\overline{2}\overline{1}\overline{3}}_{yxz} = \ldots$), и поэтому число независимых функций не превышает 10 (3 функции вида xxx, 6 — вида xyy и 1 — вида xyz). Дополнительное уменьшение этого числа вызывает симметрия молекулы [9] — например, в случае симметрии класса C_{3v} имеются всего 3 независимые функции вида zzz, $zxx = zyy$ и $xxx = -xyy$ (к этому классу принадлежит кристалл ниобата лития). С помощью (8) и (6) формула (7) принимает вид

$$T^{(j)} = -\langle f' | \beta_j \vdots \boldsymbol{E}^{(-)}_{j1} \boldsymbol{E}^{(-)}_{j2} \boldsymbol{E}^{(+)}_{j3} | i' \rangle \equiv \langle f' | \mathscr{V}_{\text{эф}} | i' \rangle. \tag{9}$$

Подставив (9) в (3), мы видим, что трехфотонные процессы можно описывать не в третьем, а в первом порядке теории возмущений, если вместо энергии возмущения $-\boldsymbol{d}\cdot\boldsymbol{E}$ взять эффективную энергию вида $-\beta \vdots \boldsymbol{E}^3$.

Амплитуда $T^{(j)}$ описывает рассеяние на одной молекуле. При *некогерентном* трехфотонном рассеянии молекулы рассеивают независимо и скорость рождения пар W_{12} пропорциональна $\sum_{j=1}^{M} |T^{(j)}|^2$. В случае же когерентного рассеяния за счет «постоянной составляющей» координат молекул $W_{12} \sim |\sum_j T^{(j)}|^2$. Пусть все молекулы одинаково ориентированы и расположены в узлах правильной решетки, тогда для произвольной плавной функции $f(\boldsymbol{r}_j)$ можно перейти к интегрированию:

$$\sum_j \beta_j f(\boldsymbol{r}_j) \approx \chi \int_V d\boldsymbol{r} f(\boldsymbol{r}), \tag{10}$$

где мы ввели макроскопическую восприимчивость единицы объема кристалла $\chi \equiv \beta M/V$. Такая простая связь молекулярных

и макроскопических свойств верна лишь в разреженных газах; в кристаллах существенно взаимодействие молекул и отличие макроскопического (среднего по пространству) поля от действующего поля в центре молекулы.

Итак, мы исключили молекулярные переменные, и взаимодействие мод описывается теперь первым порядком теории возмущения

$$W_{12} = 2\pi\hbar^{-2} \mid \langle f' \mid \mathscr{V}_{\text{эф}} \mid i' \rangle \mid^2 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3) \tag{11}$$

с эффективной (феноменологической) энергией возмущения

$$\mathscr{V}_{\text{эф}} = -\boldsymbol{\chi} \vdots \int_V d\boldsymbol{r} \left(\boldsymbol{E}_1^{(-)} \boldsymbol{E}_2^{(-)} \boldsymbol{E}_3^{(+)} + \boldsymbol{E}_3^{(-)} \boldsymbol{E}_2^{(+)} \boldsymbol{E}_1^{(+)} \right), \tag{12}$$

где мы добавили слагаемое $\boldsymbol{E}_3^{(-)} \boldsymbol{E}_2^{(+)} \boldsymbol{E}_1^{(+)}$, описывающее обратный процесс $\mid f \rangle \to \mid i \rangle$ и обеспечивающее эрмитовость энергии возмущения (в области прозрачности $\chi = \chi^*$).

Осталось найти матричные элементы операторов поля. Чтобы учесть линейные оптические свойства кристалла, воспользуемся результатами § 3.4. Пусть анизотропный кристалл заполняет все пространство, но нелинейностью обладает лишь его часть, занимающая конечный объем V. Эта модель соответствует экспериментам с «просветленными» кристаллами, не дающими отражений. Поправку на реальное отражение, а также преломление волн можно производить в конечных формулах. Из (3.4.31), (3.3.6) находим матричные элементы поля (считаем орты поляризации $\boldsymbol{e}_k$ действительными):

$$\begin{gathered} \langle N_k - 1 \mid \boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r}) \mid N_k \rangle = i \boldsymbol{c}_k \sqrt{N_k}\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}, \\ \langle N_k + 1 \mid \boldsymbol{E}^{(-)}(\boldsymbol{r}) \mid N_k \rangle = -i \boldsymbol{c}_k \sqrt{N_k + 1}\, e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}, \\ \boldsymbol{c}_k \equiv \boldsymbol{e}_k (\hbar\omega_k u_k v / 4\pi^2 c n_k \cos\rho_k)^{1/2}. \end{gathered} \tag{13}$$

Вероятность рождения бифотонов. Подставив (13) и (12) в (11), найдем, что скорость перехода $\mid i \rangle \to \mid f \rangle$ пропорциональна $(N_1 + 1)(N_2 + 1)N_3$; аналогично скорость перехода из $\mid i \rangle$ в $\mid N_1 - 1,\ N_2 - 1,\ N_3 + 1 \rangle$ пропорциональна $N_1 N_2 (N_3 + 1)$ с тем же коэффициентом пропорциональности. В результате скорость появления (или исчезновения) пар фотонов в модах k_1 и k_2 будет равна

$$\begin{gathered} W_{12} = 2\pi\hbar^{-2}\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)[(N_1 + N_2 + 1)N_3 - N_1 N_2] \times \\ \times \mid \boldsymbol{\chi} \vdots \boldsymbol{c}_1 \boldsymbol{c}_2 \boldsymbol{c}_3 \mid^2 f(\Delta\boldsymbol{k}), \\ f(\Delta\boldsymbol{k}) \equiv \left| \int_V d\boldsymbol{r}\, e^{i\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} \right|^2, \quad \Delta\boldsymbol{k} \equiv \boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3. \end{gathered} \tag{14}$$

При спонтанном ПР по определению $N_{1,2} = 0$ и скорость генерации бифотонов пропорциональна N_3. Выразим N_3 через поток

фотонов накачки W_3, входящих за единицу времени в нормировочный объем L^3. Очевидно, что плотность потока $\boldsymbol{F} = \boldsymbol{S}/\hbar\omega$ равна концентрации фотонов N/L^3, умноженной на вектор групповой скорости $\boldsymbol{u}$. Полный поток через «входную» грань образца, имеющую поверхность A, равен

$$W_3 = N_3 L^{-3} A u_{3z} = \frac{cAn_3 \cos\theta_3 \cos\rho_3}{2\pi\hbar\omega_3} |\langle N_3 - 1 | E_3^{(+)} | N_3 \rangle|^2, \qquad (15)$$

где $u_{3z} = u_3 \cos\theta_3$ — проекция групповой скорости на ось, перпендикулярную A (мы пренебрегаем фотонами, входящими в V через боковые грани), и мы использовали (13) чтобы выразить N_3 через E_3. В случае классического приближения поля накачки надо в (15) заменить матричный элемент на E_3. Заметим, что объемы квантования L^3 и образца V независимы (но L^3 включает V). Отношение (14) при $N_{1,2} = 0$ к (15) имеет смысл вероятности превращения одного вошедшего в нелинейный объем фотона накачки в пару фотонов:

$$P_{12} \equiv \frac{W_{12}}{W_3} = \frac{(2\pi c_1 c_2 \chi)^2 \omega_3}{\hbar c \bar{n}_3 A} \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3) f(\Delta \boldsymbol{k}), \qquad (16)$$

где $\chi \equiv \boldsymbol{\chi} : \boldsymbol{e}_1 \boldsymbol{e}_2 \boldsymbol{e}_3$ и $\bar{n} \equiv n \cos\theta \cos\rho$.

Дифференциальная скорость рождения бифотонов. Отношение (16) безразмерно, так как мы разбили поле на дискретные моды. Чтобы перейти к непрерывному $\boldsymbol{k}$-пространству, надо разделить вероятность распада P_{12} на объем v^2 одной пары мод в $k_1 \times k_2$-пространстве:

$$\frac{dP(\boldsymbol{k}_1 \boldsymbol{k}_2)}{d\boldsymbol{k}_1 d\boldsymbol{k}_2} = \frac{P_{12}}{v^2}. \qquad (17)$$

Функция распределения (17) имеет размерность см^6.

Параметры реальных детекторов, расположенных в дальней зоне по отношению к рассеивающему объему, удобнее задавать в сферических координатах $\{\omega_k, \boldsymbol{\Omega}_k\}$, где $\omega_k = \omega_\nu(\boldsymbol{k})$ и $\boldsymbol{\Omega}_k \equiv \boldsymbol{k}/k \equiv \{\vartheta_k, \varphi_k\}$. Как известно, для перехода к новым аргументам функцию распределения следует умножить на якобиан преобразования

$$\frac{D(k_{1x} \ldots k_{2z})}{D(\omega_1 \Omega_1 \omega_2 \Omega_2)} = \prod_{i=1,2} \frac{d^3 k_i}{d\omega_i d\Omega_i}. \qquad (18)$$

Согласно (3.4.34) $d^3k/d\omega d\Omega = k^2/u_k \cos\rho_k$, так что

$$\frac{dP}{d\omega_1 d\Omega_1 d\omega_2 d\Omega_2} = P_{12} \prod_{i=1,2} \frac{k_i^2}{v u_i \cos\rho_i}. \qquad (19)$$

Кроме того, надо еще учесть преломление и отражение при выходе света из кристалла в вакуум. Обозначим наружные угловые координаты волновых векторов штрихами: $\boldsymbol{\Omega}' = \{\vartheta', \varphi'\}$, тог-

да, чтобы перейти к наблюдаемой функции распределения, следует умножить (19) на отношения внутренних телесных углов к внешним [1])

$$\frac{D(\vartheta, \varphi)}{D(\vartheta', \varphi')} = \frac{d\Omega}{d\Omega'} = \frac{\cos\vartheta'}{n^2\cos\vartheta} \tag{20}$$

и на коэффициенты пропускания выходной грани. Эти поправки мы, как правило, выписывать не будем.

Подставив (16) в (19), находим окончательно дифференциальную вероятность (с размерностью $\text{Гц}^{-2}\cdot\text{ср}^{-2}$) превращения фотона накачки в бифотон:

$$\frac{dP}{d\omega_1\, d\Omega_1\, d\omega_2\, d\Omega_2} = \frac{\hbar\omega_1^3\omega_2^3\omega_3 n_1 n_2 \chi^2 \delta(\omega_1+\omega_2-\omega_3)\, f(\Delta\boldsymbol{k})}{4\pi^2 c^7 \cos^2\rho_1 \cos^2\rho_2 \cos^2\rho_3 n_3 A}, \tag{21}$$

где мы приняли, что $k_{3x} = k_{3y} = 0$ (при этом $\theta_3 = \rho_3$).

Введем также дифференциальное *сечение* распада фотонов накачки на кристалле в целом, равное скорости рождения пар при единичном потоке падающих фотонов $F = 1$. Обычно углы анизотропии малы ($\cos\rho \approx 1$), так что $F_3 \approx W_3/A$ и из (21) следует

$$\frac{d\sigma}{d\omega_1\, d\Omega_1\, d\omega_2\, d\Omega_2} \approx \frac{\hbar\omega_1^3\omega_2^3\omega_3 n_1 n_2 \chi^2 \delta(\Delta\omega)\, f(\Delta\boldsymbol{k})}{4\pi^2 c^7 n_3}. \tag{22}$$

Заметим, что сечение рассеяния на одной молекуле равно (22) при замене

$$\chi \int d\boldsymbol{r} e^{i\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} \to \beta \approx \chi \frac{V}{M}. \tag{23}$$

Закон сохранения импульса. Пусть макроскопический образец имеет форму параллелепипеда с объемом $V = abl$. Рассмотрим функцию $f(\Delta\boldsymbol{k})$, играющую роль *форм-фактора* образца:

$$f(\Delta\boldsymbol{k}) = \left(V \operatorname{sinc}\frac{\Delta k_x a}{2} \operatorname{sinc}\frac{\Delta k_y b}{2} \operatorname{sinc}\frac{\Delta k_z l}{2}\right)^2. \tag{24}$$

Если $\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 \approx \boldsymbol{k}_3$, так что $\Delta k_x a \ll 1$, $\Delta k_y b \ll 1$, $\Delta k_z l \ll 1$, то $f = V^2$. При увеличении волновой расстройки $\Delta\boldsymbol{k}$ свыше $1/V$ функция f быстро падает и осциллирует и в среднем равна $8/(\Delta k_x \Delta k_y \Delta k_z)^2$. Таким образом, пары преимущественно рождаются в областях пространства $\boldsymbol{k}_1 \times \boldsymbol{k}_2$, удовлетворяющих закону сохранения энергии $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ и (с «дифракционной» точностью $\Delta k a \ll 1$) закону сохранения импульса $\Delta k = 0$. Сечение образования таких пар пропорционально V^2. Сохранение импульса здесь является следствием квантовой интерференции амплитуд перехода $T^{(j)}$. В случае одной молекулы импульс согласно (23) не сохраняется (наша модель не учитывает отдачи молекул). При некогерентном

[1]) Пусть плоскость падения близка к плоскости $\varphi = 0$, тогда $\sin\vartheta' = n\sin\vartheta$, $\varphi' = n\varphi$. Дифференцируя эти равенства, находим (20).

трехфотонном рассеянии интерференции нет из-за хаотического движения молекул (иначе, фононы «забирают» часть импульса).

Для сравнения с экспериментом надо проинтегрировать распределение (21) с весом, равным функции чувствительности детекторов. При этом можно выделить два класса детекторов — с высоким частотно-угловым разрешением, позволяющим наблюдать структуру функции $f(\Delta \boldsymbol{k})$, и с низким разрешением, дающим лишь интегральные характеристики. В случае, когда чувствительность детекторов мало меняется в интервале синхронизма (нет малых угловых апертур и узкополосных фильтров), можно при интегрировании сделать замену

$$\int\limits_{-a/2}^{a/2} dx e^{i\Delta k_x x} \to 2\pi\delta(\Delta k_x) \tag{25}$$

и аналогично для интегралов по y, z. При этом, как легко видеть (ср. (2.3.33)),

$$\left|\int dx e^{i\Delta k_x x}\right|^2 \to 2\pi a\delta(\Delta k_x), \tag{26}$$

так что теперь импульсы сохраняются точно:

$$f(\Delta \boldsymbol{k}) = 8\pi^3 V\delta(\Delta \boldsymbol{k}). \tag{27}$$

В этом приближении дифференциальная вероятность распада (21) пропорциональна длине образца $V/A = l$:

$$\frac{dP}{d\omega_1\, d\Omega_1\, d\omega_2\, d\Omega_2} = C_0\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)\,\delta(\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3), \tag{28}$$

$$C_0 \equiv \left[\frac{2\pi\hbar\omega_1^3\omega_2^3\omega_3 n_1 n_2 \chi^2 l}{c^7 \cos^2\rho_1 \cos^2\rho_2 \cos^2\rho_3 n_3}\right]_0,$$

где индекс «0» выделяет значения функций волновых векторов $\omega(\boldsymbol{k}_i)$, $\rho(\boldsymbol{k}_i)$, $\boldsymbol{e}(\boldsymbol{k}_i)$, $n(\boldsymbol{k}_i)$, принадлежащих *поверхности синхронизма*, т. е. удовлетворяющих законам сохранения импульса и энергии.

§ 6.2. Интегральная интенсивность ПР

В этом и следующем разделах мы рассмотрим «однофотонные» эксперименты, в которых с помощью одного детектора измеряется интенсивность рассеянного света (двухфотонные корреляционные эксперименты будут рассмотрены в § 6.4). Как всегда, при вычислении вероятностей для определения однофотонной функции распределения следует просуммировать двухфотонную функцию по ненаблюдаемым альтернативам:

$$\frac{dP}{d\omega_1\, d\Omega_1} = \int d\omega_2\, d\Omega_2 \frac{dP}{d\omega_1\, d\Omega_1\, d\omega_2\, d\Omega_2}. \tag{1}$$

Мы сперва исследуем случай малоизбирательных детекторов, когда можно использовать приближение (6.1.27) (детальная форма однофотонной функции распределения будет рассмотрена в § 6.3). При этом благодаря функции $\delta(\Delta\boldsymbol{k})$ интеграл по холостым фотонам берется тривиально:

$$\frac{dP}{d\omega_1\, d\Omega_1} = C_0 \left[\frac{u_2 \cos\rho_2}{k_2^2}\right]_0 \delta(\Delta\omega), \qquad \Delta\omega \equiv \omega(\boldsymbol{k}_1) + \omega(\boldsymbol{k}_2^0) - \omega_3, \tag{2}$$

где $\boldsymbol{k}_2^0 \equiv \boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1$ и функция $\boldsymbol{k}_1 \equiv \boldsymbol{k}_1(\omega_1, \boldsymbol{\Omega}_1)$ определена неявно законом дисперсии $\omega_1(\boldsymbol{k}_1)$ и направлением наблюдения (внутри кристалла) $\boldsymbol{\Omega}_1 \equiv \boldsymbol{k}_1/k_1$.

Детектор с низким частотным разрешением. Пусть частотная полоса детектора сигнала много больше частотной полосы синхронизма, тогда, очевидно, его показания пропорциональны интегралу от (2) по ω_1: $P_{\Omega_1} = \int d\omega_1 P_{\Omega_1\omega_1}$, где $P_\Omega \equiv dP/d\Omega$, $P_{\omega\Omega} \equiv dP/d\omega d\Omega$ (предполагается, что интервал интегрирования, равный полосе детектора, включает только одну частоту $\omega_1^0(\boldsymbol{\Omega}_1)$, принадлежащую поверхности синхронизма в направлении $\boldsymbol{\Omega}_1$). Из определения дельта-функции следует, что

$$\int d\omega g(\omega)\delta[f(\omega)] = g(\omega_0)\left|\frac{df}{d\omega}\right|_0^{-1}, \tag{3}$$

где ω_0 — корень (единственный) уравнения $f = 0$. В результате из (2) следует

$$P_{\Omega_1} = C_0 \left[\frac{u_2 \cos\rho_2}{k_2^2}\right]_0 \left|\frac{\partial\Delta\omega}{\partial\omega_1}\right|_0^{-1}. \tag{4}$$

По смыслу множитель $|\partial\Delta\omega/\partial\omega|^{-1}$ является комбинированной плотностью состояний, дающих вклад в наблюдаемый сигнал. В особых точках поверхности синхронизма эта плотность может резко возрастать (см. ниже). Направление $\boldsymbol{\Omega}_1$ на точку наблюдения в (4) считается фиксированным, поэтому из $d\omega_k = \boldsymbol{u}_k \cdot d\boldsymbol{k}$ следует

$$\frac{\partial\Delta\omega}{\partial\omega_1} = 1 - \boldsymbol{u}_2 \frac{\partial\boldsymbol{k}_1(\omega_1\boldsymbol{\Omega}_1)}{\partial\omega_1} = 1 - \frac{u_2}{u_1}\zeta, \tag{5}$$

где $\zeta \equiv \cos\theta_{12}/\cos\rho_1$, θ_{12} — угол между $\boldsymbol{k}_1$ и $\boldsymbol{u}_2$ (индекс синхронизма «0», как и индексы поляризации ν_k, мы, как правило, опускаем).

Как заметил Моллоу [95], здесь допущена неточность: ведь в эксперименте фиксируется направление наблюдения $\boldsymbol{\Omega}_1'$ снаружи кристалла. При этом направление внутри $\boldsymbol{\Omega}_1$ из-за дисперсии показателя преломления будет зависеть от частоты и, строго говоря, частная производная в (5) должна браться при постоянном $\boldsymbol{\Omega}_1'$, а не $\boldsymbol{\Omega}_1$:

$$\left.\frac{\partial\Delta\omega}{\partial\omega_1}\right|_{\boldsymbol{\Omega}_1'} = 1 - \boldsymbol{u}_2 \cdot \left.\frac{\partial\boldsymbol{k}_1}{\partial\omega_1}\right|_{\boldsymbol{\Omega}_1'}. \tag{6}$$

Однако поправка за счет этого эффекта невелика. Пусть сигнальная и холостая волны обыкновенные и пусть $k_{3x} = k_{3y} = k_{1y} = k_{2y} = 0$, тогда

$$u_{2x} = -u_2 \sin\vartheta_2, \qquad u_{2z} = u_2 \cos\vartheta_2,$$

$$k_{1x} = k_1 \sin\vartheta_1 = \frac{\omega_1}{c}\sin\vartheta_1', \qquad k_{1z} = \sqrt{k^2(\omega_1) - \frac{\omega^2}{c^2}\sin^2\vartheta_1'},$$

$$\left.\frac{\partial k_{1x}}{\partial\omega_1}\right|_{\vartheta_1'} = \frac{\sin\vartheta_1}{v_1}, \qquad \left.\frac{\partial k_{1z}}{\partial\omega_1}\right|_{\vartheta_1'} = \frac{1-\xi_1\sin^2\vartheta_1}{u_1\cos\vartheta_1}, \tag{7}$$

$$\xi \equiv \frac{u}{v} \equiv \frac{k\,d\omega}{\omega\,dk} = \frac{1}{1+\dfrac{\omega\,dn}{n\,d\omega}}, \qquad v \equiv \frac{c}{n},$$

так что

$$\frac{\partial\Delta(\omega_1\Omega_1')}{\partial\omega_1} = 1 - \frac{u_2}{u_1}\bar{\xi}, \tag{8}$$

$$\bar{\xi} \equiv (1-\xi\sin^2\vartheta_1)\frac{\cos\vartheta_2}{\cos\vartheta_1} - \xi\sin\vartheta_1\sin\vartheta_2.$$

Обычно дисперсия невелика ($\xi > 0{,}9$) и $\vartheta_i \ll 1$. В результате (8) мало отличается от (5) (при $\rho_i = 0$).

Из (4) и (5) следует

$$P_{\Omega_1} = \frac{C_0\cos\rho_2}{k_2^2\left|u_2^{-1} - u_1^{-1}\zeta\right|}. \tag{9}$$

Яркость света ПР. Используя фотометрическую терминологию, введем силу света $\mathscr{P}_\Omega$ (Вт/ср) и яркость S_Ω (Вт/(см$^2\cdot$ср)):

$$\mathscr{P}_{\Omega_1} = S_{\Omega_1}A\cos\theta_1 = P_{\Omega_1}\mathscr{P}_3\frac{\omega_1}{\omega_3} =$$

$$= \frac{2\pi\hbar\omega_1^4\omega_2 n_1\chi^2 l\mathscr{P}_3}{c^5\cos^2\rho_1\cos\rho_2\cos^2\rho_3 n_2 n_3\left|u_2^{-1} - u_1^{-1}\zeta\right|}, \tag{10}$$

где A — сечение нелинейного объема (практически оно определяется сечением луча накачки).

В (4) предполагалось, что уравнение $\Delta\omega = 0$ имеет один корень $\omega_1^0(\Omega_1)$, т. е. что данное направление Ω_1 пересекает поверхность синхронизма один раз. Вобще же пересечение может иметь место и для холостой частоты и также для нескольких комбинаций индексов поляризации. Кроме того, дополнительные частоты синхронизма возникают в области собственных частот кристалла. Забегая вперед, отметим, что (10) описывает и рассеяние на поляритонах. Ясно, что если нет дополнительной фильтрации, то (10) следует просуммировать по всем частотам синхронизма для данного направления.

Формула (10) допускает непосредственное сравнение с экспериментом. Если после кристалла поставить линзу с фокусным расстоянием f, то интенсивность света в точке фокальной плоскости с координатами $x = f\vartheta'\cos\varphi'$,

$y = f\vartheta' \sin\varphi'$ будет равна

$$S_f = \frac{\mathcal{P}_{\Omega'}}{f^2} = \frac{\mathcal{P}_\Omega \mathcal{T} \cos\vartheta'}{f^2 n^2 \cos\vartheta}, \tag{11}$$

где мы опустили индекс 1 и ввели поправку на отражения $\mathcal{T}$ и уменьшение яркости при выходе излучения из кристалла в вакуум (6.1.20). Эта формула может быть использована для измерения абсолютной величины и частотной дисперсии квадратичной восприимчивости пьезокристаллов [53].

Детектор с низким угловым разрешением. Пусть теперь детектор имеет высокое разрешение по ω_1, φ_1 и низкое — по ϑ_1 (оси сферической системы в общем случае считаем произвольными, однако обычно удобно считать ось z параллельной $\boldsymbol{k}_3$), тогда его показания пропорциональны (ср. (4)):

$$P_{\omega_1\varphi_1} = \int d\vartheta_1 \sin\vartheta_1 P_{\omega_1\vartheta_1\varphi_1} = C_0 \left[\frac{u_2 \cos\rho_2 \sin\vartheta_1}{k_2^2}\right]_0 \left|\frac{\partial\Delta\omega}{\partial\vartheta_1}\right|_0^{-1}. \tag{12}$$

В приближении $\rho_i = 0$ частная производная легко находится. Направим ось z вдоль k_3, тогда

$$\frac{\partial\Delta\omega}{\partial\vartheta_1} = \frac{\partial\omega(|\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1|)}{\partial\vartheta_1} = u_2 \frac{\partial}{\partial\vartheta_1}\sqrt{k_1^2 + k_3^2 - 2k_1k_2\cos\vartheta_1} = \frac{u_2 k_1 k_3 \sin\vartheta_1}{k_2}. \tag{13}$$

Заметим, что на поверхности синхронизма $\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 = \boldsymbol{k}_3$ и

$$k_1 \sin\vartheta_1 = k_2 \sin\vartheta_2 = \frac{k_1 k_2}{k_3}\sin\theta_{12}. \tag{14}$$

Из (12) и (13) следует (при $\rho_i = 0$)

$$P_{\omega_1\varphi_1} = \frac{C_0}{k_1 k_2 k_3}, \quad \mathcal{P}_{\omega_1\varphi_1} = \frac{2\pi\hbar\omega_1^3\omega_2^2\chi^2\mathcal{P}_3 l}{c^4 n_3^2 \omega_3}. \tag{15}$$

В этом выражении от φ_1 зависит лишь свертка χ тензора квадратичной восприимчивости с ортами $\boldsymbol{e}_i$. Полная спектральная мощность, излучаемая на частоте ω_1 вдоль образующих конуса (с углом при вершине $\vartheta_1(\omega_1)$) и осью, параллельной $\boldsymbol{k}_3$, равна

$$\mathcal{P}_{\omega_1} = \int_0^{2\pi} d\varphi_1 \mathcal{P}_{\omega_1\varphi_1} = \frac{4\pi^2\hbar\omega_1^3\omega_2^2\overline{\chi^2}\mathcal{P}_3 l}{c^4 n_3^2 \omega_3}, \tag{16}$$

$$\overline{\chi^2} \equiv \frac{1}{2\pi}\int d\varphi \chi : \boldsymbol{e}_1\boldsymbol{e}_2\boldsymbol{e}_3.$$

Отметим, что геометрические и дисперсионные факторы не вошли в $\mathcal{P}_\omega$ (если не считать обычно слабой зависимости $\chi(\varphi_1)$).

Оценим полную мощность, теряемую накачкой на излучение пар. Пусть синхронизм выполняется во всем интервале $0 - \omega_3$

и χ не зависит от частоты, тогда из (16) следует

$$d\mathcal{P}_3 = -\int_0^{\omega_3} d\omega_1 \mathcal{P}_{\omega_1} = -\alpha_{\text{ПР}} l \mathcal{P}_3, \tag{17}$$

$$\alpha_{\text{ПР}} \equiv \frac{\pi^2 \hbar \omega_3^5 \overline{\chi^2}}{15 c^4 n_3^2} \sim 10^{-7}\ \text{см}^{-1}.$$

Последняя оценка, сделанная для $\chi = 4 \cdot 10^{-8}$ СГС и $\lambda_3 = 0{,}5$ мкм, показывает, что поправка к линейной восприимчивости пьезокристаллов на частоте накачки за счет спонтанного ПР и РП (и соответствующее изменение дисперсионных свойств) ничтожна.

Отношение производных (13) и (5) и, следовательно, отношение угловой (10) и спектральной (15) дифференциальных интенсивностей равно крутизне перестановочной характеристики:

$$\left| \frac{d\omega_1}{d\vartheta_1} \right| = \frac{\mathcal{P}_{\vartheta\varphi}}{\mathcal{P}_{\omega\varphi}} = \frac{k_3 \sin \vartheta_2}{| u_2^{-1} - u_1^{-1} \zeta |}. \tag{18}$$

Использованная выше линейная аппроксимация расстройки вблизи поверхности синхронизма:

$$\Delta\omega(\omega_1 \vartheta_1) = \left(1 - \frac{u_2}{u_1} \zeta\right)(\omega_1 - \omega_1^0) + u_2 k_3 \sin \vartheta_2 (\vartheta_1 - \vartheta_1^0) \tag{19}$$

неприменима в особых точках поверхности синхронизма. Так, при $u_1 = u_2 \zeta$ яркость согласно (10) стремится к бесконечности. Этот эффект хорошо виден в ниобате лития в виде яркого желтого канта, ограничивающего конус рассеяния в видимом диапазоне. Аналогично, около точки коллинеарного синхронизма $d\omega_1/d\vartheta_1 = 0$, и поэтому надо учитывать квадратичные слагаемые. Вторая производная $\Delta\omega$ по углу легко находится. Например, при $\vartheta_i \sim \rho_i \sim 0$

$$\Delta\omega(\omega_1 \vartheta_1) = \left(1 - \frac{u_2}{u_1}\right)(\omega_1 - \omega_1^0) + \frac{k_1 k_3}{2k_2} \vartheta_1^2. \tag{20}$$

Отсюда следует, что поверхность синхронизма $\Delta\omega = 0$ около оси z является параболоидом вращения [1]) (коллинеарный вырожденный случай с $u_1 = u_2$ будет рассмотрен в следующем параграфе).

Учет непараллельности групповой и фазовой скоростей. При учете анизотропии волновых векторов для необыкновенных волн частная производная функции волновой расстройки $\Delta\omega$ по направлению в (12) имеет более сложный (чем (13)) вид.

Найдем сперва приращение $d\boldsymbol{k}$ волнового вектора $\boldsymbol{k}(\omega, \Omega)$ при изменении его направления на $d\boldsymbol{k}_\perp \equiv k d\Omega$ при постоянной частоте, т. е. при

$$d\omega = \boldsymbol{u} \cdot d\boldsymbol{k} = \boldsymbol{u} \cdot d\boldsymbol{k}_\perp + \boldsymbol{u} \cdot d\boldsymbol{k}_\parallel = 0. \tag{21}$$

---

[1]) Если волна k_2 необыкновенная, то ось параболоида смещена на угол $\Delta\alpha_1 = (k_2/k_3)(\Delta n_2/n_2) \sin 2\alpha_3$ в сторону оптической оси кристалла ($\Delta n = n^e - n^o$ — двупреломление, α_3 — угол между k_3 и осью кристалла).

Из этой связи следует $d\boldsymbol{k}_{\parallel} = -\boldsymbol{k}\,(\boldsymbol{u}\cdot d\boldsymbol{k}_{\perp})/\boldsymbol{u}\cdot\boldsymbol{k}$, так что

$$d\boldsymbol{k}\,|_{\omega} = d\boldsymbol{k}_{\perp} + d\boldsymbol{k}_{\parallel} = \left(\boldsymbol{I} - \frac{\boldsymbol{k}\boldsymbol{u}}{\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{u}}\right)\cdot d\boldsymbol{k}_{\perp},$$

$$\left.\frac{\partial\boldsymbol{k}}{\partial\boldsymbol{k}_{\perp}}\right|_{\omega} = \boldsymbol{I} - \hat{\boldsymbol{k}}\hat{\boldsymbol{u}} \qquad \left(\hat{\boldsymbol{k}} \equiv \frac{\boldsymbol{k}}{k},\ \hat{\boldsymbol{u}} \equiv \frac{\boldsymbol{u}}{u}\right) \tag{22}$$

Последняя величина связывает два вектора и является тензором.

Теперь с помощью (22) находим двумерный вектор, являющийся производной функции $\Delta\omega\ (\omega_1\Omega_1)$ по направлению:

$$\boldsymbol{w} \equiv \frac{\partial\Delta\omega}{\partial\Omega_1} = \frac{\partial\omega\,(\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1)}{\partial\Omega_1} = -\,k_1\boldsymbol{u}_2\cdot\frac{\partial\boldsymbol{k}_1}{\partial\boldsymbol{k}_{1\perp}} = -\,k_1u_2\,(\hat{\boldsymbol{u}}_2 - \hat{\boldsymbol{u}}_1\zeta), \tag{23}$$

$$\zeta \equiv \frac{\hat{\boldsymbol{u}}_2\cdot\hat{\boldsymbol{k}}_1}{\hat{\boldsymbol{u}}_1\cdot\hat{\boldsymbol{k}}_2} = \frac{\cos\theta_{12}}{\cos\rho_1}\,.$$

Разделив (23) на производную по частоте (5) (или (6)), находим векторы, определяющие скорость изменения частоты сигнала при изменении направления наблюдения внутри (или снаружи) кристалла:

$$\frac{d\omega_1^0}{d\Omega_1} = -\,k_1\frac{\hat{\boldsymbol{u}}_2 - \hat{\boldsymbol{u}}_1\zeta}{u_2^{-1} - u_1^{-1}\zeta}\,, \tag{24}$$

$$\frac{d\omega_1^0}{d\Omega_1'} = -\,k_1\frac{\hat{\boldsymbol{u}}_2 - \hat{\boldsymbol{u}}_1\zeta}{u_2^{-1} - \hat{\boldsymbol{u}}_2\cdot\left(\dfrac{\partial\boldsymbol{k}_1}{\partial\omega_1}\right)_{\Omega_1'}}\,. \tag{25}$$

Чтобы найти интеграл в (12), остается определить проекцию $\boldsymbol{w}$ на направление интегрирования $\boldsymbol{\vartheta}$. В случае обыкновенных волн $\hat{\boldsymbol{u}} = \hat{\boldsymbol{k}}$, и если $\boldsymbol{\vartheta}$ лежит в плоскости треугольника синхронизма, то $w_{\vartheta} = \dfrac{\partial\Delta\omega}{\partial\vartheta_1} = k_1u_2\sin\theta_{12}$, что совпадает с (13).

§ 6.3. Форма спектральной линии ПР

Для описания экспериментов с детекторами, имеющими достаточно высокое частотное и угловое разрешение, замена $f\,(\Delta\boldsymbol{k})$ на $\delta\,(\Delta\boldsymbol{k})$ в (6.1.22) недопустима. Введем форм-фактор, описывающий спектр сигнала в общем случае:

$$g\,(\omega_1\Omega_1) = C_1\int d\boldsymbol{k}_2\delta\,(\Delta\omega)\,f\,(\Delta\boldsymbol{k}),$$
$$f\,(\Delta\boldsymbol{k}) \equiv \left|\int\limits_V d\boldsymbol{r}e^{i\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}}F\,(\boldsymbol{r})\right|^2, \tag{1}$$

где C_1 — нормировочная константа и введена дополнительно функция $F\,(\boldsymbol{r})$ для учета локальных изменений амплитуды взаимодействия (например, из-за неоднородности χ или амплитуды накачки E_3; можно также считать $V = \infty$ и учесть конечность образца через функцию F). Согласно (1) форм-фактор сигнала определяется трехмерным пространственным фурье-образом функции F.

Мы сперва будем считать накачку одномодовой и рассмотрим зависимость однофотонной функции распределения (1) от формы образца (обычно основную роль играет длина образца l вдоль луча накачки). Мы оценим частотную ширину спектра при наблюдении детектором с малой угловой апертурой и угловую ширину для случая узкополосного детектора и покажем, что эти ширины обратно поропорциональны l. Потом мы учтем влияние на частотно-угловую форму спектра многомодовости накачки. Совместное влияние l и дифракционной расходимости накачки будет рассмотрено на примере гауссовой ТЕМ-волны.

Длина когерентности. Чтобы рассмотреть «тонкую» частотно-угловую структуру спектра рассеянного поля, предположим сперва, что образец имеет размеры a, b, l, и устремим a и b к бесконечности. Позже выяснится, что такая одномерная модель плоскопараллельного слоя применима в случае $\operatorname{tg}\theta_2 \ll a/l$, т. е. когда холостые фотоны пересекают, в основном, грань ab (θ_2 — угол между групповой скоростью и направлением, перпендикулярным слою). Теперь вместо (6.1.27)

$$f(\Delta \boldsymbol{k}) = 4\pi^2 abl^2 \delta^{(2)}(\Delta \boldsymbol{k}_\perp) \operatorname{sinc}^2\left(\frac{\Delta k_z l}{2}\right). \tag{2}$$

В результате «поверхность» синхронизма приобретает конечную толщину, обратно пропорциональную l. При этом фотоны в парах связаны условиями сохранения поперечного импульса и энергии

$$\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 = 0, \quad (\boldsymbol{k}_1 + \boldsymbol{k}_2 - \boldsymbol{k}_3)_\perp = 0. \tag{3}$$

Вообще, это условие при заданном $\boldsymbol{k}_1$ и заданном типе синхронизма ($\nu_1\nu_2\nu_3$) определяет две холостые волны, отличающиеся знаком продольной компоненты:

$$\tilde{k}_2^{(\pm)} \equiv \left\{k_{3x} - k_{1x},\ k_{3y} - k_{1y},\ \pm\sqrt{\left(\frac{n_2\omega_2}{c}\right)^2 - (\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1)_\perp^2}\right\}, \tag{4}$$

однако обычно функция $\operatorname{sinc}^2 x$ в (2) при $kl \gg 1$ подавляет одну компоненту и делает связь (3) однозначной. Таким образом, в случае слоя холостые и сигнальные моды взаимодействуют только попарно, и задание $\boldsymbol{k}_1$, ν_1 однозначно определяет $\boldsymbol{k}_2$, ν_2 (при идеально монохроматической накачке с расходимостью, много меньшей λ_3/a).

Итак, чтобы учесть конечность одного из размеров образца, надо в (6.1.28) сделать замену

$$\delta(\Delta k_z) \to g(\Delta k_z) \equiv \frac{l}{2\pi} \operatorname{sinc}^2\left(\frac{\Delta k_z l}{2}\right). \tag{5}$$

Сделаем также обратную замену переменных интегрирования в (6.2.1):

$$d\omega_2 d\Omega_2 = \frac{u_2 \cos\rho_2}{k_2^2} d\boldsymbol{k}_2 = \frac{\cos\rho_2}{k_2^2 \cos\theta_2} d\boldsymbol{k}_{2\perp} d\omega_2 \tag{6}$$

(так как при $d\boldsymbol{k}_\perp = 0$ $d\omega = \boldsymbol{u}\cdot d\boldsymbol{k} = u_z dk_z$). После интегрирования вместо (6.2.2) остается

$$P_{\omega_1\Omega_1} = \frac{\widetilde{C}_0 \cos\tilde{\rho}_2}{\tilde{k}_2^2 \cos\tilde{\theta}_2}\, g\,(\Delta), \tag{7}$$

$$\Delta \equiv \Delta\widetilde{k_z} \equiv k_{1z} + \widetilde{k}_{2z} - k_{3z}, \tag{8}$$

где знак «$\sim$» над величинами, зависящими от холостого волнового вектора $\boldsymbol{k}_2$, означает, что они берутся в «сопряженной» (в смысле связи (3)) к $\boldsymbol{k}_3$ точке.

Перейдем к рассеиваемой кристаллом дифференциальной мощности света

$$\mathscr{P}_{\omega_1\Omega_1} = \frac{2\pi\hbar\omega_1^4\omega_2 n_1 \chi^2 \mathscr{P}_3 l g\,(\Delta)}{c^5 n_2 n_3 \cos^2\rho_1 \cos\tilde{\rho}_2 \cos^2\tilde{\rho}_3 \cos\tilde{\theta}_2}, \tag{9}$$

где $l \equiv V/A_3$ — размер образца вдоль $\boldsymbol{k}_3$. Если $\widetilde{\boldsymbol{u}}_2$ параллельно направлениям $\boldsymbol{a}$ или $\boldsymbol{b}$, то $\widetilde{\theta}_2 = \pi/2$. При этом (9) расходится, т. е. приближение (2) неприменимо, и в качестве «короткого» размера надо взять вместо l размер образца вдоль ближайшего к $\widetilde{\boldsymbol{u}}_2$ направления. Обозначим этот размер, деленный на $\cos\tilde{\theta}_2$ (или $\sin\tilde{\theta}_2$), через $l_{\text{ког}}$, так как он определяет длину когерентного взаимодействия волн. Теперь

$$g\,(0) = \frac{l_{\text{ког}} \cos\tilde{\theta}_2}{2\pi}. \tag{10}$$

Итак, согласно (9) и (10) интенсивность рассеяния на частотах и в направлениях точного синхронизма пропорциональна $l l_{\text{ког}}$, а ширина синхронизма обратно пропорциональна $l_{\text{ког}}$. Поэтому интегральные по частоте и (или) углу рассеяния интенсивности, найденные в § 6.2, пропорциональны длине образца вдоль волнового вектора накачки l, а от формы образца они не зависят (за исключением особых случаев — см. ниже).

***k*-спектроскопия.** Таким образом, частотно-угловая форма наблюдаемого при ПР сигнала определяется функцией

$$g\,(\Delta) = \frac{l_{\text{ког}} \cos\tilde{\theta}_2}{2\pi} \operatorname{sinc}^2\left(\frac{1}{2}\Delta l_{\text{ког}} \cos\tilde{\theta}_2\right), \tag{11}$$

которая соответствует следующему выбору нормировочной константы в (1) (при $l_{\text{ког}} = l/\cos\tilde{\theta}_2$): $C_1 = u_{2z}/8\pi^3 V$. Продольная волновая расстройка Δ зависит от $\boldsymbol{k}_1$ или (в сферических координатах) от частоты $\omega_1 = ck_1/n_1$ и направления наблюдения $\boldsymbol{\Omega}_1$. Резкая зависимость сигнала не только от частоты, но и от направления наблюдения является специфической для когерентных (параметрических) эффектов нелинейной оптики. Наблюдение *частотно-угловых спектров* $g\,(\boldsymbol{k}_1)$ дает информацию о макроскопических коллек-

тивных возбуждениях вещества, об их законе дисперсии и длинах пробега (или времени жизни), об эффектах ангармонизма.

Такой экспериментальный метод можно назвать «$\boldsymbol{k}$-спектроскопией». К нему относится и метод активной спектроскопии поляритонов, использующий вынужденные когерентные процессы в нецентросимметричных кристаллах (см., например, [105, 169—171].) Де-Мартини и Кофине [169] первые применили этот метод (названный ими «спектроскопия в $\boldsymbol{k}$-пространстве») для исследования поляритонов в арсениде галлия.

Уравнение $\Delta = 0$ определяет в неявном виде поверхность синхронизма $\omega_1 = \omega_1^0(\Omega_1)$ в $\boldsymbol{k}$-пространстве, на которой мощность рассеянного света $\mathcal{P}_{\omega\Omega}(\omega_1\Omega_1)$ максимальна. При удалении «точки наблюдения» $\{\omega_1\boldsymbol{\Omega}_1\}$ от этой поверхности $\mathcal{P}_{\omega\Omega}$ уменьшается по закону (11).

Чтобы найти явный вид этой функции, разложим Δ в трехмерный ряд Тейлора около точки $\{\omega_1^0\vartheta_1^0\varphi_1^0\}$, лежащей на поверхности синхронизма. Заметим, что при малых Δk частотная расстройка пропорциональна волновой:

$$\Delta\omega = \omega_{\nu_2}(\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1) - \omega_{\nu_2}(\widetilde{\boldsymbol{k}}_2) \approx \boldsymbol{u}_2^0\cdot(\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1 - \widetilde{\boldsymbol{k}}_2) \equiv -\boldsymbol{u}_2^0\cdot\widetilde{\Delta\boldsymbol{k}}, \quad (12)$$

где $\omega_{\nu_2}(\widetilde{\boldsymbol{k}}_2) \equiv \omega_3 - \omega_{\nu_1}(\boldsymbol{k}_1)$ и согласно (4) $\Delta\widetilde{\boldsymbol{k}}_\perp = 0$, поэтому

$$\Delta = -\frac{\Delta\omega}{u_2^0\cos\theta_2^0} \quad (13)$$

и мы можем использовать найденные в предыдущем разделе производные функции $\Delta\omega$.

Из (6.2.5), (6.2.23) и (13) следует

$$\Delta(\omega_1\boldsymbol{\Omega}_1) \approx \frac{1}{\cos\theta_2^0}\left[\left(\frac{\zeta}{u_1^0} - \frac{1}{u_2^0}\right)(\omega_1 - \omega_1^0) + k_1(\hat{\boldsymbol{u}}_2^0 - \hat{\boldsymbol{u}}_1^0\zeta)\cdot(\boldsymbol{\Omega}_1 - \boldsymbol{\Omega}_1^0)\right]. \quad (14)$$

Подстановка (14) в (11) дает наблюдаемую форму линии $g(\omega_1\boldsymbol{\Omega}_1)$ в явном виде. В случае сильного поглощения на холостых частотах (§ 6.6) вместо (11) надо взять лоренцеву функцию.

Эффективная ширина линии. Определим эффективную частотную ширину линии как отношение площади линии к ее максимальному значению:

$$\Delta\omega_{1\text{эф}} \equiv \frac{\int d\omega_1 g}{g(0)} = \frac{1}{g(0)}\left|\frac{\partial\Delta}{\partial\omega_1}\right|^{-1} = \frac{2\pi}{|u_2^{-1} - u_1^{-1}\zeta|\, l_{\text{ког}}} \quad (15)$$

(эффективная ширина функции $\operatorname{sinc}^2 x$ на 13% больше ширины ее главного максимума на уровне 1/2). Таким образом, при $\zeta \approx 1$ ширина линии в герцах равна обратному запаздыванию волн при пересечении образца (см. (1.1.44)).

Аналогично определим угловую ширину. Если пренебречь отличием $\cos\rho_i$ от 1, то при изменении направления наблюдения в плоскости k_1k_3 (см. (6.2.13))

$$\Delta\vartheta_{1\text{эф}} = \frac{2\pi\int d\vartheta\sin\vartheta g}{l_{\text{ког}}\cos\theta_2} = \Delta\omega_{1\text{эф}}\left|\frac{d\vartheta_1^0}{d\omega_1^0}\right| = \frac{2\pi}{k_3 l_{\text{ког}}\sin\vartheta_2}. \qquad (16)$$

Вырожденный случай. В случае коллинеарного и вырожденного синхронизма ($\vartheta_i = \rho_i = 0$, $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3/2$), которым обладают кристаллы, используемые для генерации второй гармоники, линейное приближение (14) неприменимо. Вблизи такого синхронизма

$$\Delta = k_1(\omega_1) + k_2(\omega_3 - \omega_1) - k_3,$$
$$\frac{\partial\Delta}{\partial\omega_1} = \frac{dk_1}{d\omega_1} - \frac{dk_2}{d\omega_2} \to 0, \qquad (17)$$
$$\frac{\partial^2\Delta}{\partial\omega_1^2} = \frac{d^2k_1}{d\omega_1^2} + \frac{d^2k_2}{d\omega_2^2} \to \frac{1}{c}\left(\omega_3\frac{d^2n}{d\omega^2} + 4\frac{dn}{d\omega}\right).$$

Таким образом, согласно (17) и (9) «в «удвоительном» кристалле происходит обратный распад фотонов второй гармоники со следующим частотным спектром в продольном направлении:

$$\mathcal{P}_{\omega\Omega}(\omega, 0) = \frac{\hbar\chi^2}{n_3}\left(\frac{\omega_3}{2c}\right)^5 \mathcal{P}_3 l^2 \operatorname{sinc}^2\left[\frac{l}{4}\frac{\partial^2\Delta}{\partial\omega_1^2}\left(\omega - \frac{\omega_3}{2}\right)^2\right]. \qquad (18)$$

Так как $\int dx \operatorname{sinc}^2 x^2 = 4\sqrt{\pi}/3$, то сила света и эффективная ширина спектра равны

$$\mathcal{P}_\Omega = \frac{\hbar\chi^2}{n_3}\left(\frac{\omega_3}{2c}\right)^5 \mathcal{P}_3 l^2 \Delta\omega_{\text{эф}}, \qquad \Delta\omega_{\text{эф}} = \frac{8}{3}\left[\frac{\pi c}{l(\omega_3 n'' + 4n')}\right]^{1/2}. \qquad (19)$$

Влияние спектра накачки на спектр сигнала. Мы полагали до сих пор накачку одномодовой, т. е. идеально монохроматической и плоской. При исследовании влияния неидеальности накачки на многофотонные процессы можно выделить два крайних случая, которые мы будем называть «однородным» и «неоднородным» уширением спектра.

В последнем случае множество мод возбуждается статистически независимо с вероятностью $g(\boldsymbol{k}_3) \sim \langle E_{k_3}^{(-)} E_{k_3}^{(+)}\rangle$, и форма спектральной линии определяется просто интегрированием полученных выше формул по $d\boldsymbol{k}_3$ с весом $g(\boldsymbol{k}_3)$. При этом интегральные характеристики рассеянного света $\mathcal{P}_\omega$, $\mathcal{P}_\Omega$ не изменятся, а увеличится лишь «толщина» поверхности синхронизма $\Delta\omega_1$ или $\Delta\vartheta_1$. Качественно влияние неоднородного частотного или углового уширения накачки можно оценить, варьируя условие синхронизма. Например, оценим уширение $\Delta\omega_1$ за счет немонохроматичности $\Delta\omega_3$ при коллинеарном синхронизме обыкновенных волн.

Из условия $k(\omega_3) - k(\omega_3 - \omega_1) - k(\omega_1) = 0$ находим производную частоты синхронизма по частоте накачки

$$\frac{d\omega_1}{d\omega_3} = \frac{u_3^{-1} - u_2^{-1}}{u_1^{-1} - u_2^{-1}}$$

и, следовательно,

$$\Delta\omega_1 = \left| \frac{1 - u_2/u_3}{1 - u_2/u_1} \right| \Delta\omega_3. \tag{20}$$

Последнюю формулу можно представить в виде (15), если под $l_{\text{ког}}$ понимать величину

$$l_{\text{ког}}(\Delta\omega_3) = \frac{2\pi}{|u_3^{-1} - u_2^{-1}|\,\Delta\omega_3}. \tag{21}$$

Аналогично согласно (3.4.41) расходимость необыкновенной волны накачки $\Delta\alpha_3$ в плоскости, содержащей оптическую ось кристалла, приводит к уширению (15) при

$$l_{\text{ког}}(\Delta\alpha_3) = \frac{\lambda_3}{|n_3^o - n_3^e| \sin(2\alpha_3)\,\Delta\alpha_3}, \tag{22}$$

где n_3^o и n_3^e — показатели преломления для обыкновенной и необыкновенной волн на частоте накачки, α_3 — угол между $\boldsymbol{k}_3$ и оптической осью кристалла.

Рассмотрим теперь однородное уширение накачки, при котором амплитуды мод не независимы. Однородная многомодовость накачки $\Delta k_{3\parallel} = \Delta\omega_3/u_3$ в направлении $\boldsymbol{k}_3$ вызывается ее нестационарностью; например, при использовании импульсного «одночастотного» лазера $\Delta\omega_3 \sim 1/\Delta t_3$, где Δt_3 — длительность импульса. Нестационарное рассеяние будет рассмотрено в § 6.5 одновременно с вынужденными эффектами.

Однородная «поперечная» многомодовость $\Delta \boldsymbol{k}_{3\perp} = k_3 \Delta\boldsymbol{\Omega}_3$ связана с дифракционной расходимостью, которая имеет порядок $\Delta\Omega_3 \sim \lambda_3^2/A_3$, где A_3 — сечение луча накачки. В эксперименте, как правило, поперечные размеры рассеивающей области a, b определяются как раз этим сечением, а не размером кристалла.

Гауссов луч накачки. Рассмотрим рассеяние такого «дифракционно-ограниченного» пучка, имеющего следующее распределение поля (так называемая гауссова или ТЕМ-волна, являющаяся решением параболического уравнения [1])):

$$E_3(\boldsymbol{r}t) = E_0 e^{ik_3 z - i\omega_3 t} F_3(\boldsymbol{r}) + \text{к. с.}, \tag{23}$$

$$F_3(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{1 + 2iz/b} \exp\left[-\frac{(x - \rho_3 z)^2 + y^2}{a^2(1 + 2iz/b)} \right], \tag{24}$$

[1]) Такие волны излучаются лазерами со сферическими зеркалами. Размеры фокальной области можно менять с помощью линз.

где a и $b \equiv k_3 a^2$ — радиус и длина фокальной области, ρ_3 — угол в плоскости xz между осью луча и осью z, отличный от нуля для необыкновенных волн накачки.

Мощность, переносимая волной (23), равна

$$\mathcal{P} = \frac{cn\cos^2\rho}{2\pi}|E_0|^2 A = \hbar\omega W, \tag{25}$$

где $A \equiv \pi a^2/2$ — эффективная площадь сечения луча. Сравнивая это выражение с (6.1.15) при $\rho_3 = \theta_3$, мы видим, что учет пространственной структуры поля накачки сводится к добавлению в формулах, полученных выше для одномодовой накачки, множителя $F_3(\boldsymbol{r})$ под знаком интеграла по $\boldsymbol{r}$. При этом интегрирование по x, y ведется уже в бесконечных пределах, т. е. теперь в (1) $F = F_3$:

$$f(\Delta\boldsymbol{k}) = \left|\int\limits_{-l/2}^{l/2} \frac{dz}{1+2iz/b} \iint\limits_{-\infty}^{\infty} dxdy \exp\left[-i\Delta\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} - \frac{(x-\rho_3 z)^2+y^2}{a^2(1+2iz/b)}\right]\right|^2. \tag{26}$$

Таким образом, спектр рассеянного поля $f(\Delta\boldsymbol{k})$ определяется фурье-образом распределения поля накачки $F_3(\boldsymbol{r})$ в образце. Воспользовавшись табличным интегралом

$$\int dx e^{ikx - x^2/a^2} = \sqrt{\pi} a e^{-(ka/2)^2}, \tag{27}$$

находим

$$f(\Delta\boldsymbol{k}) = 4A^2 \exp\left(-\frac{\Delta k_\perp^2 a^2}{2}\right)\left|\int\limits_{-l/2}^{l/2} dz e^{iz\bar{\Delta}}\right|^2, \tag{28}$$

$$\Delta k \equiv k_1 + k_2 - k_3, \quad \bar{\Delta} \equiv \Delta k_z + \rho_3 \Delta k_x + \frac{\Delta k_\perp^2}{2k_3}.$$

Спектр сигнала теперь вместо (11) равен

$$g = \frac{u_{2z}^0 A}{2\pi^3 l}\int d\boldsymbol{k}_2 \delta(\Delta\omega) \exp\left(-\frac{\Delta k_\perp^2 a^2}{2}\right)\left|\int\limits_{-l/2}^{l/2} dz e^{iz\bar{\Delta}}\right|^2, \tag{29}$$

где $\Delta\omega \equiv \omega(\boldsymbol{k}_1) + \omega(\boldsymbol{k}_2) - \omega_3$. Сделаем замену переменных интегрирования $\boldsymbol{k}_2 \equiv \tilde{\boldsymbol{k}}_2 + \boldsymbol{\varkappa}$, где $\tilde{\boldsymbol{k}}_2$ — «сопряженный» к $\boldsymbol{k}_1$ холостой вектор в смысле (4), тогда $\Delta\boldsymbol{k}_1 = \boldsymbol{\varkappa}_\perp$ и $\Delta k_z = \varkappa_z + \Delta$. При малых $\boldsymbol{\varkappa}$ $\Delta\omega = \omega(\boldsymbol{k}_2) - \omega(\tilde{\boldsymbol{k}}_2) = \boldsymbol{u}_2^0\cdot\boldsymbol{\varkappa}$. Следовательно,

$$\delta(\Delta\omega) = \delta(\varkappa_z - \varkappa_z^0)/u_{2z}^0, \tag{30}$$

$$\varkappa_z^0 \equiv -\varkappa_x \operatorname{tg}\theta_{2x} - \varkappa_y \operatorname{tg}\theta_{2y}, \quad \operatorname{tg}\theta_{x,y} \equiv \frac{u_{x,y}}{u}.$$

Теперь

$$g = \frac{A}{2\pi^3 l} \iint\limits_{-l/2}^{l/2} dz dz' e^{i(z-z')\Delta} \int d\varkappa_\perp \times$$

$$\times \exp\left[i(z-z')\left(\varkappa_z^0 + \rho_3 \varkappa_x + \frac{\varkappa_\perp^2}{2k_3}\right) - \frac{a^2 \varkappa_\perp^2}{2} \right]. \tag{31}$$

Используя еще раз (27), получаем ($z_1 \equiv z - z'$)

$$\int d\varkappa_\perp \ldots = \frac{2\pi}{a^2(1+iz_1/b)} \exp\left[-\frac{z_1^2}{l_2^2(1+iz_1/b)} \right], \tag{32}$$

$$l_2^2 \equiv \frac{2a^2}{(\operatorname{tg}\theta_{2x} - \rho_3)^2 + \operatorname{tg}^2\theta_{2y}} \approx \frac{2a^2}{\operatorname{tg}^2\theta_2}.$$

Далее,

$$\iint\limits_{-l/2}^{-l/2} dz dz' f(iz_1) = 2\operatorname{Re}\int\limits_0^l dz_1 (l - z_1) f(iz_1), \tag{33}$$

поэтому

$$g(\Delta) = \frac{1}{\pi l} \operatorname{Re}\int\limits_0^l \frac{dz(l-z)}{1+iz/b} \exp\left[-iz\Delta - \frac{z^2}{l_2^2(1+iz/b)} \right]. \tag{34}$$

Эта функция с учетом зависимости $\Delta(\omega_1\Omega_1)$ (см. (14)) определяет форму спектра в случае гауссовой накачки. Как легко убедиться, $\int d\Delta\, g(\Delta) = 1$, и поэтому эффективная ширина линии (15) определяется максимальным значением $g(0)$:

$$\Delta\omega_{1\text{эф}} = \frac{\cos\theta_2^0}{g(0)\,|u_2^{-1} - \zeta u_1^{-1}|}, \tag{35}$$

что переходит в (15), если полагать $l_{\text{ког}} = 2\pi g(0)/\cos\theta_2^0$.

В случае «мягкой» фокусировки, когда длина фокальной области много больше длины кристалла ($b \gg l$),

$$g(\Delta) = \frac{1}{\pi l}\int\limits_0^l dz (l-z)\cos(z\Delta)\, e^{-z^2/l_2^2}, \tag{36}$$

$$g(0) = \frac{l}{2\pi}\Psi(\lambda) = \begin{cases} l/2\pi & (\lambda \ll 1), \\ l_2/2\sqrt{\pi} & (\lambda \gg 1), \end{cases} \tag{37}$$

$$\lambda \equiv \frac{l}{l_2} \approx \frac{l\operatorname{tg}\theta_2^0}{a\sqrt{2}},$$

где функция Ψ определена формулой (4.7.16). Таким образом, при больших углах рассеяния холостой волны и мягкой фокусировке ($k_3 a^2 \gg l \gg a/\operatorname{tg}\theta_2$)

$$l_{\text{ког}} = \sqrt{2\pi}\, a/\sin\theta_2^0, \tag{38}$$

т. е. длина когерентного взаимодействия имеет порядок размера луча накачки вдоль направления распространения холостой волны.

§ 6.4. Статистика поля и метрологические применения ПР

До сих пор мы интересовались энергетическими характеристиками рассеянного света — его интенсивностью (яркостью). С помощью «золотого правила» мы пока определили лишь диагональные элементы матрицы вторых моментов $\langle a_k^+ a_k \rangle$. Полная статистическая информация задается всей матрицей вторых моментов $\langle a_k^+ a_{k'} \rangle$, $\langle a_k a_{k'} \rangle$, а также высшими моментами или χ-функцией. Знание недиагональных вторых и высших моментов необходимо для описания интерференционных экспериментов и измерений статистики фотоотсчетов (с одним или несколькими детекторами).

В принципе все моменты выходного поля можно выразить через моменты входного поля с помощью общей формулы (5.2.7), в которой для описания спонтанного рассеяния надо все входные моды, кроме мод накачки, полагать в основном (вакуумном) состоянии. Однако условие синхронизма выделяет трехфотонные элементарные процессы, описываемые квадратичной восприимчивостью, и позволяет пренебречь вкладом нелинейных восприимчивостей высших порядков. Это обстоятельство значительно упрощает теорию, так как позволяет исходить из эффективного гамильтониана взаимодействия (6.1.12).

Дальнейшее упрощение достигается предположением о классичности поля накачки (при этом часть мод описывается квантовой теорией, а часть — классической) и пренебрежением изменения амплитуды и, вообще, статистики поля накачки в результате процесса рассеяния (приближение *заданной накачки*).

В настоящем разделе мы определим статистику поля ПР в приближении эффективного гамильтониана в первых порядках по амплитуде накачки на входе (пока не прибегая к приближению классичности поля накачки). Решения уравнений Гейзенберга при $t - t_0 = \infty$ определяют операторы выходного поля через операторы входного и, следовательно, выходные моменты через входные. Мы получим ниже простые выражения для вторых и четвертых моментов, из которых в случае спонтанного ПР (когда на входе возбуждены лишь моды накачки) следует характерное для двухфотонных полей отсутствие случайных совпадений. Отметим, что при когерентной накачке с определенной фазой в поле рассеяния коррелируют не только числа фотонов, но и амплитуды сигнальных и холостых мод: $\langle a_1 a_2 \rangle \neq 0$. Более подробно будет рассчитана скорость совпадений и соответствующая область когерентности для случая гауссовой накачки (см. также [95]). Кроме того, в настоящем параграфе будут рассмотрены возможные фото-

метрические применения ПР: для абсолютных (не требующих калибровки) измерений яркости света и квантового выхода ФЭУ [99].

Уравнения Гейзенберга для операторов поля. Согласно (6.1.12)

$$\mathcal{V} = i\hbar \sum_{k_1k_2k_3} w^*_{123} a_1^+ a_2^+ a_3 + \text{э. с.}, \tag{1}$$

$$w_{123} \equiv \hbar^{-1} c_1 c_2 c_3 \chi_{123} \int_V d\boldsymbol{r}\, e^{i\Delta \boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}},$$

$$\chi_{123} = \chi_{213} = \chi_{231} = \ldots \equiv \chi(\overline{\omega}_1\overline{\omega}_2\omega_3) \vdots e_1 e_2 e_3,$$

где V — объем нелинейной области. Предполагается, что накачка квазимонохроматическая и группы мод сигнала, накачки и холостого поля не перекрываются ($0 < \omega_2 < \omega_3/2 < \omega_1 < \omega_3$). Условие синхронизма и симметрия кристалла обычно выделяют эффективно взаимодействующие типы поляризации, и поэтому индексы поляризации будут опускаться.

Из (1), (2.1.13) и правил коммутации (3.2.9) находим уравнения Гейзенберга:

$$\begin{aligned} \frac{da_1}{dt} &= -i\omega_1 a_1 + \sum_{23} w^*_{123} a_2^+ a_3, \\ \frac{da_2}{dt} &= -i\omega_2 a_2 + \sum_{13} w^*_{123} a_1^+ a_3. \end{aligned} \tag{2}$$

Для медленно-меняющихся амплитуд $a_k^{\text{м}}(t) \equiv a_k(t) \exp(i\omega_k t)$ уравнения имеют вид

$$\begin{aligned} \frac{da_1^{\text{м}}}{dt} &= \sum_{23} w^*_{123}(t)\, a_2^{\text{м}+} a_3^{\text{м}}, \\ \frac{da_2^{\text{м}}}{dt} &= \sum_{13} w^*_{123}(t)\, a_1^{\text{м}+} a_3^{\text{м}}, \end{aligned} \tag{3}$$

$$w_{123}(t) \equiv w_{123} \exp i(\omega_3 - \omega_2 - \omega_1).$$

В первом порядке теории возмущения по коэффициентам связи w находим амплитуды мод выходного поля:

$$\begin{aligned} a_1' &= a_1 + \sum_{23} u^*_{123} a_2^+ a_3, \\ a_2' &= a_2 + \sum_{13} u^*_{123} a_1^+ a_3, \end{aligned} \tag{4}$$

где

$$\begin{aligned} u_{123} &\equiv 2\pi\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)\, w_{123}, \\ a_k' &\equiv a_k^{\text{м}}(\infty), \quad a_k \equiv a_k^{\text{м}}(-\infty). \end{aligned} \tag{5}$$

Решения (4) позволяют выразить выходные моменты через входные и квадратичную матрицу рассеяния (МР). Так, если на входе моды сигнала, накачки и холостого поля взаимно независимы, то с помощью (4) находим

$$N'_{11'} = N_{11'} + \sum u_{123} u^*_{1'2'3'} (N_{2'2} + \delta_{2'2}) N_{33'}, \tag{6}$$

$$N'_{22'} = N_{22'} + \sum u_{123} u^*_{1'2'3'} (N_{1'1} + \delta_{1'1}) N_{33'}, \tag{7}$$

$$K'_{12} = z^*_1 z^*_2 + \sum (u^*_{1'23} N_{11'} + u_{12'3} N_{22'} + u_{123}) z^*_3, \tag{8}$$

$$N_{nm} \equiv \langle a^+_n a_m \rangle = N^+_{nm}, \quad K_{nm} \equiv \langle a^+_n a^+_m \rangle = K_{mn},$$

$$z_n \equiv \langle a_n \rangle.$$

Заметим, что эрмитовость гамильтониана (1) обеспечивает сохранение коммутационных соотношений для преобразованных операторов a', и поэтому $\langle a_2 a_1 \rangle' = \langle a_1 a_2 \rangle'$. По предположению мы рассматриваем лишь моды, принадлежащие окнам прозрачности кристалла, поэтому статистика выходного поля не зависит непосредственно [1]) от температуры вещества и чисто спонтанное излучение отсутствует (ср. § 5.3).

Спонтанное рассеяние. Пусть на входе сигнального и холостого излучения нет, тогда вторые моменты на выходе принимают вид

$$N'_{11'} = \sum u_{123} u^*_{1'23'} N_{33'}, \tag{9}$$

$$N'_{22'} = \sum u_{123} u^*_{12'3'} N_{33'}, \tag{10}$$

$$K'_{12} = \sum_3 u_{123} z^*_3 \equiv v_{12}. \tag{11}$$

Заметим, что ПР на частоте сигнала, описываемое выражением (9) обусловлено отличием от нуля в вакуумном состоянии антинормально-упорядоченного момента $\langle 0 \mid a_2 a^+_2 \mid 0 \rangle = 1$, т. е. тем, что электрическое и магнитное поля вакуума не имеют определенного значения («флуктуации вакуума»). Согласно (11), если моды накачки находятся в когерентном состоянии с определенной фазой, то имеется корреляция между амплитудами сигнальных и холостых мод, причем момент $\langle a_1 a_2 \rangle$ пропорционален амплитуде накачки, а не ее квадрату, как обычные моменты (9) и (10). Фурье-образ функции v_{12} определяет пространственную функцию взаимной когерентности сигнального и холостого полей.

Из (4) следует, что четвертый момент поля в низшем приближении квадратичен по амплитуде накачки:

$$\langle a^+_1 a_{1'} a^+_2 a_{2'} \rangle' = \sum_{33'} u_{123} u^*_{1'2'3'} N_{33'}. \tag{12}$$

В то же время момент вида $\langle a^+_1 a_1 a^+_1 a_1 \rangle$ пропорционален четвертой степени амплитуды накачки, и в рассматриваемом здесь при-

[1]) Однако восприимчивости вещества и, следовательно, МР могут зависеть от температуры через населенности уровней.

ближении его следует считать равным нулю (это означает, что мы пренебрегаем вероятностью появления двух фотонов в одной моде).

В случае когерентного состояния поля накачки его второй момент факторизуется:

$$N_{33'} = \langle a_3^+ \rangle \langle a_{3'} \rangle \equiv z_3^* z_{3'}, \tag{13}$$

что приводит к факторизации четвертого момента поля рассеяния:

$$\langle a_1^+ a_{1'} a_2^+ a_{2'} \rangle = v_{12} v_{1'2'}^*. \tag{14}$$

При этом (9) и (10) принимают вид

$$N'_{11'} = \sum_2 v_{12} v_{1'2}^*, \quad N'_{22'} = \sum_1 v_{12} v_{12'}^*. \tag{15}$$

Диагональные моменты согласно (9) — (12) равны:

$$N'_1 = \sum_{233'} u_{123} u_{123'}^* N_{33'}, \tag{16}$$

$$N'_2 = \sum_{133'} u_{123} u_{123'}^* N_{33'}, \tag{17}$$

$$\langle \widehat{N}_1 \widehat{N}_2 \rangle = \sum_{33'} u_{123} u_{123'}^* N_{33'}, \tag{18}$$

$$\sum_1 N'_1 = \sum_2 N'_2 = \sum_{12} \langle \widehat{N}_1 \widehat{N}_2 \rangle, \tag{19}$$

так что при когерентной накачке

$$N'_1 = \sum_2 |v_{12}|^2 = \sum_2 \langle \widehat{N}_1 \widehat{N}_2 \rangle', \tag{20}$$

$$N'_2 = \sum_1 |v_{12}|^2 = \sum_1 \langle \widehat{N}_1 \widehat{N}_2 \rangle', \tag{21}$$

$$\langle \widehat{N}_1 \widehat{N}_2 \rangle' = |v_{12}|^2 \gg N'_1 N'_2. \tag{22}$$

Последнее неравенство, которое имеет место и в случае некогерентной накачки, характерно для статистики бифотонных полей, в то время как для «обычных» полей $\langle \widehat{N}_1 \widehat{N}_2 \rangle \leqslant 2N_1 N_2$ (гл. 4).

Эталонный генератор фотонов. Рассмотрим эксперимент по счету фотонов с помощью двух ФЭУ и схемы совпадений. Пусть перед ФЭУ установлены частотные фильтры, так что один канал реагирует только на сигнальное поле, а второй — на холостое. В §§ 4.6, 4.7 было показано, что вероятность появления импульсов на выходах отдельных каналов и схемы совпадений можно представить в следующем виде:

$$P_{\text{сигн}} = \sum_{k_1} \eta_1 N'_1, \tag{23}$$

$$P_{\text{хол}} = \sum_{k_2} \eta_2 N'_2, \tag{24}$$

$$P_{\text{совп}} = \sum_{k_1 k_2} \eta_1 \eta_2 \langle \widehat{N}_1 \widehat{N}_2 \rangle', \tag{25}$$

где η_k — энергетический коэффициент передачи всего тракта для моды k (включая поглощение, рассеяние и отражение внутри кристалла и в фильтрах, а также квантовый выход ФЭУ).

Из (16), (18) следует, что в случае бифотонного поля

$$P_{\text{сигн}} = \sum \eta_1 u_{123} u^*_{123'} N_{33'}, \tag{26}$$

$$P_{\text{совп}} = \sum \eta_1 \eta_2 u_{123} u^*_{123'} N_{33'}. \tag{27}$$

Пусть теперь холостой ФЭУ регистрирует фотоны в больших спектральном и угловом интервалах, заведомо охватывающих все моды, сопряженные условием синхронизма с сигнальным ФЭУ. Если, кроме того, в этих интервалах

$$\eta_2 \approx \text{const} \equiv \eta_{\text{хол}}, \tag{28}$$

то из (26) и (27) следует

$$P_{\text{совп}} = \eta_{\text{хол}} P_{\text{сигн}}. \tag{29}$$

Это соотношение было экспериментально подтверждено в [60], и оно наглядно объясняется одновременностью вылета сигнальных и холостых фотонов. При этом ясно, что если сигнальный отсчет не сопровождается импульсом схемы совпадений, то это вызвано потерей холостого фотона за счет неидеальности тракта ($\eta_{\text{хол}} < 1$). Итак, при большом времени измерения отношение числа одновременных отсчетов в обоих каналах к числу сигнальных отсчетов стремится к суммарному коэффициенту передачи холостого канала, и если потери в оптических элементах тракта малы (или известны из независимых измерений), то такой эксперимент позволяет проводить абсолютные измерения квантового выхода холостого ФЭУ (разделение каналов на сигнальный и холостой, конечно, условно — измеряется эффективность ФЭУ, охватывающего большее число мод).

Если, далее, вместо холостого ФЭУ поставить оптический затвор, который открывается только при появлении импульса в сигнальном канале, то мы получим уникальное устройство, излучающее известное число фотонов в известные моменты времени.

В принципе для создания такого эталонного генератора фотонов или абсолютного измерения квантового выхода ФЭУ можно использовать также эффект излучения бифотонов при четырехфотонном ПР или двухфотонном распаде (§ 5.4). В последнем случае, однако, направления вылета фотонов в парах независимы, и холостой канал должен иметь угловую апертуру, равную 4π радиан.

Скорость совпадений при гауссовой накачке. Рассмотрим более подробно зависимость вероятности совпадения при ПР от параметров экспериментального устройства в случае монохроматического когерентного луча накачки с гауссовским профилем и ди-

фракционной расходимостью:

$$\langle E(\boldsymbol{r}t)\rangle = E_L e^{ik_L z - i\omega_L t} F(\boldsymbol{r}) + \text{к. с.}, \tag{30}$$

где функция $F(\boldsymbol{r})$, описывающая структуру поля накачки, определена в (6.3.24). Найдем сперва k-спектр поля (30). При пренебрежении углом анизотропии ($\rho_L = 0$) из (3.1.12) и (3.2.29) следует

$$ic_k z_k = \langle E_k^{(+)}\rangle = \frac{vE_L}{8\pi^3}\int d\boldsymbol{r}\, e^{ik_L z - i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} F(\boldsymbol{r}) = \\ = \frac{vE_L A}{2\pi^2} e^{-q^2a^2/4}\delta\left(k_L - k_z - \frac{q^2}{2k_L}\right), \tag{31}$$

где $A \equiv \pi a^2/2$ — эффективная площадь сечения луча накачки в фокусе ($z = 0$) и $\boldsymbol{q} \equiv \boldsymbol{k}_\perp$ — проекция $\boldsymbol{k}$ на поперечную к оси пучка плоскость.

Подставив (5), (31) в (11) и переходя от суммирования по модам к интегрированию согласно (3.2.31), получим

$$v_{12} = 2\pi\delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)\, w(\omega_1 \boldsymbol{q}_1 \boldsymbol{q}_2), \tag{32}$$

где

$$w \equiv \frac{2i}{\hbar}\chi c_1 \tilde{c}_2 E_L V \exp\left(-\frac{a^2 q_{12}^2}{4}\right)\operatorname{sinc}\left(\frac{\overline{\Delta} l}{2}\right),$$

$$\overline{\Delta} \equiv -k_L + k_{1z} + \tilde{k}_{2z} + q_{12}^2/2k_L,$$

$$k_{1z} \equiv \sqrt{n^2(\omega_1 q_1)\,\omega_1^2/c^2 - q_1^2},$$

$$\tilde{k}_{2z} \equiv \sqrt{n^2(\tilde{\omega}_1 q_2)\,\tilde{\omega}_1^2/c^2 - q_2^2},$$

$$\tilde{\omega}_1 \equiv \omega_L - \omega_1, \quad q_{12} \equiv |\boldsymbol{q}_1 + \boldsymbol{q}_2|, \quad V = Al$$

и l — толщина нелинейного слоя. Функция v_{12} согласно (11), (14) и (15) определяет вторые и четвертые моменты поля ПР, т. е. функции корреляции в $\boldsymbol{k}$-пространстве. Пространственно-временные функции корреляции (или функции когерентности) равны фурье-образам этих моментов.

Найдем с помощью (32) скорость счета импульсов в сигнальном канале. Из (4.6.32) и (15) следует (при $d\boldsymbol{k} \approx \omega^2 d\omega d\Omega/c^3$)

$$W_{\text{сигн}} = \frac{2\pi}{c^5 v^2}\int_{4\pi} d\Omega_1\, d\Omega_2 \int d\omega_1 \eta(\omega_1 \boldsymbol{\Omega}_1)\,\omega_1^2 \tilde{\omega}_1^2\, |w(\omega_1 \boldsymbol{q}_1 \boldsymbol{q}_2)|^2, \tag{33}$$

где $\eta = |\xi|^2$ — энергетический коэффициент передачи сигнального канала с учетом квантового выхода ФЭУ. Нетрудно прове-

рить, что (33) эквивалентно (6.1.14) при замене

$$c_3^2 N_3 \left| \int\limits_V d\boldsymbol{r}\, e^{i\Delta \boldsymbol{k}\cdot \boldsymbol{r}} \right|^2 \to \left| E_L \int\limits_{-\infty}^{\infty} dx\, dy \int\limits_{-l/2}^{l/2} dz\, e^{i\Delta \boldsymbol{k}\cdot \boldsymbol{r}} F(\boldsymbol{r}) \right|^2 \tag{34}$$

(это оправдывает, кстати, формулу (6.3.1)). Зависимость $W_{\text{сигн}}$ от параметров фильтра η была рассмотрена в конце § 6.3.

Вероятность появления импульса на выходе схемы совпадений определяется подстановкой (14) и (32) в (4.7.2):

$$P_{\text{совп}} = \frac{1}{c^6 v^2} \int d\boldsymbol{\Omega}_1\, d\boldsymbol{\Omega}_2 \int\limits_0^T dt_1 \int\limits_{\Delta t}^{\Delta t + T} dt_2 \times$$

$$\times \left| \int d\omega_1 \omega_1 \widetilde{\omega}_1 \xi_1(\omega_1 \boldsymbol{\Omega}_1)\, \xi_2(\widetilde{\omega}_1 \boldsymbol{\Omega}_2)\, w^*(\omega_1 \boldsymbol{q}_1 \boldsymbol{q}_2)\, e^{i\omega_1(\bar{t}_2 - \bar{t}_1)} \right|^2. \tag{35}$$

Пусть задержки нет: $\bar{t}_i = t_i$, $\Delta t = 0$. Интеграл по частоте в (35) является по существу фурье-образом взаимной спектральной функции сигнального и холостого полей, т. е. временной функцией корреляции с аргументом $t_2 - t_1$ в точках, лежащих на поверхности фотокатодов с координатами $\boldsymbol{\Omega}_1 r$ и $\boldsymbol{\Omega}_2 r$. Очевидно, что эта функция имеет заметную величину лишь при $|t_2 - t_1| \lesssim \Delta\omega^{-1}$, где $\Delta\omega$ — ширина полосы синхронизма (6.3.35) или полосы оптических фильтров (меньшая из них). Разрешающее время схемы совпадений T практически много больше $\Delta\omega^{-1}$, и поэтому можно сделать замену

$$\left| \int\limits_0^T dt\, e^{i\omega t} \right|^2 \to 2\pi\delta(\omega)\, T. \tag{36}$$

При этом вероятность совпадения пропорциональна T:

$$W_{\text{совп}} \equiv \frac{P_{\text{совп}}}{T} = \frac{2\pi}{c^6 v^2} \int d\boldsymbol{\Omega}_1\, d\boldsymbol{\Omega}_2\, d\omega_1 \omega_1^2 \widetilde{\omega}_1^2 \eta_1(\omega_1 \boldsymbol{\Omega}_1)\, \eta_2(\widetilde{\omega}_1 \boldsymbol{\Omega}_2)\, |w(\omega_1 \boldsymbol{q}_1 \boldsymbol{q}_2)|^2 \tag{37}$$

(при обратном неравенстве $\Delta\omega T \ll 1$ было бы $P_{\text{совп}} \sim T^2$). Сравнивая это выражение с (33) (при условии (28)) снова получаем (29). Из (32) следует, что функция w отлична от нуля, лишь если поперечный синхронизм выполняется с дифракционной точностью: $|\boldsymbol{q}_1 + \boldsymbol{q}_2| \lesssim 1/a$. Кроме того, должен выполняться и продольный синхронизм: $|\bar{\Delta}|\, l \lesssim 1$. Эти условия определяют область взаимной когерентности сигнального и холостого полей, т. е. интервалы направлений $\boldsymbol{\Omega}_i$ и частоты ω_1, которые дают заметный вклад в в $W_{\text{совп}}$ (ср. скорость совпадений и область когерентности для обычных световых полей, рассмотренные в §§ 4.6, 4.7).

Абсолютный радиометр. Рассмотрим теперь скорость счета импульсов в сигнальном канале при наличии на входе, кроме поля накачки (с произвольной статистикой), еще δ-коррелированного излучения на холостых частотах: $N_{11'} = 0$, $N_{22'} = N_2\delta_{22'}$. При этом согласно (6) и (23)

$$P_{\text{сигн}} = \sum_{12} \eta_1 \mathcal{F}_{12}(N_2 + 1) \equiv \sum_{2} \mathcal{F}_2 (N_2 + 1), \tag{38}$$

где

$$\mathcal{F}_{12} \equiv \sum_{33'} u_{123} u^*_{123'} N_{33'} \tag{39}$$

и $\mathcal{F}_2 \equiv \sum_1 \eta_1 F_{12}$ — аппаратная функция всего устройства, определяющая эффективность преобразования холостых фотонов в сигнальные импульсы. Будем сравнивать средние скорости счета на выходе при включенном и выключенном холостом излучении на входе. Из (38) следует, что относительное приращение скорости счета при добавлении на входе реальных фотонов равно

$$m \equiv \frac{P_{\text{сигн}}(N_2)}{P_{\text{сигн}}(0)} - 1 = \frac{\sum_2 \mathcal{F}_2 N_2}{\sum_2 \mathcal{F}_2}. \tag{40}$$

Пусть теперь падающее холостое поле представляет «белый шум» в интервалах частот и направлений, удовлетворяющих условию синхронизма, для которых $\mathcal{F}_2$ имеет заметную величину:

$$N_2 \approx \text{const} \equiv N_{\text{хол}}. \tag{41}$$

При этом (40) примет вид $m = N_{\text{хол}}$.

Итак, отношение сигнал/шум на выходе параметрического преобразователя частоты независимо от интенсивности накачки и других параметров преобразователя равняется числу фотонов на моду в падающем излучении. Это число, в свою очередь, связано со спектральной яркостью и эффективной температурой падающего излучения соотношениями (1.1.13) и (1.1.26), так что

$$S_{\omega\Omega} = S^{\text{вак}}_{\omega\Omega} m, \quad T_{\text{эф}} = \frac{C_2}{\lambda_{\text{хол}} \ln(1 + m^{-1})}, \tag{42}$$

где $\lambda_{\text{хол}}$ — центральная длина волны в полосе преобразования. Эта полоса, определяющая частотное разрешение рассматриваемого «фотонометра», может быть сделана достаточно малой при ограничении угловой апертуры сигнального ФЭУ и малой расходимости накачки (§ 6.3). Аналогично, угловое разрешение фотонометра определяется при отсутствии дополнительных апертур угловой шириной синхронизма или расходимостью накачки.

Фотонометр легко перестраивается изменением геометрии или температуры кристалла согласно условию синхронизма (см. рис. 2). Для измерения яркости видимого света надо применять ультрафиолетовую накачку или использовать четырехфотонное ПР. Оптимальный уровень измеряемой яркости соответствует, очевидно, $m \sim 1$. Таким образом, фотонометр может работать в диапазоне высоких яркостных температур и может служить для абсолютной калибровки многомодовых лазеров и плазменных источников света.

Основное преимущество такого параметрического радиометра перед существующими тепловыми эталонами спектральной яркости — отсутствие ошибок в определении температуры и поглощательной способности. В принципе, такое устройство может быть положено в основу первичного эталона температуры. С другой стороны, один *фотон на моду* является естественной единицей спектральной яркости излучения, и можно ее выражать непосредственно числом N, показывающим, во сколько раз $S_{\omega\Omega}$ превышает «яркость вакуума».

Ошибки измерения. Точность параметрического фотонометра будет зависеть от ряда факторов. Прежде всего, на индикатор может действовать фоновое изотропное излучение из-за фотолюминесценции кристалла, неидеальной фильтрации накачки, некогерентного параметрического и рамановского рассеяния и т. д. Однако определить уровень этого изотропного неполяризованного фона можно достаточно точно благодаря острой направленности (при малом интервале измеряемых длин волн) и полной поляризации полезного сигнала. Влияние неидеальной прозрачности кристалла также поддается достаточно точному учету (§ 6.6).

Важным источником систематической ошибки может служить невыполнение условия (41). В принципе кристалл должен быть полностью «погружен» в измеряемое изотропное черное излучение. Однако при остронаправленной накачке, малой апертуре ФЭУ, плоскопараллельной форме (с $l \sim 1$ см) и хорошем оптическом качестве кристалла фотонометр «видит» лишь узкий конус лучей одной поляризации вдоль направления $\boldsymbol{k}_2 = \boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}_1$ (исправленного на преломление), а также (за счет отражения на гранях) вдоль направления $\boldsymbol{k}_2' \equiv \{k_{2x}, k_{2y}, -k_{2z}\}$, где ось z перпендикулярна входной и выходной граням. Этот зеркальный лепесток диаграммы направленности можно уменьшить просветлением. Оставшуюся часть нетрудно учесть дополнительным измерением m' при перемещении калибруемого источника в зеркальное относительно кристалла положение. Действительно, с учетом отражений

$$\begin{aligned} P(0) &= \mathcal{F} + \mathcal{F}', \\ P(N_2) &= \mathcal{F}(N_2 + 1) + \mathcal{F}', \\ P'(N_2) &= \mathcal{F} + \mathcal{F}'(N_2 + 1), \end{aligned} \tag{43}$$

где $\mathcal{F}'$ — «зеркальный» коэффициент преобразования, $P(0)$ — показания индикатора при выключенном источнике, $P(N_2)$ — при нормальном его расположении «слева» от кристалла, $P'(N_2)$ — при зеркальном расположении источника. Решение (43) дает

$$N_2 = m + m' = \frac{P(N_2) + P'(N_2)}{P(0)} - 2. \tag{44}$$

По-видимому, лучше ориентировать кристалл перпендикулярно $\boldsymbol{k}_2$.

§ 6.5. Параметрическая сверхлюминесценция

До сих пор мы ограничивались первыми порядками теории возмущения по параметру связи w (или по нелинейной восприимчивости χ). В случае интенсивного падающего света следует учитывать высшие приближения, что делает задачу весьма сложной (даже в приближении эффективного гамильтониана, учитывающего лишь трехволновые взаимодействия). Картина преобразованного поля будет резко зависеть от статистики падающего излучения, и мы для простоты рассмотрим параметрическую сверхлюминесценцию (или вынужденное параметрическое рассеяние — ВПР) лишь в приближении классической заданной накачки. При этом преобразование поля веществом становится линейным относительно амплитуд сигнальных и холостых мод. Конечно, такая линеаризация задачи допустима лишь при условии, что эти амплитуды остаются много меньшими, чем амплитуда поля накачки.

Итак, полагаем величины a_3 в эффективном гамильтониане возмущения (6.4.1) детерминированными числами (умноженными на $\exp(-i\omega_3 t)$). В результате гамильтониан поля становится билинейным по операторам a_1, a_2 с зависящими от времени коэффициентами. Если нелинейные восприимчивости χ в (6.4.1) действительны, то такой гамильтониан соответствует веществу с модулируемой во времени и пространстве действительной диэлектрической проницаемостью.

Мы сперва феноменологически введем матрицу рассеяния (МР) для случая монохроматической накачки и рассмотрим ограничения, накладываемые на МР условиями унитарности преобразования поля образцом. Далее будут рассмотрены общее линейное преобразование, перемешивающее операторы рождения и уничтожения и соответствующая χ-функция, которая, как и в случае ТИ (§ 4.4), полностью определяется через МР и χ-функцию падающего поля. Далее МР будет рассчитана для простого случая одномодовой накачки при пренебрежении дифракцией. При этом мы перейдем к удобному для таких задач $\omega q z$-представлению операторов и покажем, что результаты квантового и классического расчета МР совпадают. Полученные решения уравнений Гейзенберга описывают экспоненциальный рост яркости ПР при увели-

чении толщины слоя. Наконец, мы рассмотрим еще представление медленно-меняющихся амплитуд, с помощью которого удобно описывать ВПР в случае модулированной в пространстве и времени накачки и использовать результаты классических расчетов.

Монохроматическая накачка. Преобразование поля теперь описывается решениями линейных уравнений (6.4.3) при $t - t_0 \to \infty$, которые в случае классической монохроматической накачки имеют, очевидно, вид:

$$a_1'^{+} = \sum_{1'} U_{11'} a_{1'}^{+} + \sum_{2} V_{12} a_2, \quad a_2'^{+} = \sum_{1} V_{21} a_1 + \sum_{2'} U_{22'} a_{2'}^{+} \tag{1}$$

или в векторной форме

$$\boldsymbol{a}_1'^{+} = \boldsymbol{U}^{(1)} \cdot \boldsymbol{a}_1^{+} + \boldsymbol{V}^{(1)} \cdot \boldsymbol{a}_2, \quad \boldsymbol{a}_2'^{+} = \boldsymbol{U}^{(2)} \cdot \boldsymbol{a}_2^{+} + \boldsymbol{V}^{(2)} \cdot \boldsymbol{a}_1,$$

где МР $\boldsymbol{U}$, $\boldsymbol{V}$ зависят от интенсивности и спектра накачки, размеров образца, нелинейности среды и т. д.

Преобразование операторов (1) порождено эрмитовым гамильтонианом и должно быть унитарным, т. е. сохраняющим коммутационные соотношения. Это условие накладывает, как легко проверить, следующие ограничения на МР:

$$\begin{aligned} &\sum_{n''} U_{nn''} U^{*}_{n'n''} - \sum_{m} V_{nm} V^{*}_{n'm} = \delta_{nn'}, \\ &\sum_{n''} U_{nn''} V_{mn''} - \sum_{m'} V_{nm'} U_{mm'} = 0, \end{aligned} \tag{2}$$

которые уменьшают число независимых компонент (здесь m, $n = 1, 2$ или $2, 1$).

Существенно, что промодулированное накачкой вещество перемешивает положительно- и отрицательно-частотные компоненты поля, что при учете их некоммутативности и приводит к появлению поля рассеяния даже при отсутствии падающих полей и нулевой температуре вещества. Действительно, из (1) при вакуумном начальном состоянии следует

$$\begin{aligned} N'_{nn'} &= \sum_{m} V_{nm} V^{*}_{n'm} = \sum_{n''} U_{nn''} U^{*}_{n'n''} - \delta_{nn'}, \\ N'_{n} &= \sum_{m} |V_{nm}|^2 = \sum_{n'} |U_{nn'}|^2 - 1. \end{aligned} \tag{3}$$

Кроме того, имеет место корреляция частотных компонент одного знака:

$$K'_{12} \equiv \langle a_1 a_2 \rangle'^{*} = \sum_{2'} V_{12'} U_{22'} = \sum_{1'} U_{11'} V_{21'}. \tag{4}$$

При этом четвертый момент, определяющий вероятность совпадения сигнальных и холостых фотонов, равен

$$\begin{gathered}\langle a_1^+ a_{1'} a_2^+ a_{2'}\rangle' = N'_{11'} N'_{22'} + K'_{12} K'^*_{1'2'},\\ \langle \hat{N}_1 \hat{N}_2\rangle' = N'_1 N'_2 + |K'_{12}|^2.\end{gathered} \tag{5}$$

В первом порядке теории возмущения $U_{nn'} = \delta_{nn'} + u_{nn'}$ и $V_{nm} = v_{nm}$, где $u, v \sim \chi^{(2)}$, так что равенства (3) — (5) принимают вид (6.4.20) — (6.4.22). Таким образом, при слабой накачке $|V| \ll |U|$ и «случайные» совпадения (первое слагаемое в (5)) отсутствуют («корреляция фотонов»), а в режиме ВПР $|V| \sim |U|$, так что вероятности случайных и истинных совпадений имеют одинаковый порядок («корреляция интенсивностей»). В последнем случае в отличие от «обычных» полей (§ 4.7) имеется корреляция (4) между разночастотными модами, удовлетворяющими условиям синхронизма.

Характеристическая функция. При немонохроматической (например, импульсной) накачке разделение поля на сигнальное и холостое теряет смысл, так что вместо (1), (2) имеет место общее линейное преобразование, перемешивающее положительно- и отрицательно-частотные амплитуды мод:

$$\begin{gathered}\boldsymbol{a}'^+ = \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{a}^+ + \boldsymbol{V}\cdot\boldsymbol{a},\\ \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{U}^+ - \boldsymbol{V}\cdot\boldsymbol{V}^+ = \boldsymbol{I}, \quad \boldsymbol{V}\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}} = \boldsymbol{U}\cdot\widetilde{\boldsymbol{V}}.\end{gathered} \tag{6}$$

Выразим нормально-упорядоченную χ-функцию (§ 3.3) выходного поля

$$\chi' \equiv \langle e^{\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{a}'^+} e^{-\boldsymbol{\mu}^*\cdot\boldsymbol{a}'}\rangle \tag{7}$$

через χ-функцию падающего поля χ. Усреднение в (7) проводится по распределению амплитуд падающего поля, относительно которых усредняемый оператор не является нормально-упорядоченным. Подставив (6) в (7), найдем с помощью (3.3.41)

$$\chi'(\boldsymbol{\mu}) = \chi_{\text{вак}}(\boldsymbol{\mu})\,\chi(\boldsymbol{\mu}'), \quad \boldsymbol{\mu}' \equiv \boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{U} - \boldsymbol{\mu}^*\cdot\boldsymbol{V}^*, \tag{8}$$

где

$$\begin{aligned}\chi_{\text{вак}}(\boldsymbol{\mu}) &\equiv \exp\frac{1}{2}(\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{\mu}^* - \boldsymbol{\mu}'\cdot\boldsymbol{\mu}'^*) =\\ &= \exp(-\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{V}\cdot\boldsymbol{V}^+\cdot\boldsymbol{\mu} + \operatorname{Re}\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{U}\cdot\widetilde{\boldsymbol{V}}\cdot\boldsymbol{\mu})\end{aligned} \tag{9}$$

— χ-функция выходного поля при отсутствии падающего поля (кроме, конечно, накачки). Это поле можно назвать спонтанно-вынужденным — спонтанным по отношению к слабому по сравнению с накачкой сигнальному и холостому полям и вынужденным по отношению к полю накачки. Чисто спонтанное (тепловое) излучение рассмотренное в гл. 5, здесь отсутствует в силу предполагаемой прозрачности образца. Заметим, что при монохроматической

накачке спонтанно-вынужденное рассеяние на антистоксовых частотах в приближении трехволнового гамильтониана также отсутствует, так как ему соответствует гамильтониан вида $\hbar w_{12} e^{i\omega_3 t} a_1 a_2^+ +$ э.с., не перемешивающий положительно- и отрицательно-частотные компоненты.

Формулу (8) можно считать проявлением ОЗК, так как она определяет статистику поля ВПР (в приближении заданного детерминированного поля накачки) через линеаризованную МР промодулированного накачкой образца и статистику падающего поля. Если последняя является смещенной гауссовой с независимыми модами (4.4.15), то (8) принимает вид

$$\chi'(\boldsymbol{\mu}) = \\ = \exp\left(-\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{N}'\cdot\boldsymbol{\mu}^* + \frac{1}{2}\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{K}'\cdot\boldsymbol{\mu} + \frac{1}{2}\boldsymbol{\mu}^*\cdot\boldsymbol{K}'^*\cdot\boldsymbol{\mu}^* + \boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{z}'^* - \boldsymbol{\mu}^*\cdot\boldsymbol{z}'\right), \tag{10}$$

$$\boldsymbol{z}'^* = \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{z}^* + \boldsymbol{V}\cdot\boldsymbol{z}, \tag{11}$$

$$\boldsymbol{N}' \equiv \langle \boldsymbol{a}^+\boldsymbol{a}\rangle' = \boldsymbol{U}\cdot\boldsymbol{N}\cdot\boldsymbol{U}^+ + \boldsymbol{V}\cdot(\boldsymbol{N}+\boldsymbol{I})\cdot\boldsymbol{V}^+, \tag{12}$$

$$\boldsymbol{K}' \equiv \langle \boldsymbol{a}^+\boldsymbol{a}^+\rangle' = \boldsymbol{U}\cdot(2\boldsymbol{N}+\boldsymbol{I})\cdot\widetilde{\boldsymbol{V}}, \tag{13}$$

где $\boldsymbol{N}$ — диагональная матрица чисел фотонов и z_k — амплитуды когерентной части входного поля. При $z_k = 0$ (10) соответствует «квазигауссовой» статистике, отличающейся от гауссовой дополнительной корреляцией между частотными компонентами одного знака.

Согласно (11) МР можно измерить с помощью когерентного пробного поля и трехчастотного интерферометра. Однако полная статистическая информация о спонтанном ПР содержится (см. (9)) и в матрицах $\boldsymbol{V}\cdot\boldsymbol{V}^+$ и $\boldsymbol{U}\cdot\widetilde{\boldsymbol{V}}$, которые согласно (12) и (13) можно измерить с помощью некогерентного света. С другой стороны, формула (12) позволяет для расчета спонтанного излучения параметрического усилителя, работающего в режиме заданной накачки, использовать классические модели нелинейной оптики [9—11], основанные обычно на понятии локальной нелинейной поляризации в $\omega\boldsymbol{r}$-представлении:

$$\boldsymbol{P}(\omega\boldsymbol{r}) = \int d\omega'\chi(\overline{\omega}, \omega', \omega-\omega') : \boldsymbol{E}(\omega'\boldsymbol{r})\,\boldsymbol{E}(\omega-\omega', \boldsymbol{r}). \tag{14}$$

В областях прозрачности кристалла можно пренебречь дисперсией χ в интервале синхронизма, и если считать поле накачки $\boldsymbol{E}_3$ классической величиной, а $\boldsymbol{P}(\omega_i)$ и $\boldsymbol{E}(\omega_i)$ — операторами (о связи операторов $\boldsymbol{E}(\omega\boldsymbol{r})$ и $a_k(t)$ см. § 3.2), то неоднородные уравнения Максвелла для $\boldsymbol{E}(\omega_i)$, следующие из (14), совпадают с уравнениями Гейзенберга (6.4.2), полученными с помощью эффективного гамильтониана вида χE^3.

Одномерная модель: представления $\omega \boldsymbol{q} z$ и $\boldsymbol{k} z$. Пусть накачка представляет монохроматическую и идеально плоскую волну, а образец имеет плоскопараллельную форму с неограниченными поперечными размерами и толщиной l.

Заменим в (6.4.3) a_3 на $E_L \delta_{k_3 k_L}/ic_L$ и перейдем от суммирования к интегрированию по модам, тогда уравнения для медленно-меняющихся со временем амплитуд примут вид

$$\frac{da_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t)}{dt} = -\frac{i}{2\pi}\int_0^l dz \int dk_z' w(\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}')\, a_{\text{м}}^+(\boldsymbol{k}'t) \times$$

$$\times \exp\left[i(\omega_k + \omega_{k'} - \omega_L)t - i(k_z + k_z' - k_L)z\right], \quad (15)$$

$$w(\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}') \equiv \frac{(2\pi)^3 c_k c_{k'} \chi E_L}{\hbar v} = \frac{2\pi}{c}\left(\frac{\omega u}{n\cos\rho}\right)_k^{1/2}\left(\frac{\omega u}{n\cos\rho}\right)_{k'}^{1/2}\chi E_L, \quad (16)$$

где мы использовали формулу (6.1.25), приводящую к сохранению поперечных импульсов у взаимодействующих волн, так что в (15) $\boldsymbol{q}' = \boldsymbol{q}_L - \boldsymbol{q}$. Физический смысл имеют решения при $t = \infty$, $t_0 = -\infty$, поэтому проинтегрируем (15) по времени в бесконечных пределах:

$$a_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t) - a_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t_0) = \frac{w}{2\pi i}\int_0^l dz \int dk_z' \int dt' a_{\text{м}}^+(\boldsymbol{k}'t') \times$$

$$\times \exp\left[i(\omega_k + \omega_{k'} - \omega_L)t' - i(k_z + k_z' - k_L)z\right], \quad (17)$$

где мы вынесли коэффициент связи w из-под знака интегрирования.

Перейдем к $\omega \boldsymbol{q} z$-представлению с помощью фурье-преобразования

$$a(\omega \boldsymbol{q} z) \equiv \int \frac{dt}{2\pi}\int \frac{dk_z}{v^{1/3}} e^{i\omega t + ik_z z} a(\boldsymbol{k}t). \quad (18)$$

Определим, кроме того, медленно-меняющиеся вдоль оси z амплитуды:

$$a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} z) \equiv a(\omega \boldsymbol{q} z)\, e^{-ik_z(\omega \boldsymbol{q})z}, \quad (19)$$

где функция $k_z(\omega \boldsymbol{q})$ определяется уравнениями $\omega = \omega_k$, $k_z = \sqrt{k^2 - q^2}$ (предполагается, что $k > q$ и что в силу условия синхронизма эффективно взаимодействуют лишь волны с определенной поляризацией, распространяющиеся в положительном направлении оси z). Из (18), (19) следует

$$a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} z) = \frac{1}{2\pi v^{1/3}}\int dt\, dk_z a_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t) \exp\{i(\omega - \omega_k)t + i[k_z - k_z(\omega \boldsymbol{q})]z\}. \quad (20)$$

Вне нелинейного слоя $\boldsymbol{k}$ и ω связаны законом дисперсии $\omega = \omega_k$, так что $a_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t)$ не зависит от t и $a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} z)$ — от z. При этом

связь (20) принимает вид

$$a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} z) = v^{-1/3} \int dk_z a_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t)\, \delta(\omega - \omega_k) \exp i\,[k_z - k_z(\omega \boldsymbol{q})]\, z. \qquad (21)$$

Заменив dk_z на $d\omega/u_{kz}$ (u_{kz} — проекция вектора групповой скорости на ось z), находим

$$\begin{aligned} v^{1/3} u_{kz} a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} 0) &= a_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t_0) \equiv a_{\boldsymbol{k}}, \\ v^{1/3} u_{kz} a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} l) &= a_{\text{м}}(\boldsymbol{k}t) \equiv a'_{\boldsymbol{k}}. \end{aligned} \qquad (22)$$

Уравнение (17) с учетом (22) в левой части и (20) — в правой принимает после дифференцирования по l вид

$$\begin{aligned} \frac{\partial a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} l)}{\partial l} &= \frac{w}{i u_z} e^{-i\Delta l} a^{+}_{\text{м}}(\tilde{\omega} \tilde{\boldsymbol{q}} l), \\ \frac{\partial a_{\text{м}}(\tilde{\omega} \tilde{\boldsymbol{q}} l)}{\partial l} &= \frac{w}{i \tilde{u}_z} e^{-i\Delta l} a^{+}_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} l), \end{aligned} \qquad (23)$$

$$\Delta(\omega \boldsymbol{q}) \equiv k_z(\omega \boldsymbol{q}) + k_z(\tilde{\omega} \tilde{\boldsymbol{q}}) - k_L,$$

$$\tilde{\omega} \equiv \omega_L - \omega, \quad \tilde{\boldsymbol{q}} \equiv -\boldsymbol{q}, \quad \boldsymbol{q} \equiv \{k_x, k_y\}.$$

Равенства (22) дают однозначную связь между наблюдаемыми во внешних (по отношению к слою) полупространствах выходными операторами $a'_{\boldsymbol{k}}$ и операторами $a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} l)$, поэтому можно считать, что $a'_{\boldsymbol{k}}$ непосредственно зависят от параметра l. Таким образом, в одномерных моделях с выделенным направлением в пространстве можно ввести операторные функции $a_{\boldsymbol{k}}(z)$:

$$a_{\boldsymbol{k}}(z) \equiv v^{1/3} u_{kz} a_{\text{м}}(\omega \boldsymbol{q} z), \quad a_{\boldsymbol{k}}(0) \equiv a_{\boldsymbol{k}}, \quad a_{\boldsymbol{k}}(l) \equiv a'_{\boldsymbol{k}}. \qquad (24)$$

Эти функции при заданном векторе $\boldsymbol{k}$ подчиняются системе из двух симметричных уравнений

$$\frac{d a_{\text{k}}(z)}{dz} = \frac{w}{i \tilde{u}_{kz}} e^{-i\Delta z} \tilde{a}^{+}_{\text{k}}(z). \qquad (25)$$

Благодаря бесконечной протяженности слоя вдоль осей x, y моды взаимодействуют попарно, амплитуда a_k связана лишь со своей холостой («сопряженной») модой $\tilde{a}_{\text{k}} \equiv a_{\tilde{\text{k}}}$.

Нетрудно найти общее решение уравнений (25):

$$a' = Ua + V\tilde{a}^{+}, \qquad (26)$$

$$U = e^{-i\Delta l/2}\left(\operatorname{ch} \gamma l + i \frac{\Delta}{2\gamma} \operatorname{sh} \gamma l\right), \quad V = \frac{w}{i \tilde{u} \gamma} \operatorname{sh} \gamma l\, e^{-i\Delta l/2} \qquad (27)$$

$$\gamma \equiv \sqrt{\beta^2 - \Delta^2/4}, \quad \beta^2 \equiv \frac{|w|^2}{u_z \tilde{u}_z} = \frac{4\pi^2 \omega \tilde{\omega}}{c n \tilde{n}} |\chi E_L|^2$$

Если синхронизм $\Delta = 0$ имеет место для встречной холостой волны ($\tilde{u}_z < 0$), то

$$U = e^{-i\Delta l/2}\left(\cos\bar{\gamma}l - i\frac{\Delta}{2\bar{\gamma}}\sin\bar{\gamma}l\right)^{-1},$$
$$V = \frac{w}{i\tilde{u}_z}e^{-i\Delta l}\left(\bar{\gamma}\operatorname{ctg}\bar{\gamma}l - i\frac{\Delta}{2}\right)^{-1}, \tag{28}$$
$$\bar{\gamma} \equiv i\gamma.$$

Коэффициенты «рассеяния» слоя U, V совпадают с результатом классического расчета, основанного на (14). Отметим, что имеет место связь (ср. (2))

$$|U|^2 - |V|^2 |\tilde{u}_z/u_z| = 1, \tag{29}$$

которая обеспечивает вместе с формулой

$$|u_{kz}|\delta(\tilde{\boldsymbol{k}} - \tilde{\boldsymbol{k}}') = |\tilde{u}_{kz}|\delta(\boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}') \tag{30}$$

унитарность преобразования (26).

Найдем спектральную яркость ВПР в случае вакуумного начального состояния и прямого взаимодействия волн. Из (27) с учетом (30) следует

$$N_{kk'} = |V|^2\frac{\tilde{u}_z}{u_z}\delta_{kk'} = \left(\frac{\beta\operatorname{sh}\gamma l}{\gamma}\right)^2\delta_{kk'}. \tag{31}$$

Таким образом, как и в случае квантового усилителя с полной инверсией населенностей, интенсивность спонтанного излучения параметрического усилителя в фотонах на моду равна коэффициенту усиления (без единицы — см. (29)). Плотность потока фотонов в моде F в диспергирующей среде равна концентрации фотонов N/L^3, умноженной на групповую скорость u. Плотность типов колебаний в анизотропной среде согласно (3.4.34) равна $g_{\omega\Omega} = k^2/vu\cos\rho_k$, так что спектральная яркость внутри кристалла связана с числом фотонов в моде соотношением (ср. (1.1.26))

$$S_{\omega\Omega}(\boldsymbol{k}) = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}}N_k, \quad S_{\omega\Omega}^{\text{вак}} = \frac{\hbar\omega_k k^2}{8\pi^3\cos\rho_k}. \tag{32}$$

В результате из (31) получаем

$$S_{\omega\Omega}(\boldsymbol{k}) = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}}\left(\frac{\beta\operatorname{sh}\gamma l}{\gamma}\right)^2. \tag{33}$$

В направлении синхронизма

$$S_{\omega\Omega_1}^{\max} = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}}\operatorname{sh}^2\beta l. \tag{34}$$

Интеграл от (33) по частоте определяет яркость и эффективную полосу ВПР:

$$S_\Omega = S_{\omega\Omega}^{\max}\Delta\omega_{\text{эф}}, \quad \Delta\omega_{\text{эф}} = \xi\Delta\omega_{\text{эф}}^0, \tag{35}$$

$$\xi \equiv \operatorname{sh}^{-2}x \sum_{n=0}^{\infty} \frac{x^{2n+1}}{(2n+1)(n!)^2} \underset{x\gg 1}{\longrightarrow} \sqrt{\frac{x}{\pi}},$$

где $x \equiv \beta l$ и $\Delta\omega_{\text{эф}}^0$ — эффективная ширина спонтанного ПР (6.3.15). Согласно (35) полоса шумов параметрического усилителя света медленно возрастает с увеличением накачки — на 3% при коэффициенте усиления 10 ($x = 1{,}82$), на 83% при коэффициенте усиления 10^8 ($x = 10$).

Полученные выражения для яркости рассеянного света справедливы, очевидно, лишь для достаточно малых (по сравнению с отношением поперечного и продольного размеров образца) углов рассеяния. При этом переход от яркости к силе света производится просто умножением на эффективную площадь сечения накачки (или образца) и на косинус угла между лучевым вектором и осью z: $\mathscr{P}_{\omega\Omega} \approx S_{\omega\Omega}A\cos\theta$.

Модулированная накачка и представление ММА. До сих пор мы рассматривали непрерывную накачку. Эффект ВПР может найти применение для получения коротких перестраиваемых по частоте импульсов света при накачке лазерами с синхронизацией мод, излучающих импульсы с длительностью $\sim 10^{-12}$ с, в связи с чем представляет интерес рассмотреть влияние конечной длительности импульса накачки.

В классической оптике широко используется понятие «огибающей» или «медленно-меняющейся амплитуды» (ММА) квазимонохроматической и квазиплоской волны, которое можно ввести, выделив в положительно-частотной части поля (3.2.23) гармонический множитель (тип поляризации фиксируем):

$$E_{\text{м}}^{(+)}(\boldsymbol{r}t) \equiv E^{(+)}(\boldsymbol{r}t)\, e^{i(\omega_0 t - \boldsymbol{k}_0\cdot\boldsymbol{r})}, \tag{36}$$

где $\boldsymbol{k}_0$ — произвольный вектор и $\omega_0 \equiv \omega(\boldsymbol{k}_0)$. В случае свободного монохроматического и квазиплоского поля функция $E_{\text{м}}$ удовлетворяет однородному параболическому уравнению (примером решения этого уравнения является огибающая ТЕМ-волны (6.3.24)). В отсутствие источников разбиение поля на положительно- и отрицательно-частотные части совпадает с разбиением на части, зависящие от операторов уничтожения и рождения фотонов:

$$E^{0\,(+)}(\boldsymbol{r}t) = [E^{0\,(-)}(\boldsymbol{r}t)]^+ = i\sum_k c_k a_k e^{i(\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} - \omega_k t)}, \tag{37}$$

где коэффициенты c_k определены для анизотропной среды в (3.4.35). Сравнивая (36) и (37), находим связь оператора огибающей и

операторов уничтожения:

$$E_{\text{м}}^{0\,(+)}(\boldsymbol{r}t) = i\sum_{k} c_k a_k \exp\left[i(\omega_0 - \omega_k)t + i(\boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}_0)\cdot\boldsymbol{r}\right], \tag{38}$$

из которой следует перестановочное соотношение

$$[E_{\text{м}}^{0\,(+)}(\boldsymbol{r}t), E_{\text{м}}^{0\,(-)}(\boldsymbol{r}'t')] = \\ = \sum_{k} c_k^2 \exp\left[i(\omega_0 - \omega_k)(t - t') + i(\boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}_0)\cdot(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}')\right]. \tag{39}$$

Пусть условия задачи (например, условие синхронизма или дополнительная фильтрация) позволяют учитывать только компоненты поля, принадлежащие малой области $\boldsymbol{k}$-пространства в окрестности $\boldsymbol{k}_0$, тогда (39) можно представить в виде

$$c_0^2 \sum_{k} \exp\left\{i(\boldsymbol{k} - \boldsymbol{k}_0)\cdot[\boldsymbol{u}_0(t' - t) + \boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}']\right\} = \\ = \frac{2\pi\hbar\omega_0 u_0}{cn_0\cos\rho_0}\,\delta\left[\boldsymbol{u}_0(t' - t) + \boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}'\right]. \tag{40}$$

Последнее выражение определяет также и антинормально-упорядоченный коррелятор огибающих в случае вакуумного состояния поля в среде.

Формулы (37) — (40) относятся только к свободному полю вне нелинейного слоя. Внутри слоя имеется источник поля — нелинейная поляризация (14), однако на граничных поверхностях ($z = 0$, l) статистические характеристики внутреннего и внешнего полей должны, очевидно, совпадать. Такое «сшивание» решений на границах задает входные моменты. Например, полагая в (40) $z = z' = 0$ и усредняя по вакуумному состоянию «левого» полупространства, получим антинормально-упорядоченный второй момент на входе слоя:

$$\langle E_{\text{м}}^{(+)}(xy0t)\,E_{\text{м}}^{(-)}(x'y'0t')\rangle = [E_{\text{м}}^{(+)}(xy0t), E_{\text{м}}^{(-)}(x'y'0t')] = \\ = \frac{2\pi\hbar\omega_0}{c\bar{n}_0}\,\delta(x - x')\,\delta(y - y')\,\delta(t - t'), \tag{41}$$

где $\bar{n} \equiv n\cos\theta\cos\rho$ и θ_0 — угол между вектором групповой скорости $\boldsymbol{u}_0$ и осью z ($\theta_0 = \rho_0$ в случае $\boldsymbol{k}_0 \parallel \boldsymbol{z}$).

Представим полное поле в виде суммы трех квазимонохроматических и квазиплоских волн (т. е. трех «модулированных» во времени и пространстве собственных волн среды в линейном приближении):

$$E(\boldsymbol{r}t) = \sum_{i=1}^{3} E_{\text{м}i}^{(+)}(\boldsymbol{r}t)\,e^{i(\boldsymbol{k}_i\cdot\boldsymbol{r} - \omega_i t)} + \text{э. с.}, \tag{42}$$

где «несущие» частоты ω_i и волновые векторы $\boldsymbol{k}_i$ удовлетворяют условию синхронизма (например, прямого коллинеарного, когда

$\boldsymbol{k}_i \parallel \boldsymbol{z}$ и $k_1 + k_2 = k_3$) и закону дисперсии. Взаимодействие волн в нелинейном слое описывается системой из трех уравнений для $E_{\text{м}i}$ в частных производных, которые следуют из (14) и уравнений Максвелла, причем слабость взаимодействия позволяет пренебречь вторыми производными по z и t [9]. В приближении заданной накачки ($E_{1,2} \ll E_3$) преобразование сигнальной и холостой огибающих волн в нелинейном слое линейно:

$$E^{(+)}_{\text{м}1}(xylt) = \int dx'\,dy'\,dt' \times$$
$$\times \{U(xylt\,|\,x'y'0t')\,E^{(+)}_{\text{м}1}(x'y'0t') + V(xylt\,|\,x'y'0t')\,E^{(-)}_{\text{м}2}(x'y'0t')\}. \quad (43)$$

Здесь U, V — функции Грина уравнений для ММА, которые зависят от различия групповых скоростей u_i и углов «сноса» ρ_i. В нулевом приближении по χ $V^0 = 0$, а U^0 описывает распространение огибающей со скоростью u_1, а также ее дифракционное «расплывание» в плоскости xy (см. формулу Гюйгенса — Френеля (4.6.1)).

Преобразование (43), которое должно сохранить перестановочные соотношения (41) (взятые при $z = z' = l$), определяет все моменты выходного поля в «правом» полупространстве через моменты падающего слева поля. В случае негармонической накачки функции Грина зависят отдельно от аргументов t и t' (а не от их разности), и поэтому статистика выходного поля нестационарна даже в случае стационарного (в частности, вакуумного) падающего поля.

Умножая (43) слева на эрмитово-сопряженное равенство и усредняя моменты падающего поля по вакуумному состоянию, с помощью (41) найдем среднюю интенсивность ближнего поля ВПР в точке $\boldsymbol{r} = \{x, y, l\}$ в момент t:

$$\frac{d\mathscr{E}_1(\boldsymbol{r}t)}{dx\,dy\,dt} = S_{1z}(\boldsymbol{r}t) = \frac{c\bar{n}_1}{2\pi}\langle E^{(-)}_{\text{м}1}(\boldsymbol{r}t)\,E^{(+)}_{\text{м}1}(\boldsymbol{r}t)\rangle =$$
$$= \hbar\omega_2\frac{\bar{n}_1}{\bar{n}_2}\int dx'\,dy'\,dt'\,|V(xylt\,|\,x'y'0t')|^2, \quad (44)$$

где $\mathscr{E}_1$ — полная энергия импульса. Это выражение определяет через функцию Грина V среднее число фотонов сигнала, пересекающих за единицу времени единичную площадку выходной плоскости слоя с координатами x, y в момент времени t. Подчеркнем, что это среднее — не по времени, а по ансамблю одинаковых экспериментальных установок. Практически усреднение можно производить по большому числу импульсов накачки, разделенных достаточным интервалом времени. Отсчет времени при этом производится относительно характерной точки огибающей импульса накачки, например, ее максимума.

Таким образом, эффект ВПР при импульсной накачке дает довольно редкую возможность наблюдать нестационарный кванто-

вый процесс, охватывающий макроскопический объем (ср. эффект *сверхизлучения* [14]).

Интеграл от (44) по x, y и t определяет полную среднюю энергию импульса ВПР на частоте сигнала. Аналогичным образом можно найти в виде квадратур высшие моменты ближнего или дальнего поля, флуктуации интенсивности и энергии. Формула преобразования (43) и входная стационарная функция корреляции (41) определяют нестационарную выходную функцию корреляции амплитуд, частотный спектр энергии $d\mathscr{E}/d\omega$, энергию на единицу телесного угла в дальней зоне $d\mathscr{E}/d\Omega$ и т. д.

Изложенный формализм позволяет исследовать статистические характеристики ВПР при когерентной накачке, локализованной в пространстве и времени, с помощью готовых формул, описывающих динамику первых моментов поля в рамках классической нелинейной оптики. Так, Сухорукову и Щедновой [155] удалось получить в явном виде (через гипергеометрическую функцию) функции Грина уравнений для ММА для плоской волны накачки с колоколообразной огибающей вида $\mathrm{ch}^{-1}(t/\tau_3)$. Их результат был использован в работе [96] для расчета средних энергетических характеристик импульса ВПР.

§ 6.6. Рассеяние на поляритонах (РП)

Мы сперва учтем поглощение на холостой частоте с помощью линейной ФДТ для холостого поля при пренебрежении дисперсией нелинейной восприимчивости и покажем, что затухание рассеивающих поляритонов (т. е. «фотонов в среде») приводит просто к уширению наблюдаемой спектральной линии при сохранении ее площади. Далее будет рассмотрена более общая феноменологическая модель рассеяния света на поляритонах (РП), использующая кубическую ФДТ. Эта модель при простой «однополюсной» дисперсии восприимчивостей позволит с помощью нескольких характерных параметров рассмотреть некоторые особенности РП, уже отмечавшиеся в § 1.2. Наконец, из эффективного гамильтониана и кинетического уравнения будет получен ОЗК для ПР и РП.

Описание РП с помощью линейной ФДТ. Пусть образец прозрачен на частотах сигнала ω и накачки ω_3, но полностью непрозрачен на холостых частотах $\tilde{\omega} = \omega_3 - \omega$, так что холостое поле при умеренных мощностях накачки можно считать равновесным. Рассчитаем интенсивность рассеяния, предположив, что тепловое поле «бьется» с монохроматическим плоским полем накачки и за счет квадратичной нелинейной восприимчивости порождает поляризацию на частоте сигнала:

$$\boldsymbol{P}(\omega \boldsymbol{r}) = \chi : \boldsymbol{E}_3 \boldsymbol{E}^+ (\tilde{\omega} \boldsymbol{r})\, e^{i\boldsymbol{k}_3 \cdot \boldsymbol{r}}. \tag{1}$$

Поляризация (1) является источником наблюдаемого поля, которое в дальней зоне в направлении $\boldsymbol{k}$ на расстоянии R от образца согласно (3.4.39) будет равно

$$E(\omega R) = \frac{\omega^2}{c^2 R} e^{ikR} \int\limits_V d\boldsymbol{r} e^{-i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}} P(\omega\boldsymbol{r}), \tag{2}$$

где $k \equiv k(\omega)$, P — перпендикулярная к $\boldsymbol{k}$ составляющая вектора поляризации (1) (рассматриваем безграничную среду, в которой выделен нелинейный объем V и выполняется синхронизм для обыкновенных волн сигнального и холостого полей и необыкновенной волны накачки).

Мощность сигнала, переносимая через единичную площадку, перпендикулярную $\boldsymbol{k}$ в единичном интервале положительных частот, равна

$$\frac{dS}{d\omega} = \frac{cn}{2\pi} \langle E^+(\omega R) E(\omega' R)\rangle_\omega, \tag{3}$$

где индекс ω означает, что функцию $\delta(\omega - \omega')$, которой пропорционален коррелятор в стационарном случае, следует опустить. Мощность, переносимая в единичном телесном угле в дальней зоне, отличается множителем R^2, так что

$$\frac{d\mathcal{P}(\boldsymbol{k})}{d\omega\, d\Omega} = \frac{\omega^4 n}{2\pi c^3} \int d\boldsymbol{k}' \langle P^+ P\rangle_{\boldsymbol{k}\omega} \left| \int\limits_V d\boldsymbol{r} e^{i(\boldsymbol{k}-\boldsymbol{k}')\cdot\boldsymbol{r}} \right|^2 \approx$$

$$\approx 4\pi^2 c^{-3} \omega^4 n V \langle P^+ P\rangle_{\boldsymbol{k}\omega}, \tag{4}$$

где мы использовали приближенное выражение для функции $\delta(\boldsymbol{k})$ (6.1.27), справедливое в случае макроскопического образца. С учетом (1) из (4) следует ($\tilde{\boldsymbol{k}} \equiv \boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}$)

$$\frac{d\mathcal{P}(\boldsymbol{k})}{V d\omega\, d\Omega} = 4\pi^2 c^{-3} \omega^4 n\, |\chi E_3|^2 \langle E E^+\rangle_{\tilde{\boldsymbol{k}}\tilde{\omega}}. \tag{5}$$

Таким образом, благодаря квадратичной нелинейности кристалла χ частотно-угловой спектр рассеянного поля определяется $\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}}$-спектром равновесного поля в образце. Последний можно выразить через комплексную диэлектрическую проницаемость согласно (4.2.16) или через показатель преломления и коэффициент поглощения на холостой частоте согласно (4.2.20):

$$\frac{d\mathcal{P}}{V d\omega\, d\Omega} = \frac{\hbar\omega^4 \tilde{\omega} n\, |\chi E_3|^2\, \tilde{\alpha}\, (\tilde{\mathcal{N}} + 1)}{2\pi c^4 \tilde{n}\, \{[\tilde{k} - k(\tilde{\omega})]^2 - \tilde{\alpha}^2/4\}}. \tag{6}$$

Согласно (6) форма спектра РП лоренцева, и роль волновой расстройки теперь играет следующая функция частоты и направления наблюдения:

$$\Delta'(\omega\vartheta\varphi) \equiv k(\omega_3 - \omega) - |\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}|; \tag{7}$$

ширина спектральной линии определяется не размером образца, как при ПР (§ 6.3), а длиной пробега холостых фотонов $\tilde{\alpha}^{-1}$.

Как и в § 6.3, разложение функции (7) около точки синхронизма позволяет определить частотно-угловую форму наблюдаемого спектра через групповые скорости u, $\tilde{u}$ и углы рассеяния ϑ, $\tilde{\vartheta}$. Например, зависимость $\Delta'(\omega)$ определяется производной

$$\frac{\partial \Delta'}{\partial \omega} = \frac{\cos(\vartheta + \tilde{\vartheta})}{u} - \frac{1}{\tilde{u}}. \tag{8}$$

Из сравнения с (6.2.5) следует $\Delta' = \Delta \cos \tilde{\vartheta} = -\Delta\omega/\tilde{u}$.

Проинтегрировав (6) по частоте сигнала, с помощью (8) найдем мощность, рассеиваемую в единичный телесный угол (силу света):

$$\frac{d\mathcal{P}}{d\Omega} = \frac{\hbar n \omega^4 \tilde{\omega} \,|\, \chi E_3 \,|^2 V (\tilde{\mathcal{N}} + 1)}{\tilde{n} c^4 \,|\cos(\vartheta + \tilde{\vartheta}) u^{-1} - \tilde{u}^{-1}|}. \tag{9}$$

Это выражение совпадает с формулой (6.2.10), описывающей ПР в прозрачном образце [1]). Итак, поглощение на холостой частоте не изменяет интегральную по частоте (или, аналогично, по углу) интенсивность рассеянного света, а лишь уширяет спектральную линию.

Отношение (9) и (6) при синхронизме равно по определению эффективной частотной ширине линии:

$$\Delta\omega_{\text{эф}} = \frac{\pi\tilde{\alpha}}{2\,|\cos(\vartheta + \tilde{\vartheta}) u^{-1} - \tilde{u}^{-1}|}. \tag{10}$$

Около резонанса $\tilde{u} \ll u$ и $\Delta\omega_{\text{эф}} = \pi\tilde{\alpha}\tilde{u}/2 \approx \tilde{\tau}^{-1}$, где $\tilde{\tau}$ — время жизни поляритона.

Аналогично, угловая ширина равна

$$\Delta\vartheta_{\text{эф}} = \frac{\pi\tilde{\alpha}}{2k_3\,|\sin\tilde{\vartheta}\,|}. \tag{11}$$

Эти формулы позволяют измерять $\tilde{\alpha}$. Заметим, что (10), (11) следуют из общих формул (6.3.15), (6.3.16) при $l_{\text{ког}} = 4/\tilde{\alpha}$. Полученные здесь формулы справедливы лишь в случае полностью непрозрачного образца, когда $\tilde{\alpha} l \gg 1$. Можно показать [89], что в случае полупрозрачного слоя интегральные интенсивности также не меняются, а форма линии будет промежуточной между лоренцевой и функцией $\operatorname{sinc}^2 x$:

$$g(x, a) = \frac{a}{\pi(x^2 + a^2)} + \frac{(x^2 - a^2)(1 - e^{-a}\cos x) - 2axe^{-a}\sin x}{\pi(x^2 + a^2)^2},$$
$$\int dx g = 1, \quad x \equiv \Delta l, \quad a \equiv \tilde{\alpha} l/2\,|\cos\tilde{\vartheta}\,|. \tag{12}$$

---

[1]) Заметим, однако, что $\tilde{\mathcal{N}}$ в (9) определяется температурой кристалла, а в случае ПР — температурой падающего на кристалл холостого поля.

При этом эффективная ширина линии определяется формулой

$$\frac{\Delta\omega_{\text{эф}}(a)}{\Delta\omega_{\text{эф}}(0)} = \frac{1}{2\pi g(0, a)} = \frac{a^2}{2(a - 1 + e^{-a})}. \tag{13}$$

Применение нелинейной ФДТ. Использованное выше описание с помощью линейной ФДТ неприменимо в области резонанса холостой частоты с собственным колебанием решетки, активным в комбинационном рассеянии (КР). Чтобы учесть вклад рамановских процессов, надо добавить в разложении поляризации по полю кубическое слагаемое $\chi^{(3)}E^3$. Накачку будем опять полагать заданной, плоской и монохроматической. Поле сигнала при учете локальной кубической восприимчивости вызывает поляризацию, пропорциональную интенсивности накачки и линейную по амплитуде сигнала ($\bar{\omega} \equiv -\omega$):

$$\boldsymbol{P}_{\text{лок}}(\omega\boldsymbol{k}) = \chi(\bar{\omega}\omega_3\bar{\omega}_3\omega) : \boldsymbol{E}_3\boldsymbol{E}_3^*\boldsymbol{E}(\omega\boldsymbol{k}) \equiv \chi^{(3)}_{\text{лок}}(\omega) \cdot \boldsymbol{E}(\omega\boldsymbol{k}). \tag{14}$$

Кроме того, в нецентросимметричном кристалле поле сигнала возбудит поляризацию на холостой частоте за счет квадратичной поляризуемости:

$$\boldsymbol{P}(\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}}) = \chi(\bar{\tilde{\omega}}\omega_3\bar{\omega}) : \boldsymbol{E}_3\boldsymbol{E}^+(\omega\boldsymbol{k}) \equiv \chi^{(2)}(\tilde{\omega}) \cdot \boldsymbol{E}^+(\omega\boldsymbol{k}). \tag{15}$$

Эта поляризация излучает холостое поле, которое в случае достаточно сильного поглощения на холостой частоте и умеренной интенсивности накачки можно определять с помощью линейной функции Грина (§ 3.4) для безграничной однородной среды:

$$\boldsymbol{E}(\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}}) = \boldsymbol{G}(\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}}) \cdot \boldsymbol{P}(\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}}), \tag{16}$$

$$\boldsymbol{G} = 4\pi[\tilde{n}^2\boldsymbol{\pi}_{\tilde{\boldsymbol{k}}} - \boldsymbol{\varepsilon}(\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}})]^{-1}, \quad \tilde{n} \equiv \frac{c\tilde{k}}{\tilde{\omega}} \equiv \frac{c}{\tilde{\omega}}|\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}|. \tag{17}$$

Холостое поле в свою очередь «бьется» с накачкой и вызывает дополнительную поляризацию на частоте сигнала, линейную по полю сигнала:

$$\boldsymbol{P}_{\text{доп}}(\omega\boldsymbol{k}) = \chi(\bar{\omega}\omega_3\bar{\tilde{\omega}}) : \boldsymbol{E}_3\boldsymbol{E}^+(\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}}) \equiv \chi^{(2)}(\omega) \cdot \boldsymbol{E}^+(\tilde{\omega}\tilde{\boldsymbol{k}}). \tag{18}$$

При отсутствии поглощения на частотах сигнала и накачки тензор квадратичной восприимчивости обладает следующим свойством симметрии [10, 170]:

$$\chi_{ikj}(\bar{\omega}\omega_3\bar{\tilde{\omega}}) = \chi^*_{jki}(\bar{\tilde{\omega}}\omega_3\bar{\omega}). \tag{19}$$

Пусть для простоты обозначений $E_3 = E_3^*$, тогда

$$\chi^{(2)}_{ij}(\omega) = \chi^{(2)*}_{ji}(\tilde{\omega}) \equiv [\tilde{\chi}^{(2)*}(\tilde{\omega})]_{ij}. \tag{20}$$

Полная поляризуемость на частоте сигнала равна сумме (14) и (18):

$$\boldsymbol{P}(\omega\boldsymbol{k}) = [\chi^{(3)}_{\text{лок}}(\omega) + \chi^{(2)}(\omega)\cdot \boldsymbol{G}^*(\widetilde{\omega}\widetilde{\boldsymbol{k}})\cdot\widetilde{\chi}^{(2)}(\omega)]\cdot \boldsymbol{E}(\omega\boldsymbol{k}) \equiv \\ \equiv \chi^{(3)}(\omega\boldsymbol{k})\cdot \boldsymbol{E}(\omega\boldsymbol{k}), \qquad (21)$$

где мы ввели «полную» или «истинную» кубическую восприимчивость, квадратичную по амплитуде накачки.

Если использовать разложение (3.4.9) тензора $\boldsymbol{G}$ по диадам, составленным из ортов поляризации (которые мы для простоты записи будем считать действительными), то $\chi^{(3)}$ принимает вид

$$\chi^{(3)}_{ij}(\omega\boldsymbol{k}) = \chi^{(3)}_{ij\,\text{лок}}(\omega) + 4\pi\sum_{\nu=1}^{3}\frac{[\chi^{(2)}(\omega)\cdot\widetilde{e}_\nu]_i[\chi^{(2)}(\omega)\cdot\widetilde{e}_\nu]_j}{[(c\widetilde{k}/\widetilde{\omega})^2 - \widetilde{n}_\nu^{2*}]\cos^2\widetilde{\rho}_\nu}. \qquad (22)$$

Таким образом, кубическая восприимчивость нецентросимметричной среды содержит, кроме локальной части, еще добавку, зависящую от волнового вектора (т. е. испытывающую пространственную дисперсию) и имеющую заметную величину при выполнении условия синхронизма. Аналогичное рассмотрение можно провести и при отсутствии поглощения на холостой частоте [97], однако при этом связь поляризации и поля становится нелокальной в $\omega\boldsymbol{k}$-представлении из-за влияния границы между линейной и нелинейной частями пространства.

Полная диэлектрическая проницаемость (с учетом основной, линейной, части) $\varepsilon = \varepsilon^{(1)} + 4\pi\chi^{(3)}$ определяет обычным образом (§ 3.4) динамические электромагнитные свойства модулируемой среды на частоте сигнала. Сигнальное поле можно разложить по собственным векторам $\boldsymbol{e}_\nu$ оператора $\varepsilon^{-1}\cdot\pi$, и найти соответствующий закон дисперсии и постоянные распространения так, как это было проделано в § 3.4. Если исключить вырожденные случаи или очень большие интенсивности накачки, то векторы $\boldsymbol{e}_\nu$ практически определяются линейной частью $\varepsilon^{(1)}$, т. е. не зависят от накачки. Коэффициент усиления плоской волны сигнала с определенной поляризацией за счет параметрических и рамановских процессов обычным образом (3.4.40) выражается через ε:

$$\alpha_\nu(\boldsymbol{k}) = \frac{2\omega}{c}\,\mathrm{Im}\,\frac{\sqrt{\boldsymbol{e}_\nu\cdot\varepsilon\cdot\boldsymbol{e}'_\nu}}{\cos\rho_\nu} \approx \frac{4\pi\omega}{cn_\nu\cos^2\rho_\nu}\,\mathrm{Im}\,(\boldsymbol{e}_\nu\cdot\chi^{(3)}\cdot\boldsymbol{e}'_\nu) < 0. \qquad (23)$$

Итак, мы нашли линейный по сигналу отклик модулируемой среды. Теперь для вычисления интенсивности РП можно воспользоваться кубической ФДТ (2.4.53), которая при неучете антистоксовых частот принимает вид (переход к непрерывному параметру $\boldsymbol{k}$ см. в § 4.2):

$$\langle \boldsymbol{P}^+\boldsymbol{P}\rangle_{\omega\boldsymbol{k}} = -(2\pi)^{-4}\hbar(\widetilde{\mathcal{N}} + 1)\,2\,\mathrm{Im}\,\chi^{(3)}(\omega\boldsymbol{k}). \qquad (24)$$

Подстановка (24) в (4) при добавлении фактора $\cos^{-2}\rho_\nu$ и учете (22) и (23) определяет спектральную силу рассеянного в моду $(\boldsymbol{k}\nu)$ света через феноменологические параметры среды — восприимчивость или коэффициент усиления:

$$\frac{d\mathscr{P}_\nu(\boldsymbol{k})}{V d\omega\, d\Omega} = -\alpha_\nu(\boldsymbol{k})(\widetilde{\mathscr{N}}+1)\, S^{\text{вак}}_{\omega\Omega}\cos\rho_\nu =$$
$$= -4\pi\hbar\omega\lambda^{-3} n\cos^{-2}\rho_\nu(\widetilde{\mathscr{N}}+1)\,\mathrm{Im}\,(\boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{\chi}^{(3)}\cdot\boldsymbol{e}_\nu), \qquad (25)$$

$$\boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{\chi}^{(3)}\cdot\boldsymbol{e}_\nu = \chi_{\text{лок}}(\overline{\omega}\omega_3\overline{\omega}_3\omega) : \boldsymbol{e}_\nu\boldsymbol{E}_3\boldsymbol{E}_3\boldsymbol{e}_\nu +$$
$$+ 4\pi\sum_{\mu=1}^{3}\frac{[\boldsymbol{\chi}(\overline{\omega}\omega_3\overline{\widetilde{\omega}}) : \boldsymbol{e}_\nu\boldsymbol{E}_3\boldsymbol{e}_\mu]^2}{(c^2\widetilde{k}^2/\widetilde{\omega}^2 - \widetilde{n}_\mu^{2*})\cos^2\widetilde{\rho}_\mu}. \qquad (26)$$

Здесь $S^{\text{вак}}_{\omega\Omega}$ определена в (6.5.32) и $\lambda = 2\pi c/\omega$.

Первое слагаемое в (26) описывает обычное КР, при котором интенсивность рассеяния слабо зависит от направления наблюдения $\boldsymbol{k}$. Этим же свойством обладает КР на чисто продольных колебаниях ИК-поля, описываемое вторым слагаемым при $\mu = 3$ ($\cos\rho_3 = 0$, $\boldsymbol{e}_3 = \hat{\boldsymbol{k}}/\widetilde{k}$) и имеющее максимумы на холостых частотах, обращающих $\boldsymbol{e}_3\cdot\widetilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^{(1)}\cdot\boldsymbol{e}_3$ в нуль. Слабую зависимость интенсивности КР на чисто механических (на обладающих дипольным моментом) и на продольно-электрических собственных колебаниях среды дают фигурирующие в (26) свертки тензоров нелинейной восприимчивости с ортами сигнала, накачки и продольного поля.

Второе слагаемое в (26) при $\mu = 1, 2$ описывает РП, имеющее для данной частоты наблюдения острые максимумы в направлениях, удовлетворяющих условию синхронизма

$$|\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}| = k_\mu(\widetilde{\omega}) \equiv \widetilde{n}_\mu\widetilde{\omega}/c. \qquad (27)$$

Нетрудно убедиться, что (25) для поперечных (обыкновенных) волн и действительных нелинейных восприимчивостей дает совпадающий с (6) результат, сотответствующий простому переносу в стоксовую область $\omega\boldsymbol{k}$-пространства равновесных флуктуаций среды (с дабавлением единицы к температурному фактору). Однако при приближении $\widetilde{\omega}$ к собственным частотам механических (или кулоновских) возбуждений среды у локальных восприимчивостей появляются мнимые части. При этом (25) предсказывает более сложную структуру рассеянного поля, которую мы сейчас рассмотрим на примере максимально упрощенной модели.

Однополюсное приближение. Пренебрежем тензорным характером задачи и будем описывать частотную дисперсию восприимчивостей с помощью однополюсной аппроксимации (ср. (4.2.21)):

$$\varepsilon^{(1)}(\widetilde{\omega}) = \varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon}{z} = \varepsilon_\infty\left(1 + \frac{a}{z}\right), \qquad (28)$$

$$\chi(\overline{\widetilde{\omega}}\omega_3\overline{\omega}) = \chi^*(\overline{\omega}\omega_3\overline{\widetilde{\omega}}) = \chi_\infty^{(2)} + \frac{\Delta\chi^{(2)}}{z} = \chi_\infty^{(2)}\left(1 + \frac{b}{z}\right), \tag{29}$$

$$\chi_{\text{лок}}(\overline{\omega}\omega_3\overline{\omega}_3\omega) = \chi_\infty^{(3)} + \frac{\Delta\chi^{(3)}}{z^*}, \tag{30}$$

$$z \equiv x - i \equiv \frac{\omega_0 - \widetilde{\omega}}{\gamma} - i. \tag{31}$$

Из теории возмущений при ω, $\omega_3 \gg \omega_0$ следует, что три «амплитуды» резонансов восприимчивостей связаны соотношением

$$[\Delta\chi^{(2)}]^2 = (4\pi)^{-1}\Delta\varepsilon\Delta\chi^{(3)}. \tag{32}$$

Заметим, что параметр $\Delta\chi^{(2)}$ в отличие от $\Delta\varepsilon$ и $\Delta\chi^{(3)}$ может быть отрицательным.

Подставив (28) — (30) в (26), получим следующее выражение для наблюдаемого частотно-углового спектра, нормированного на интенсивность обычного КР, наблюдаемого при больших углах рассеяния:

$$f(xy) \equiv \frac{\operatorname{Im}\chi^{(3)}(\omega\boldsymbol{k})}{\Delta\chi^{(3)}} = \frac{[1 + a/(by)]^2}{1 + (x - a/y)^2} = \frac{1}{a}\left(y + \frac{a}{b}\right)^2 f_0(xy), \tag{33}$$

$$y(\omega, \vartheta) \equiv \frac{1}{\varepsilon_\infty}\left(\frac{c\,|\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}|}{\omega_3 - \omega}\right)^2 - 1. \tag{34}$$

Переменная y слабо зависит от частоты и в основном определяется углом рассеяния. Равенство $y = 0$ соответствует условию синхронизма при пренебрежении вкладом рассматриваемого резонанса в диэлектрическую проницаемость. Функция f_0 определена формулой (4.2.23) и описывает спектр равновесных флуктуаций холостого ИК-поля.

Согласно (33) при $y = -a/b$ рассеяние отсутствует из-за взаимной компенсации резонансной и нерезонансной нелинейности, и частотно-угловая структура наблюдаемого спектра существенно зависит от параметра a/b. Если $a \gg |by|$, т. е.

$$\left(\frac{c\,|\boldsymbol{k}_3 - \boldsymbol{k}|}{\omega_3 - \omega}\right)^2 \ll \Delta\varepsilon\left|\frac{\chi_\infty^{(2)}}{\Delta\chi^{(2)}}\right| = 4\pi\frac{|\Delta\chi^{(2)}\chi_\infty^{(2)}|}{\Delta\chi^{(3)}}, \tag{35}$$

то наблюдаемый спектр повторяет по существу [1]) равновесный $\widetilde{\omega}\widetilde{\boldsymbol{k}}$-спектр (§ 4.2). Таким образом, «фоновая» квадратичная восприимчивость $\chi_\infty^{(2)}$, обусловленная чисто электронной нелинейностью или соседними решеточными резонансами, позволяет наблюдать в области малых углов рассеяния линии, запрещенные ($\Delta\chi^{(3)} = 0$) в обычном ($\vartheta \sim 90°$) КР, но дающие вклад в линейную восприимчивость ($\Delta\varepsilon \neq 0$). Этот случай можно назвать аномальным резонансом [71], так как спектр при этом описывается обычной связью (27)

[1]) Дополнительную плавную зависимость от угла рассеяния дают свертки тензоров восприимчивости с ортами поляризации.

между волновым вектором и комплексной диэлектрической проницаемостью, соответствующей закону дисперсии с аномальным участком ($d\tilde{n}/d\tilde{\omega} < 0$).

Следует заметить, что понятие закона дисперсии при наличии поглощения неоднозначно, и различные условия эксперимента могут давать различные связи $\omega(k)$. «Динамические» измерения с внешними источниками приводят к аномальному закону дисперсии согласно (27), при котором показатель преломления ограничен. При описании или наблюдении РП можно исходить из условий $\partial f/\partial x = 0$ или $\partial f/\partial y = 0$ или еще каких-либо определений. Первое условие, соответствующее «свипированию» частоты при постоянном угле рассеяния, согласно (33) дает «нормальный» закон дисперсии $y = a/x$ с неограниченным показателем преломления холостой волны, а второе дает связь (ср. (4.2.26))

$$y(x) = \frac{a}{x + 1/(x+b)}. \tag{36}$$

Эта связь при $b = 0$ дает аномальную дисперсию, а при $b = \infty$ — нормальную.

Отметим также, что спектр (33) не содержит благодаря связи (32) максимума при $\tilde{\omega} = \omega_0$, $\vartheta \sim 0$ (так называемая «перемычка» — см. § 1.2).

Закон Кирхгофа для ПР и РП. Формула (25) выражает интенсивность рассеянного света через показатель усиления пробной волны. Существует более общая связь между спонтанными и вынужденными эффектами, которую можно найти с помощью кинетического уравнения. В приближении заданной накачки ПР при поглощении на холостой частоте (т. е. рассеяние на поляритонах, РП) описывается следующим эффективным гамильтонианом (ср. (4.5.11), (5.4.1), (5.4.39), (6.4.1)):

$$\mathscr{V}_{\text{эф}} = \sum_{j=1}^{M} \sigma_j^+ f_j + \text{э. с.}, \tag{37}$$

$$f_j = \sum_{k_1} c_{j1} e^{-i\omega_3 t} a_1^+ + \sum_{k_2} c_{j2} a_2, \tag{38}$$

где $k_1 \equiv 1$, $k_2 \equiv 2$. Второе слагаемое в (38) соответствует поглощению холостого фотона j-й молекулой, а первое, пропорциональное амплитуде поля накачки,— рождению сигнального фотона, которое также сопровождается возбуждением j-й молекулы.

Подставив (37) в (4.5.9), мы получим кинетическое уравнение для среднего значения произвольного оператора поля. Выберем в качестве этого оператора характеристический оператор:

$$\hat{\chi}(\boldsymbol{\mu}_1\boldsymbol{\mu}_2) = \hat{\chi}^+(-\boldsymbol{\mu}_1, -\boldsymbol{\mu}_2) = \exp(\boldsymbol{\mu}_1 \cdot \boldsymbol{a}_1^+ + \boldsymbol{\mu}_2 \cdot \boldsymbol{a}_2^+) \times$$
$$\times \exp(-\boldsymbol{\mu}_1^* \cdot \boldsymbol{a}_1 - \boldsymbol{\mu}_2^* \cdot \boldsymbol{a}_2). \tag{39}$$

С помощью коммутаторов (4.5.16) находим следующее кинетическое уравнение для функции $\chi = \langle\hat{\chi}\rangle$:

$$\frac{\partial\chi}{\partial t} = \left\{(-\boldsymbol{\mu}_1^* \cdot \boldsymbol{w}_{11}^* + \boldsymbol{\mu}_2 \cdot \boldsymbol{w}_{21}) \cdot \left[\boldsymbol{\mu}_1(\mathcal{N}_0 + 1) - \frac{\partial}{\partial\boldsymbol{\mu}_1^*}\right] + \right.$$
$$\left. + (\boldsymbol{\mu}_2 \cdot \boldsymbol{w}_{22} - \boldsymbol{\mu}_1^* \cdot \boldsymbol{w}_{12}^*) \cdot \left[\boldsymbol{\mu}_2^* \mathcal{N}_0 + \frac{\partial}{\partial\boldsymbol{\mu}_2}\right] + \text{к. с.}\right\}\chi, \tag{40}$$

$$(\boldsymbol{w}_{11}^*)_{k_1k_1'} \equiv \hbar^{-2} e^{i(\omega_1-\omega_1')t} \sum_j \frac{\Delta\rho c_{j1} c_{j1'}^*}{i(\omega_3 - \omega_1' - \omega_0) + \varepsilon},$$
$$-(\boldsymbol{w}_{22})_{k_2k_2'} \equiv \hbar^{-2} e^{i(\omega_2'-\omega_2)t} \sum_j \frac{\Delta\rho c_{j2} c_{j2'}^*}{i(\omega_2' - \omega_0) + \varepsilon},$$
$$(\boldsymbol{w}_{12}^*)_{k_1k_2} \equiv \hbar^{-2} e^{i(\omega_1+\omega_2-\omega_3)t} \sum_j \frac{\Delta\rho c_{j1} c_{j2}^*}{i(\omega_2 - \omega_0) + \varepsilon}, \tag{41}$$
$$-(\boldsymbol{w}_{21})_{k_2k_1} \equiv \hbar^{-2} e^{i(\omega_3-\omega_2-\omega_1)t} \sum \frac{\Delta\rho c_{j2} c_{j1}^*}{i(\omega_3 - \omega_1 - \omega_0) + \varepsilon},$$

$\Delta\rho$ — относительная разность населенностей, ω_0 — собственная частота молекул и $\mathcal{N}_0$ — соответствующий ей температурный множитель.

Из (41) и (4.5.21) следуют кинетические уравнения для медленно-меняющихся первых моментов:

$$\frac{d\langle\boldsymbol{a}_1\rangle^*}{dt} = \boldsymbol{w}_{11} \cdot \langle\boldsymbol{a}_1\rangle^* + \boldsymbol{w}_{12} \cdot \langle\boldsymbol{a}_2\rangle, \tag{42}$$

$$\frac{d\langle\boldsymbol{a}_2\rangle^*}{dt} = \boldsymbol{w}_{21} \cdot \langle\boldsymbol{a}_1\rangle + \boldsymbol{w}_{22} \cdot \langle\boldsymbol{a}_2\rangle^*. \tag{43}$$

Образуем составные вектор и матрицу:

$$\boldsymbol{z} \equiv \{\langle\boldsymbol{a}_1\rangle, \langle\boldsymbol{a}_2\rangle^*\}, \quad \boldsymbol{W} \equiv \begin{Bmatrix} \boldsymbol{w}_{11}^* & \boldsymbol{w}_{12}^* \\ \boldsymbol{w}_{21} & \boldsymbol{w}_{22} \end{Bmatrix}, \tag{44}$$

тогда (42), (43) примут вид

$$\frac{d\boldsymbol{z}}{dt} = \boldsymbol{W} \cdot \boldsymbol{z}. \tag{45}$$

Определим также составную матрицу вторых моментов:

$$\boldsymbol{N} = \boldsymbol{N}^+ \equiv \begin{Bmatrix} \widetilde{\boldsymbol{N}}_1 + \mathcal{N}_0 + \boldsymbol{I} & \boldsymbol{K}^+ \\ \boldsymbol{K} & \boldsymbol{N}_2 - \mathcal{N}_0 \end{Bmatrix}, \tag{46}$$

$$(N_1)_{k_1k_1'} = \langle a_1^+ a_{1'}\rangle, \quad (N_2)_{k_2k_2'} = \langle a_2^+ a_{2'}\rangle, \quad K_{k_1k_2} = \langle a_1 a_2\rangle^*, \tag{47}$$

тогда кинетические уравнения для вторых моментов, следующие из (40), можно представить в виде

$$\frac{d\boldsymbol{N}}{dt} = \boldsymbol{W} \cdot \boldsymbol{N} + \boldsymbol{N} \cdot \boldsymbol{W}^+. \tag{48}$$

Решения уравнений (45) и (48) можно выразить через одну и ту же матрицу $\mathscr{U}(t-t_0)$, удовлетворяющую уравнению (45) при начальном значении $\mathscr{U}(0)=\boldsymbol{I}$ (ср. (4.5.27)):

$$\boldsymbol{z}(t)=\mathscr{U}(t-t_0)\cdot\boldsymbol{z}(t_0), \tag{49}$$

$$\boldsymbol{N}(t)=\mathscr{U}(t-t_0)\cdot\boldsymbol{N}(t_0)\cdot\mathscr{U}^{+}(t-t_0). \tag{50}$$

Матрица рассеяния (МР) $\boldsymbol{U}$ определяется матрицей $\mathscr{U}$ при $-t_0=\infty$ следующим образом:

$$\boldsymbol{U}\equiv\begin{Bmatrix}\mathscr{U}_{11}^{*} & \mathscr{U}_{12}^{*}\\ \mathscr{U}_{21} & \mathscr{U}_{22}\end{Bmatrix}.$$

МР связывает первые моменты выходного и входного полей:

$$\begin{aligned}\langle\boldsymbol{a}_1'\rangle^{*}&=\boldsymbol{U}_{11}\cdot\langle\boldsymbol{a}_1\rangle^{*}+\boldsymbol{U}_{12}\cdot\langle\boldsymbol{a}_2\rangle,\\ \langle\boldsymbol{a}_2'\rangle^{*}&=\boldsymbol{U}_{21}\cdot\langle\boldsymbol{a}_1\rangle+\boldsymbol{U}_{22}\cdot\langle\boldsymbol{a}_2\rangle^{*}.\end{aligned} \tag{51}$$

Из (46) и (50) следует «поляритонный» ОЗК (полагаем, что на входе сигнальные и холостые поля не коррелируют):

$$\begin{aligned}\boldsymbol{N}_1'&=\boldsymbol{U}_{11}\cdot(\boldsymbol{N}_1+\mathscr{N}_0+\boldsymbol{I})\cdot\boldsymbol{U}_{11}^{+}+\boldsymbol{U}_{12}\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_2-\mathscr{N}_0)\cdot\boldsymbol{U}_{12}^{+}-\mathscr{N}_0-\boldsymbol{I},\\ \boldsymbol{N}_2'&=\boldsymbol{U}_{21}\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_1+\mathscr{N}_0+\boldsymbol{I})\cdot\boldsymbol{U}_{21}^{+}+\boldsymbol{U}_{22}\cdot(\boldsymbol{N}_2-\mathscr{N}_0)\cdot\boldsymbol{U}_{22}^{+}+\mathscr{N}_0,\\ \boldsymbol{K}'&\equiv\boldsymbol{U}_{21}\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_1+\mathscr{N}_0+\boldsymbol{I})\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_{11}+\boldsymbol{U}_{22}\cdot(\boldsymbol{N}_2-\mathscr{N}_0)\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_{12},\end{aligned} \tag{52}$$

где $\boldsymbol{K}\equiv\langle\boldsymbol{a}_2\boldsymbol{a}_1\rangle^{*}$. Пусть $\alpha+\beta=1$, $\boldsymbol{\alpha}=\alpha\boldsymbol{I}$, $\boldsymbol{\beta}=\beta\boldsymbol{I}$, тогда эти соотношения можно переписать в следующей форме (ср. (4.4.9)):

$$\begin{aligned}\boldsymbol{N}_1'+\boldsymbol{\alpha}&=\boldsymbol{U}_{11}\cdot(\boldsymbol{N}_1+\boldsymbol{\alpha})\cdot\boldsymbol{U}_{11}^{+}+\boldsymbol{U}_{12}\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_2+\boldsymbol{\beta})\cdot\boldsymbol{U}_{12}^{+}+\\ &\quad+(\mathscr{N}_0+\boldsymbol{\beta})(\boldsymbol{U}_{11}\cdot\boldsymbol{U}_{11}^{+}-\boldsymbol{U}_{12}\cdot\boldsymbol{U}_{12}^{+}-\boldsymbol{I}),\\ \boldsymbol{N}_2'+\boldsymbol{\beta}&=\boldsymbol{U}_{21}\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_1+\boldsymbol{\alpha})\cdot\boldsymbol{U}_{21}^{+}+\boldsymbol{U}_{22}\cdot(\boldsymbol{N}_2+\boldsymbol{\beta})\cdot\boldsymbol{U}_{22}^{+}+\\ &\quad+(\mathscr{N}_0+\boldsymbol{\beta})(\boldsymbol{U}_{21}\cdot\boldsymbol{U}_{21}^{+}-\boldsymbol{U}_{22}\cdot\boldsymbol{U}_{22}^{+}+\boldsymbol{I}),\\ \boldsymbol{K}'&=\boldsymbol{U}_{21}\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_1+\boldsymbol{\alpha})\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_{11}+\boldsymbol{U}_{22}\cdot(\boldsymbol{N}_2+\boldsymbol{\beta})\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_{12}+\\ &\quad+(\mathscr{N}_0+\boldsymbol{\beta})(\boldsymbol{U}_{21}\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_{11}-\boldsymbol{U}_{22}\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_{12}).\end{aligned} \tag{53}$$

Далее, уравнение (40) имеет решение

$$\chi(t)=\exp[-\boldsymbol{\mu}_1\cdot\boldsymbol{N}_1(t)\cdot\boldsymbol{\mu}_1^{*}-\boldsymbol{\mu}_2\cdot\boldsymbol{N}_2(t)\cdot\boldsymbol{\mu}_2^{*}+\\ +\boldsymbol{\mu}_1\cdot\boldsymbol{K}(t)\cdot\boldsymbol{\mu}_2+\boldsymbol{\mu}_1^{*}\cdot\boldsymbol{K}^{*}(t)\cdot\boldsymbol{\mu}_2^{*}]$$

при условии, что матричные функции $\boldsymbol{N}_1$, $\boldsymbol{N}_2$, $\boldsymbol{K}$ удовлетворяют уравнению (48). Таким образом, в случае гауссова падающего поля выходное поле является «квазигауссовым» (см. (6.5.10)) с

χ-функцией, определяемой МР и температурным множителем:

$$\chi' = \chi(\infty) = \exp(-\boldsymbol{\mu}_1 \cdot \boldsymbol{N}_1' \cdot \boldsymbol{\mu}_1^* - \boldsymbol{\mu}_2 \cdot \boldsymbol{N}_2' \cdot \boldsymbol{\mu}_2^* + \\ + \boldsymbol{\mu}_1 \cdot \boldsymbol{K}' \cdot \boldsymbol{\mu}_2 + \boldsymbol{\mu}_1^* \cdot \boldsymbol{K}'^* \cdot \boldsymbol{\mu}_2^*). \quad (54)$$

Такая же инвариантность вида χ-функции имеет место и для смещенного квазигауссова распределения.

Из (54) легко определяется четвертый момент, описывающий корреляцию сигнальных и холостых фотонов:

$$\langle a_1^+ a_{1'} a_2^+ a_{2'} \rangle' = N_{11'}' N_{22'}' + K_{12} K_{1'2'}^*. \quad (55)$$

Полученные формулы описывают как два крайних случая ПР и РП. При ПР унитарность матрицы преобразования приводит к исчезновению последних слагаемых в (53), так что (53) совпадает с (6.5.12), (6.5.13). В случае же сильного поглощения на холостой частоте $\boldsymbol{U}_{12} = \boldsymbol{U}_{22} = 0$, так что из (52) следует

$$\begin{aligned} \boldsymbol{N}_1' &= \boldsymbol{U}_{11} \cdot (\boldsymbol{N}_1 + \mathcal{N}_0 + \boldsymbol{I}) \cdot \boldsymbol{U}_{11}^+ - \mathcal{N}_0 - \boldsymbol{I}, \\ \boldsymbol{N}_2' &= \boldsymbol{U}_{21} \cdot (\widetilde{\boldsymbol{N}}_1 + \mathcal{N}_0 + \boldsymbol{I}) \cdot \boldsymbol{U}_{21}^+ + \mathcal{N}_0, \\ \boldsymbol{K}' &= \boldsymbol{U}_{21} \cdot (\widetilde{\boldsymbol{N}}_1 + \mathcal{N}_0 + \boldsymbol{I}) \cdot \boldsymbol{U}_{11}^+. \end{aligned} \quad (56)$$

При этом $|U_{21}| \ll |U_{11}|$ (так как холостые фотоны излучаются лишь поверхностными слоями образца с толщиной α_2^{-1}) и относительное число совпадений холостых и сигнальных фотонов мало.

ГЛАВА 7

ГИПЕРПАРАМЕТРИЧЕСКОЕ И КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЯ

При феноменологическом подходе кубическая поляризуемость среды $\chi^{(3)}$ описывает как параметрические четырехфотонные процессы, так и двухфотонные переходы типа рамановских. Сперва в § 7.1 мы рассмотрим «чистое» гиперпараметрическое рассеяние (ГПР) за счет действительной нерезонансной части $\chi_{\infty}^{(3)}$ [89], а также двухкаскадное рассеяние за счет $\chi^{(2)}$ [130]. Интенсивность ГПР пропорциональна $|\chi^{(3)}|^2$ и резко возрастает в резонансных областях. В этих же областях становятся существенными и непараметрические виды рассеяния, описываемые мнимой частью $\chi^{(3)}$ и зависящие от температуры вещества. В § 7.2 с помощью одномерной модели будут рассмотрены основные особенности ГПР в области резонанса на разностной частоте $\omega_i \approx \omega_0$, где ГПР переходит в ККР — когерентное комбинационное рассеяние, пропорциональное в первом приближении квадрату интенсивности накачки и дающее направленное по конусу излучение на антистоксовой частоте $\omega_L + \omega_0$ [136]. Далее, в § 7.3 мы с помощью более общего феноменологического подхода сформулируем обобщенный закон Кирхгофа (ОЗК) для процесса КР с учетом параметрических эффектов, из которого, в частности, следует существование статистической связи между стоксовым и антистоксовым полем рассеяния [137].

§ 7.1. Нерезонансное ГПР

По определению ГПР отличается от ПР участием в элементарном процессе еще одного фотона накачки:

$$\omega_L + \omega_L' \to \omega + \tilde{\omega}, \quad \boldsymbol{k}_L + \boldsymbol{k}_L' \approx \boldsymbol{k} + \tilde{\boldsymbol{k}}. \tag{1}$$

Поле накачки может быть в общем случае бигармоническим ($\omega_L \neq \omega_L'$) и (или) двухлучевым ($\boldsymbol{k}_L \neq \boldsymbol{k}_L'$). С макроскопической точки зрения ГПР также можно описывать в терминах нелинейной поляризуемости среды.

Центросимметричная среда. В такой среде $\chi^{(2)} = 0$ и ГПР можно считать результатом преобразования нулевых флуктуаций вакуума из холостых мод в сигнальные за счет кубической поляризуемости среды $\chi^{(3)}(\bar{\omega}\omega_L\omega_L'\tilde{\bar{\omega}})$, так что все соотношения предыду-

щей главы в приближении заданной накачки охватывают и ГПР при замене $\chi^{(2)} \to \chi^{(3)} \cdot E_L'$, $\Delta \boldsymbol{k} \to \Delta \boldsymbol{k} + \boldsymbol{k}_L'$.

В отличие от $\chi^{(2)}$ кубическая макроскопическая нелинейность среды отлична от нуля и в центросимметричных кристаллах, жидкостях, газах, плазме. Кроме того, условие четырехволнового синхронизма (1) выполняется в широком интервале частот и углов даже в полосе прозрачности изотропных образцов. В вырожденном случае ($\omega \sim \tilde{\omega} \sim \omega_L = \omega_L'$, $\boldsymbol{k}_L = \boldsymbol{k}_L'$) угол рассеяния ϑ приблизительно пропорционален разности между частотой сигнала и накачки:

$$\vartheta(\omega) = \sqrt{\frac{1}{k_L} \frac{d^2 k_L}{d\omega^2}} (\omega - \omega_L), \tag{2}$$

где производная берется на частоте накачки.

Легко показать, что мощность наблюдаемого сигнала определяется следующими выражениями (ср. (6.2.10) и (6.2.16)):

$$\frac{d\mathcal{P}}{d\Omega} = \frac{4\pi^2 \hbar \omega^4 \tilde{\omega} n \chi^{(3)\,2}}{c^6 \tilde{n} n_L n_L' \,|\, u^{-1} - \tilde{u}^{-1} \,|} S_L S_L' V, \tag{3}$$

$$\frac{d\mathcal{P}}{d\omega} = \frac{8\pi^3 \hbar \omega^3 \tilde{\omega}^2 \overline{\chi^{(3)\,2}}}{c^6 n_L n_L' \,|\, \boldsymbol{k}_L + \boldsymbol{k}_L' \,|} S_L S_L' V. \tag{4}$$

Оценим (4) в вырожденном случае при фокусировке накачки с дифракционной расходимостью. При этом $S_L^2 \approx 2\mathcal{P}_L\, n_L/\lambda_L$. Пусть $\mathcal{P}_L = 1$ МВт, $\lambda \sim \tilde{\lambda} \sim \lambda_L = 0{,}7$ мкм, $\chi^{(3)} = 10^{-13}$ см^3/эрг, тогда за время $\tau = 10^{-8}$ с в спектральный интервал 1 см$^{-1}$ рассеется

$$\frac{\lambda \tau}{\hbar} \frac{d\mathcal{P}}{d\omega} = \frac{(2\pi)^7 \chi^{(3)\,2} \mathcal{P}_L^2 \tau}{c\lambda^4} \sim 10^3 \text{ фотонов.}$$

Это количество фотонов довольно легко обнаружимо, особенно если использовать корреляцию сигнальных и холостых фотонов для дискриминации с паразитными эффектами.

ГПР в пьезокристаллах. Каскадное ГПР, упоминавшееся уже в § 1.3, описывается вторым порядком теории возмущения с эффективной энергией $\chi^{(2)} E^3$, и его можно представить как результат двух последовательных трехфотонных процессов. «Виртуальным» фотоном может служить фотон второй гармоники падающего излучения, распадающийся на втором этапе на сигнальный и холостой фотоны:

$$\omega_L + \omega_L \to \omega_2, \quad \omega_2 \to \omega + \tilde{\omega} \quad (2\omega_L \equiv \omega_2)$$

или фотон разностной («холостой» при ПР) частоты, дающий в сумме с накачкой сигнальный фотон:

$$\omega_L \to \tilde{\omega} + \omega_i, \quad \omega_L \pm \omega_i \to \omega.$$

Частота сигнала ω может лежать или в стоксовой области $\omega \equiv \omega_s < \omega_L$ (при этом $\tilde{\omega} \equiv \omega_a$) или в антистоксовой ($\omega \equiv \omega_a$, $\tilde{\omega} \equiv \omega_s$).

Вычислим рассеянное поле в рамках одномерной модели с заданной монохроматической накачкой при учете всех трех каналов — двух каскадных и прямого (за счет кубической нелинейности $\chi^{(3)}$). Будем исходить из уравнений Максвелла с нелинейной поляризацией (6.5.14). Так как среда обладает нелинейностью лишь в пределах плоскопараллельного слоя и рассматривается стационарная задача, то медленно-меняющиеся амплитуды зависят от одной переменной z:

$$E^{(+)}(\boldsymbol{r}t) = \sum E_n(z) \exp(i\boldsymbol{k}_n \cdot \boldsymbol{r} - i\omega_n t). \tag{5}$$

Здесь $n = L, 2, i, s, a$ (индексы относятся соответственно к частотам накачки, второй гармоники, разностной, стоксовой и антистоксовой волн). Амплитуда накачки является классической и заданной величиной. Остальные четыре амплитуды связаны следующими уравнениями:

$$\frac{dE_2}{dz} = i\beta_{2L} e^{i\Delta_2 z} E_L, \tag{6}$$

$$\frac{dE_i}{dz} = i\beta_{is} e^{i\Delta_s z} E_s^+ + i\beta_{ia}^* e^{-i\Delta_a z} E_a, \tag{7}$$

$$\frac{dE_s}{dz} = i\beta_{si} e^{i\Delta_s z} E_i^+ + i(\beta_{sa}' e^{i\Delta' z} + \beta_{sa}'' e^{i\Delta z}) E_a^+, \tag{8}$$

$$\frac{dE_a}{dz} = i\beta_{ai} e^{i\Delta_a z} E_i + i(\beta_{as}' e^{i\Delta' z} + \beta_{as}'' e^{i\Delta z}) E_s^+, \tag{9}$$

где

$$\beta_{mn} = b_m \chi_{mn}^{(2)} E_L, \quad \beta_{mn}' = b_m \chi_{mn}^{(2)} E_2, \quad \beta_{mn}'' = b_m \chi_{mn}^{(3)} E_L^2,$$

$$b_m = 2\pi\omega_m / c\bar{n}_m, \quad \bar{n}_m = n_m \cos\rho_m \cos\theta_m,$$

$$\Delta_s = k_L - k_{sz} - k_{iz}, \quad \Delta' = k_{2z} - k_{sz} - k_{az}, \quad \Delta_2 = 2k_L - k_{2z},$$

$$\Delta_a = k_L - k_{az} + k_{iz}, \quad \Delta = 2k_L - k_{az} - k_{sz} = \Delta_s + \Delta_a = \Delta_2 + \Delta',$$

χ_{mn} — свертки тензоров нелинейной поляризуемости с соответствующими ортами, ρ — угол между лучевым и волновым вектором, θ — угол между лучевым вектором и осью z. В бесконечном слое стационарно взаимодействуют лишь волны, удовлетворяющие законам сохранения поперечного импульса ($\boldsymbol{q}_L - \boldsymbol{q}_s - \boldsymbol{q}_i = 0, \ldots$) и частоты ($\omega_L - \omega_s - \omega_i = 0, \ldots$). Задание частоты, направления и типа поляризации наблюдаемой волны (например, ω_a, $\boldsymbol{q}_a$, ν) и накачки вместе с законом дисперсии $\omega_\nu(\boldsymbol{k})$ оставляет неопределенными только поляризации и знаки продольных компонент волновых векторов остальных трех волн. Обычно волновые расстройки минимальны для прямых волн ($\theta_n < \pi/2$) и для определен-

ных комбинаций типов поляризаций (например, $2k_L^o = k_2^e = k_a^o + k_s^o$ в отрицательном одноосном кристалле), поэтому опущены индексы поляризации и не учтена связь с обратными волнами.

Согласно (6) волна второй гармоники независима от остальных волн:

$$E_2(z) = i\beta_{2L}E_L \int\limits_{-l/2}^{z} dz' e^{i\Delta_2 z'}. \tag{10}$$

Чтобы найти амплитуды спонтанно рассеянного поля, например, на стоксовой частоте, достаточно найти коэффициенты преобразования $\bar{U}'_{si}$ и $\bar{U}_{sa}$, связывающие выходную амплитуду $E_s(l/2)$ с отрицательно-частотными входными амплитудами $E_i^+(-l/2)$ и $E_a^+(-l/2)$. Полагая поэтому $E_n(-l/2) \equiv 0$, найдем из (7), (8) в первом порядке по амплитуде накачки следующие амплитуды:

$$E_s^{(1)}(z) = i\beta_{si}E_i^+\left(-\frac{l}{2}\right) \int\limits_{-l/2}^{z} dz' e^{i\Delta_s z'}, \tag{11}$$

$$E_i^{(1)}(z) = i\beta_{is}E_s^+\left(-\frac{l}{2}\right) \int\limits_{-l/2}^{z} dz' e^{i\Delta_s z'}, \tag{12}$$

$$E_i^{(1)+}(z) = -i\beta_{ia}E_a^+\left(-\frac{l}{2}\right) \int\limits_{-l/2}^{z} dz' e^{i\Delta_a z'}. \tag{13}$$

Подставив далее (11) — (13) в (8), (9), получим с точностью до слагаемых порядка E_L^2:

$$E'_s = \bar{U}_{si}E_i^+ + \bar{U}_{sa}E_a^+, \quad E'_a = \bar{U}_{as}E_s^+, \tag{14}$$

где

$$\bar{U}_{si} \equiv i\beta_{si}l \operatorname{sinc}(x_s), \tag{15}$$

$$\bar{U}_{sa} \equiv \frac{1}{2}\beta_{si}\beta_{ia}l^2 g(x_s, x_a) - \frac{1}{2}\beta_{sa}\beta_{2L}l^2 g(x', x_2) + i\beta''_{sa}l \operatorname{sinc}(x), \tag{16}$$

$$\bar{U}_{as} \equiv -\frac{1}{2}\beta_{as}\beta_{is}l^2 g(x_a, x_s) - \frac{1}{2}\beta_{as}\beta_{2L}l^2 g(x', x_2) + i\beta''_{as}l \operatorname{sinc}(x), \tag{17}$$

$$g(x, y) \equiv \frac{1}{2}\int\limits_{-1}^{1} dz e^{ixz} \int\limits_{-1}^{z} dz' e^{iyz'} =$$

$$= i\,\frac{\operatorname{sinc}(x)\,e^{-iy} - \operatorname{sinc}(y)\,e^{ix}}{x+y} = i\,\frac{\operatorname{sinc}(x)\,e^{-iy} - \operatorname{sinc}(x+y)}{y}, \tag{18}$$

$$E'_n \equiv E_n\left(\frac{l}{2}\right), \quad E_n \equiv E_n\left(-\frac{l}{2}\right), \quad x_n \equiv \frac{1}{2}\Delta_n l.$$

Формула (15) определяет амплитуду ПР. Функция $|g(xy)|$ в общем случае имеет три резонансных максимума. В области резонанса она выражается через функцию sinc (x) следующим образом:

$$|g(xy)| \approx \begin{cases} \left|\dfrac{\operatorname{sinc}(x)}{y}\right| & (|y| \gg |x|), \\ \left|\dfrac{\operatorname{sinc}(y)}{x}\right| & (|x| \gg |y|), \\ \left|\dfrac{\operatorname{sinc}(x+y)}{y}\right| & (|x| \gg |x+y|). \end{cases} \tag{19}$$

Таким образом, при ГПР в пьезокристаллах связь между частотой и направлением рассеяния определяется четырьмя возможными условиями синхронизма, при которых обращается в нуль одна из продольных волновых расстроек Δ_s, Δ_a, Δ' или Δ (рис. 9).

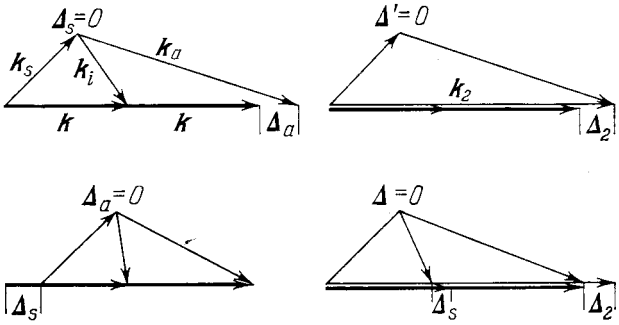

Рис. 9. Четыре типа синхронизма при гиперпараметрическом рассеянии в пьезокристаллах.

В последний волновой резонанс вносят вклад все три канала ГПР. Наибольшей величины эффект достигает в случае двойного синхронизма, когда одновременно $\Delta_2 = \Delta' = 0$ (или $\Delta_s = \Delta_a = 0$), так что $g(xy) = 1$.

Сравним с помощью (14) — (19) амплитуды различных каналов рассеяния в случае однократного резонанса, когда функция g имеет порядок $2/\Delta_n l$, где Δ_n — волновая расстройка для несинхронного этапа процесса. Отношение амплитуды каскадного ГПР к амплитуде ПР имеет порядок β/Δ_n (при двойном резонансе βl). Например, в ниобате лития $\beta \sim 1$ см$^{-1}$ при $S_L = 10$ МВт/см^2 (последнее число уменьшается на четыре порядка, если орты поляризации всех волн, участвующих в процессе, параллельны оси симметрии кристалла). Для волн одной поляризации и малых углов рассеяния Δ_n может превышать 10^3 см$^{-1}$; при различной же поляризации Δ_n может быть много меньше.

Отношение амплитуд ГПР на антистоксовой частоте за счет каскадного и прямого процессов при $\Delta = 0$ имеет порядок $(4\pi^2/\lambda_i\Delta_a)\ (\chi^{(2)2}/\chi^{(3)})$. Пусть, например, $\chi^{(2)} = 10^{-8}$ см$^{3/2}$/эрг$^{1/2}$, $\chi^{(3)} = 10^{-15}$ см^3/эрг, $\Delta_a = 10^2$ см$^{-1}$ и $\lambda_i = 4$ мкм, тогда это отношение равно 10^2.

Таким образом, каскадные процессы за счет $\chi^{(2)2}$ даже при одинарном резонансе могут давать преобладающий вклад в ГПР в пьезокристаллах. Заметим, что этот вывод не распространяется на двухлучевые эксперименты, в которых направления $\boldsymbol{k}_L$ и $\boldsymbol{k}'_L$ составляют большой угол, так что невозможно выполнение условия виртуального синхронизма для поперечного импульса (последний в случае лучей накачки с гауссовым профилем должен выполняться с экспоненциальной точностью — в отличие от продольного).

Интенсивность ГПР в пьезокристаллах. Рассмотрим связь между интенсивностью рассеянного света и коэффициентами преобразования $\bar{U}_{mn}$ по отношению к медленно-меняющимся амплитудам $E_n(z)$. Эти амплитуды являются по существу $(\omega \boldsymbol{q} z)$-представлением (см. § 6.5), и их связь с операторами a_k можно найти из определений:

$$E^{(+)}(\boldsymbol{r}t) = iv^{-1}\int d\boldsymbol{k} c_k a_k e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} - i\omega_k t} = iv^{-2/3}\int d\omega d\boldsymbol{q} E(\omega\boldsymbol{q})\, e^{i\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r} - i\omega t}. \quad (20)$$

Так как $\partial\omega/\partial k_z = u_{kz}$, то

$$E(\omega\boldsymbol{q}) = ic_k v^{-1/3} u_{kz}^{-1} a_k, \quad (21)$$

$$[E(\omega\boldsymbol{q}),\ E^+(\omega'\boldsymbol{q}')] = \frac{\hbar\omega v^{4/3}}{4\pi^2 c\bar{n}}\,\delta(\omega - \omega')\,\delta^{(2)}(\boldsymbol{q} - \boldsymbol{q}') \quad (22)$$

(здесь использованы соотношения (3.4.35)). Из (21) находим связь между матрицами рассеяния по отношению к $E(\omega\boldsymbol{q})$- и a_k-амплитудам:

$$\frac{U_{mn}}{\bar{U}_{mn}} = \sqrt{\frac{(\omega/\bar{n}u_z)_n}{(\omega/\bar{n}u_z)_m}}\,. \quad (23)$$

Далее, аналогично (6.5.32) находим спектральную яркость:

$$S_{\omega\Omega}(\boldsymbol{k}_s) = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}}\left(|\bar{U}_{si}|^2\frac{\omega_i\bar{n}_s}{\omega_s\bar{n}_i} + |\bar{U}_{sa}|^2\frac{\omega_a\bar{n}_s}{\omega_s\bar{n}_a}\right). \quad (24)$$

Здесь первое слагаемое определяет яркость ПР в первом порядке по интенсивности накачки (оно совпадает с (6.5.32) при $\gamma l \ll 1$), а второе определяет квадратичные поправки, т. е. прямое и каскадное ГПР. Аналогично определяется и антистоксово рассеяние:

$$S_{\omega\Omega}(\boldsymbol{k}_a) = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}}|\bar{U}_{as}|^2\frac{\omega_s\bar{n}_a}{\omega_a\bar{n}_s}\,. \quad (25)$$

Для перехода к мощности $\mathscr{P}_{\omega\Omega}$ надо умножить (25) на $A_{\text{эф}}\cos\theta_a$, где в случае гауссова профиля луча накачки $A_{\text{эф}} = A/2 = \pi a^2/4$ (форма линии ГПР для этого случая рассмотрена в [130]). Далее

можно с помощью разложения Δ в ряд по частоте или углу рассеяния в области изолированного резонанса найти интегральные характеристики $\mathcal{P}_\omega$, $\mathcal{P}_\Omega$ так, как это было сделано в § 6.3 для линейного рассеяния.

Статистика каскадного ГПР. Каскадные трехфотонные параметрические процессы приводят к статистическому перемешиванию состояний a-, s- и i-мод выходного поля. В приближении классической накачки преобразование статистики падающего поля кристаллом линейно, и поэтому гауссова статистика переходит в квазигауссову (как и при однокаскадном ПР — см. § 6.5). Нетрудно выразить соответствующую χ-функцию через матрицу рассеяния U_{mn} (см. [133]). Поскольку i — a-взаимодействие связывает лишь моды с одинаковым знаком частоты, то взаимная статистика a- и i-мод будет оставаться гауссовой. В то же время s — i- и s — a-статистики становятся квазигауссовыми, и в случае вакуумного падающего поля и слабой накачки имеет место «корреляция фотонов», отличающаяся от «корреляции интенсивностей» отсутствием случайных совпадений:

$$\langle \hat{N}_i \hat{N}_s \rangle' = N_i' = N_s', \qquad \langle \hat{N}_a \hat{N}_s \rangle' = N_a'. \tag{26}$$

При этом отличен от нуля и шестой момент:

$$\langle \hat{N}_i \hat{N}_s \hat{N}_a \rangle' = 4 N_i' N_a'. \tag{27}$$

Таким образом, двухкаскадные параметрические преобразователи частоты света на пьезокристаллах позволяют, в принципе, наблюдать тройные совпадения фотонов. При этом не обязательно добиваться выполнения двойного синхронизма в одном кристалле, можно использовать два последовательно расположенных кристалла.

§ 7.2. Резонансное ГПР и комбинационное рассеяние

До сих пор предполагалось, что все рассматриваемые частоты, включая разностную $\omega_i = |\omega - \omega_L|$, далеки от собственных частот молекул ω_0, так что нелинейные поляризуемости были действительными и слабо зависящими от частоты величинами. При этом, как и в случае ПР, матрица рассеяния (МР), связывающая операторы падающих и излучаемых полей, должна быть унитарной, и интенсивность рассеянного поля не зависит от температуры вещества.

При резонансе хотя бы одной из частот все эти условия нарушаются. Из различных типов резонансов кубической поляризуемости, кратко рассмотренных в § 1.3, мы здесь остановимся подробнее лишь на случае рамановского резонанса $\omega_i \sim \omega_0$ в центросимметричной среде, когда ГПР является, по существу, квадратичной по

накачке поправкой к спонтанному комбинационному рассеянию (СКР). Эта поправка имеет заметную величину в области малых углов рассеяния ($\vartheta \sim 1°$), удовлетворяющих условию четырехволнового синхронизма (7.1.1). При увеличении интенсивности накачки линейная и квадратичная зависимости от накачки переходят в экспоненциальную, что соответствует ВКР и «гиперпараметрической сверхлюминесценции».

Проявление параметрических эффектов было замечено уже в первых экспериментах по ВКР в виде яркого антистоксова излучения с частотой $\omega_L + \omega_0$, направленного по конусу в соответствии с условиями синхронизма. Это когерентное комбинационное рассеяние (ККР) наглядно объясняется дифракцией накачки на бегущей решетке, образованной вынужденными колебаниями молекул. Макроскопически ККР описывается резонансной кубической поляризуемостью среды $\chi(\overline{\omega}_a\omega_L\omega_L\overline{\omega}_s)$, а микроскопически — распадом двух фотонов накачки на стоксов (s) и антистоксов (a) фотоны.

В области частотного ($\omega_i \sim \omega_0$) и волнового ($k_s + k_a \sim 2k_L$) резонансов надо рассматривать одновременно и четырехфотонные параметрические процессы и двухфотонные рамановские. При этом следует учитывать и два независимых источника «шума» — нулевые флуктуации падающего поля и тепловые колебания молекул (в стоксовом рассеянии играют роль и нулевые колебания молекул). Согласно рассмотренной ниже модели при больших интенсивностях накачки основной вклад в антистоксово излучение дают нулевые флуктуации поля (при $\hbar\omega_i \gtrsim \varkappa T$).

Уравнение для медленно-меняющихся операторов поля. Для выяснения основных особенностей ККР используем опять одномерную модель с заданной накачкой. Чтобы уменьшить число параметров, примем, что электронные частоты молекул много больше рассматриваемых частот поля, а последние много больше частоты изолированного молекулярного колебания ω_0, на котором происходит рассеяние. В этом случае s- и a-компоненты нелинейной поляризуемости отличаются только знаками мнимых частей, так что взаимодействие пары сопряженных (условиями стационарности и сохранения поперечного импульса) медленно-меняющихся амплитуд описывается следующими уравнениями:

$$\begin{gathered}\frac{dE_a}{dz} - i\beta\left(E_a + E_s^+ e^{-i\Delta z}\right) = ij_a e^{i(k_L - k_{az})z},\\ \frac{dE_s}{dz} - i\beta^*\left(E_s + E_a^+ e^{-i\Delta z}\right) = ij_s e^{i(k_L - k_{sz})z},\\ \beta(\omega_i) \equiv bE_L^2\left(\chi_\infty + \frac{\Delta\chi}{(\omega_0 - \omega_i)\tau - i}\right),\\ \Delta \equiv k_{sz} + k_{az} - 2k_L, \quad b \equiv 2\pi\omega_L/cn_L.\end{gathered} \tag{1}$$

(мы пренебрегаем отличием косинусов углов рассеяния и отношений ω_s/ω_L, $\bar{n}/n$, ... от единицы и считаем амплитуду накачки E_L действительной величиной). В правые части уравнений (1) добавлены ланжевеновы силы, пропорциональные случайным поляризациям: $j = bP(\omega \boldsymbol{q} z)\exp(-ik_L z)$, так что их корреляторы можно с помощью нелинейной ФДТ (2.4.53) выразить через температуру образца и мнимую часть кубической восприимчивости:

$$\begin{aligned} \langle j_a^+ j_a\rangle_{\omega qz} &= \langle j_s j_a\rangle_{\omega qz} = \hbar b\beta''\mathcal{N}_0/4\pi^3, \\ \langle j_s^+ j_s\rangle_{\omega qz} &= \langle j_a j_s\rangle_{\omega qz} = \hbar b\beta''(\mathcal{N}_0+1)/4\pi^3. \end{aligned} \tag{2}$$

Решение системы (1) удобно выразить через коэффициенты усиления $U(z)$ и преобразования $V(z)$, зависящие от длины взаимодействия:

$$\begin{aligned} E_a' &= U_a^*(l)E_a + V_a^*(l)E_s^+ + \\ &\quad + i\int_0^l dz e^{i(k_L-k_{az})z}[U_a^*(l-z)\,j_a(z) - V_a^*(l-z)\,j_s^+(z)], \\ U_a^*(z) &\equiv e^{-i\Delta z/2}\left(\operatorname{ch}\gamma z + i\frac{\beta+\Delta/2}{\gamma}\operatorname{sh}\gamma z\right), \\ V_a^*(z) &\equiv ie^{-i\Delta z/2}\frac{\beta}{\gamma}\operatorname{sh}\gamma z, \qquad \gamma = i\sqrt{\Delta(\beta+\Delta/4)}. \end{aligned} \tag{3}$$

Аналогичное выражение для s-амплитуды отличается заменой β на β^*.

Образуя с помощью (2), (3) нормально-упорядоченные моменты, найдем аналогично (7.1.25) спектральную яркость выходного поля $S_{\omega\Omega} = S_{\omega\Omega}^{\text{вак}}N'$, где

$$\begin{aligned} N_a' &= |U_a|^2N_a + |V_a|^2(N_s+1) + 2\beta''\mathcal{N}_0\int_0^l dz\,|U_a(z) - V_a(z)|^2 = \\ &= |U_a|^2N_a + |V_a|^2(N_s+1) + (1+|V_a|^2 - |U_a|^2)\mathcal{N}_0, \end{aligned} \tag{4}$$

$$N_s' = |U_s|^2N_s + |V_s|^2(N_a+1) + (|U_s|^2 - |V_s|^2 - 1)(\mathcal{N}_0+1). \tag{5}$$

Таким образом, спектр ВКР при учете параметрического взаимодействия s- и a-компонент полностью определяется коэффициентами U, V, описывающими вынужденные эффекты. Эта связь спонтанных ($N_a = N_s = 0$) и вынужденных эффектов выражает обобщенный закон Кирхгофа (ОЗК) для процесса рассеяния. Как мы увидим ниже, ОЗК выполняется не только в рамках одномерной модели. Формулы (4), (5) охватывают в качестве предельных случаев ГПР и КР.

Вакуумные шумы. Первые слагаемые в (4), (5) описывают резонансное ослабление или усиление падающего поля за счет совме-

стного действия вынужденных параметрических и комбинационных процессов.

Вторые слагаемые в отсутствие падающего поля имеют вид:

$$N'_{\text{вак}} = |V|^2 = \frac{1}{2}\left|\frac{\beta}{\gamma}\right|^2 (\operatorname{ch} 2\gamma' l - \cos 2\gamma'' l), \tag{6}$$

и их можно интерпретировать как результат преобразования нулевых флуктуаций вакуума из сопряженных мод в наблюдаемую.

Как нетрудно убедиться, «вакуумная» часть излучения (6) имеет заметную величину лишь при выполнении условия синхронизма $\Delta \sim 0$. При $\beta'' = 0$ (6) описывает чисто параметрический процесс (ГПР) с максимумом на перестроечной кривой $\Delta = 0$. При приближении к резонансной области излучение нарастает за счет роста $|\chi|$, причем при больших интенсивностях накачки должно наблюдаться «антипересечение» или «отталкивание» перестроечных кривых $\omega_i = \omega_0$ и $\Delta(\omega, \vartheta) = 0$ в плоскости (ω, ϑ).

В случае $|\Delta/\beta| \gg 1$

$$\gamma \approx -\beta'' + i\Delta/2, \tag{7}$$

так что (6) при слабой накачке ($\beta'' l \ll 1$) переходит в спонтанное ГПР:

$$N'_{\text{вак}} = |\beta l|^2 \operatorname{sinc}^2(\Delta l/2), \tag{8}$$

а при сильной — в

$$N'_{\text{вак}} = \left|\frac{\beta}{\Delta}\right|^2 e^{2|\beta''|l}. \tag{9}$$

В реальных экспериментах поперечный размер области взаимодействия определяется диаметром луча накачки a, и для непродольных мод под l в (9) следует понимать эффективную длину $a/\sin\vartheta$, что приводит к дополнительному угловому максимуму излучения при $\vartheta = 0$ («осевое» излучение).

Численный расчет показывает, что в области синхронизма ($|\Delta/\beta| \lesssim 1$) и при сильной накачке (когда $\beta''(\omega_0) \equiv \beta_0 \gg 1/l$) функция $N'_{\text{вак}}(\vartheta)$ имеет два максимума, разделенных провалом с шириной $\sim 8\beta_0 l$. Такое уменьшение эффективности взаимодействия при точном синхронизме характерно для рассматриваемого параметрического процесса [10]. Кроме углового расщепления максимума, имеет место и частотное с шириной порядка половины ширины линии при спонтанном КР. Из численного расчета следует, что максимальное значение функции (6) имеет порядок $0{,}05\, e^{2\beta_0 l}$ (при $\beta_0 l \gtrsim 2$ и $\chi_\infty = 0$).

Молекулярные шумы. Третьи слагаемые в (4), (5) пропорциональны мнимой части кубической поляризуемости. На антистоксо-

вых частотах флуктуации молекулярных колебаний дают

$$\frac{N'_{\text{мол}}}{\mathcal{N}_0} = 1 - \frac{\gamma''^2}{|\gamma|^2}\operatorname{ch} 2\gamma' l - \frac{\gamma''}{\Delta}\left(1 + \frac{\Delta^2}{4|\gamma|^2}\right)\operatorname{sh} 2\gamma' l - \\ - \frac{\gamma'^2}{|\gamma|^2}\cos 2\gamma'' l - \frac{\gamma'}{\Delta}\left(1 - \frac{\Delta^2}{4|\gamma|^2}\right)\sin 2\gamma'' l. \quad (10)$$

Стоксово излучение отличается заменой $\mathcal{N}_0$ на $\mathcal{N}_0 + 1$ и β на β^*.

При больших волновых расстройках (10) с учетом (7) переходит в (ср. (4.5.28))

$$N'_{a\,\text{мол}} = \mathcal{N}_0 (1 - e^{-2\beta'' l}), \quad (11)$$

$$N'_{s\,\text{мол}} = (\mathcal{N}_0 + 1)(e^{2\beta'' l} - 1). \quad (12)$$

Эти формулы описывают обычное КР в форме закона Кирхгофа. Антистоксова спектральная линия при увеличении интенсивности накачки уширяется, и в пределе среднее число фотонов в антистоксовых модах стремится к постоянному значению, равному числу фононов $\mathcal{N}_0$[1]). Стоксова линия, наоборот, сужается и сперва линейно, а потом экспоненциально нарастает.

В области синхронизма ($|\Delta/\beta| \lesssim 1$) при не слишком слабой накачке функция $N'_{a\,\text{мол}}(\omega\vartheta)/\mathcal{N}_0$ близка к функции $N'_{a\,\text{вак}}(\omega\vartheta)$ и также имеет два максимума в области пересечения линий $\Delta = 0$ и $\omega_i = \omega_0$. Таким образом, вынужденное антистоксово излучение в области синхронизма при $\mathcal{N}_0 \ll 1$ обусловлено флуктуациями вакуума, а при $\mathcal{N}_0 \gg 1$ — флуктуациями молекул. Однако при слабой накачке молекулярные шумы линейны по накачке ($N'_{a\,\text{мол}} = 2\beta'' l \mathcal{N}_0$), а вакуумные (8) — квадратичны.

Аналогичный анализ можно провести и для вынужденного релеевского рассеяния [136]. В этом случае $\omega_0 = 0$ и $\hbar\omega_0\mathcal{N}_0 \to \varkappa T$, так что вакуумные шумы не играют роли, а молекулярные при больших интенсивностях накачки дают светлое кольцо с частотой, равной или несколько меньшей частоты накачки.

§ 7.3. Корреляция стоксова и антистоксова излучения при КР

Классическая модель. Существование взаимной корреляции между стоксовыми (s) и антистоксовыми (a) частотными компонентами поля комбинационного рассеяния (КР) легко обосновать с помощью классической *модуляционной* модели КР. Пусть вещество состоит из двухатомных молекул. Вследствие теплового движения среднее расстояние между атомами $Q(t)$ является ква-

[1]) В случае КР на электронных переходах это явление можно использовать для генерации УФ-излучения с высокой эффективной температурой [172].

зимонохроматической функцией со средней частотой ω_0 и случайными амплитудой и фазой. Средний квадрат амплитуды соответствует энергии $\varkappa T$. При изменении Q изменяется и конфигурация электронного облака. Следовательно, электронная поляризуемость j-й молекулы по отношению к световому полю E_L также будет случайной функцией времени: $\alpha_j(t) = (\partial\alpha/\partial Q)\, Q_j(t)$.

В результате индуцированный падающим полем дипольный момент и излучаемое им вторичное поле будут представлять модулированное колебание:

$$E_j(t) \sim d_j(t) \sim Q_j(t) \cos(\omega_L t - \boldsymbol{k}_L \cdot \boldsymbol{r}_j). \tag{1}$$

Таким образом, верхняя E_{ja} и нижняя E_{js} боковые компоненты рассеянного одной молекулой поля пропорциональны одной и той же случайной функции $Q_j(t)$, поэтому их интенсивность будет флуктуировать синхронно.

В реальном эксперименте наблюдаемое поле создается огромным числом молекул, и вместо дискретных переменных $Q_j(t)$ надо рассматривать сплошное молекулярное «поле» $Q(\boldsymbol{r}t)$ или его фурье-образ $Q(\boldsymbol{k}\omega)$. Поле E_a с частотой ω_a в направлении $\boldsymbol{k}_a$ в дальней зоне пропорционально «своей» молекулярной гармонике $Q(\boldsymbol{k}_a - \boldsymbol{k}_L,\ \omega_a - \omega_L) \equiv Q_a$. Аналогично, E_s пропорционально $Q(\boldsymbol{k}_L - \boldsymbol{k}_s,\ \omega_L - \omega_s) \equiv Q_s$. Гармоники локализованных молекулярных колебаний δ-коррелированы, и поэтому E_a и E_s будут статистически связаны, лишь если они образованы одной и той же гармоникой ($Q_a = Q_s$), откуда следует условие синхронизма $\boldsymbol{k}_a - \boldsymbol{k}_L = \boldsymbol{k}_L - \boldsymbol{k}_s$.

Эта классическая модель не учитывает нулевых флуктуаций молекулярного и электромагнитного полей, а также параметрических и вынужденных процессов. Квантование молекулярного поля приводит к асимметрии боковых составляющих: $\langle E_s^2\rangle \sim \mathcal{N}_0 + 1$, $\langle E_a^2\rangle \sim \mathcal{N}_0$, так что

$$\langle E_a^2 E_s^2\rangle \sim \mathcal{N}_0(\mathcal{N}_0 + 1) = \frac{1}{4\,\mathrm{sh}^2\,(\hbar\omega_0/2\varkappa T)}, \tag{2}$$

а квантование электромагнитного поля и учет параметрической связи E_a и E_s дает, очевидно, сильную корреляцию фотонов за счет распада $2\omega_L \to \omega_s + \omega_a$ даже при нулевой температуре образца.

Феноменологическое описание. Для расчета этих эффектов можно воспользоваться макроскопическими нелинейными уравнениями Максвелла типа (7.2.1) с ланжевеновыми распределенными источниками. При этом классическая часть s — a-корреляции, зависящая от температуры образца, определяется нелинейной ФДТ (7.2.2), а квантовая часть является результатом нулевых флуктуаций молекул и падающего поля. Мы, однако, рассмотрим здесь более общий феноменологический подход, который позволит

сформулировать ОЗК для процесса КР, выражающий статистику рассеянного поля (включая s — a-корреляцию) через матрицу рассеяния (МР) возбужденного накачкой образца, линейную по отношению к слабому зондирующему полю.

Как и в § 4.4, разделим свободное стоксово и антистоксово поле вне образца на падающую и рассеянную части. Обозначим через a_k, a'_k операторы уничтожения антистоксовых фотонов, а через b_k, b'_k — стоксовых. В приближении классической монохроматической накачки имеет место линейная связь:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{a}' &= \boldsymbol{U}_a^* \cdot \boldsymbol{a} + \boldsymbol{V}_a^* \cdot \boldsymbol{b}^+ + \boldsymbol{a}_{\text{мол}}, \\ \boldsymbol{b}' &= \boldsymbol{V}_s^* \cdot \boldsymbol{a}^+ + \boldsymbol{U}_s^* \cdot \boldsymbol{b} + \boldsymbol{b}_{\text{мол}}. \end{aligned} \tag{3}$$

Здесь МР $\boldsymbol{U} \equiv \{\boldsymbol{U}_a, \boldsymbol{V}_a; \boldsymbol{U}_s, \boldsymbol{V}_s\}$ характеризует образец в целом, она зависит от его формы и от поля накачки. Индекс «мол» относится к «молекулярной» части поля рассеяния, которую необходимо вводить в случае неэрмитовой МР.

В представлении Гейзенберга операторы свободного поля зависят от времени гармонически, поэтому

$$U_{kk'} \sim \delta(\omega_k - \omega_{k'}), \quad V_{kk'} \sim \delta(\omega_k + \omega_{k'} - 2\omega_I),$$

и суммирование в (3) и в следующих далее формулах ведется лишь по направлениям волновых векторов.

Преобразование операторов (3) должно быть унитарным, т. е. сохраняющим перестановочные соотношения. Это условие позволяет выразить коммутаторы операторов молекулярной части выходного поля через МР (ср. (4.4.24) и (6.5.2)):

$$\begin{aligned} [\boldsymbol{a}^+, \boldsymbol{a}]_{\text{мол}} &= \boldsymbol{U}_a \cdot \boldsymbol{U}_a^+ - \boldsymbol{V}_a \cdot \boldsymbol{V}_a^+ - \boldsymbol{I}, \\ [\boldsymbol{b}^+, \boldsymbol{b}]_{\text{мол}} &= \boldsymbol{U}_s \cdot \boldsymbol{U}_s^+ - \boldsymbol{V}_s \cdot \boldsymbol{V}_s^+ - \boldsymbol{I}, \\ [\boldsymbol{a}, \boldsymbol{b}]_{\text{мол}} &= \boldsymbol{V}_a^* \cdot \boldsymbol{U}_s^+ - \boldsymbol{U}_a^* \cdot \boldsymbol{V}_s^+, \\ [\boldsymbol{b}, \boldsymbol{a}]_{\text{мол}} &= \boldsymbol{V}_s^* \cdot \boldsymbol{U}_a^+ - \boldsymbol{U}_s^* \cdot \boldsymbol{V}_a^+. \end{aligned} \tag{4}$$

где мы используем диадные обозначения:

$$(\boldsymbol{ab})_{kl} \equiv a_k b_l, \quad [\boldsymbol{a}, \boldsymbol{b}]_{kl} \equiv (\boldsymbol{ab})_{kl} - (\boldsymbol{ba})_{lk} = -[\widetilde{\boldsymbol{b}, \boldsymbol{a}}]_{lk}. \tag{5}$$

С другой стороны, молекулярную часть поля можно с помощью микромодели выразить через дипольные моменты молекул, статистику которых мы полагаем равновесной (несмотря на возмущение со стороны накачки и зондирующего поля), так что для молекулярных операторов должна выполняться нелинейная ФДТ (2.4.53). В результате для полевых операторов должны иметь место следующие связи между коммутаторами и корреляторами (ср.

(4.4.25)):

$$\langle a^+a\rangle_{\text{мол}} = -\mathcal{N}_0[a^+, a]_{\text{мол}}, \quad \langle b^+b\rangle_{\text{мол}} = (\mathcal{N}_0+1)[b^+, b]_{\text{мол}}, \tag{6а}$$

$$\langle ba\rangle_{\text{мол}} = -\mathcal{N}_0[b, a]_{\text{мол}}, \quad \langle ab\rangle_{\text{мол}} = (\mathcal{N}_0+1)[a, b]_{\text{мол}}. \tag{6б}$$

Эти формулы вместе с (4) определяют вторые моменты молекулярной части излучения через температуры и МР образца.

Вторые моменты полного поля излучения согласно (3), (4) и (6) равны (полагаем, что в падающем поле s — a-корреляции нет):

$$\boldsymbol{N}'_a = \boldsymbol{U}_a\cdot\boldsymbol{N}_a\cdot\boldsymbol{U}_a^+ + \boldsymbol{V}_a\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_s+\boldsymbol{I})\cdot\boldsymbol{V}_a^+ + \mathcal{N}_0(\boldsymbol{I}+\boldsymbol{V}_a\cdot\boldsymbol{V}_a^+ - \boldsymbol{U}_a\cdot\boldsymbol{U}_a^+), \tag{7а}$$

$$\boldsymbol{N}'_s = \boldsymbol{U}_s\cdot\boldsymbol{N}_s\cdot\boldsymbol{U}_s^+ + \\ + \boldsymbol{V}_s\cdot(\widetilde{\boldsymbol{N}}_a+\boldsymbol{I})\cdot\boldsymbol{V}_s^+ + (\mathcal{N}_0+1)(\boldsymbol{U}_s\cdot\boldsymbol{U}_s^+ + \boldsymbol{V}_s\cdot\boldsymbol{V}_s^+ - \boldsymbol{I}), \tag{7б}$$

$$\boldsymbol{K}' \equiv \langle ab\rangle^{*\prime} = \\ = \boldsymbol{V}_a\cdot(\boldsymbol{N}_s+\boldsymbol{I})\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_s + \boldsymbol{U}_a\cdot\widetilde{\boldsymbol{N}}_a\cdot\widetilde{\boldsymbol{V}}_s + \mathcal{N}_0(\boldsymbol{V}_a\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_s - \boldsymbol{U}_a\cdot\widetilde{\boldsymbol{V}}_s). \tag{7в}$$

Заметим, что эти выражения совпадают с (6.6.52) при замене индексов $s, a \to 1, 2$.

Вторые моменты спонтанной части рассеянного поля равны:

$$\boldsymbol{N}_a^{\text{сп}} = \boldsymbol{V}_a\cdot\boldsymbol{V}_a^+ + \mathcal{N}_0(\boldsymbol{I} - \boldsymbol{U}_a\cdot\boldsymbol{U}_a^+ + \boldsymbol{V}_a\cdot\boldsymbol{V}_a^+), \tag{8а}$$

$$\boldsymbol{N}_s^{\text{сп}} = \boldsymbol{V}_s\cdot\boldsymbol{V}_s^+ + (\mathcal{N}_0+1)(\boldsymbol{U}_s\cdot\boldsymbol{U}_s^+ - \boldsymbol{V}_s\cdot\boldsymbol{V}_s^+ - \boldsymbol{I}), \tag{8б}$$

$$\boldsymbol{K}^{\text{сп}} = \boldsymbol{V}_a\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_s + \mathcal{N}_0(\boldsymbol{V}_a\cdot\widetilde{\boldsymbol{U}}_s - \boldsymbol{U}_a\cdot\widetilde{\boldsymbol{V}}_s). \tag{8в}$$

Эти соотношения выражают ОЗК для процесса неупругого рассеяния при условии, что частоты ω_s, ω_a, ω_L принадлежат полосе прозрачности. Если и разностная частота ω_i далека от собственных частот молекул, то МР эрмитова и в (8) отличны от нуля лишь первые («вакуумные») слагаемые, описывающие нерезонансное ГПР (§ 7.1).

Для определения высших моментов поля рассеяния предположим дополнительно, что падающее поле имеет гауссову статистику, а молекулярное — «квазигауссову» (при которой имеется корреляция (6б)). При этом статистика рассеянного поля также будет квазигауссовой с нормально-упорядоченной χ-функцией (ср. (6.6.54))

$$\chi(\boldsymbol{\mu}, \boldsymbol{\eta}) = \exp(-\boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{N}'_s\cdot\boldsymbol{\mu}^* - \boldsymbol{\eta}\cdot\boldsymbol{N}'_a\cdot\boldsymbol{\eta}^* + \boldsymbol{\eta}\cdot\boldsymbol{K}'\cdot\boldsymbol{\mu} + \boldsymbol{\eta}^*\cdot\boldsymbol{K}'^*\cdot\boldsymbol{\mu}^*). \tag{9}$$

Отсюда находим двухфотонный коррелятор:

$$\langle a_1^+a_2b_3^+b_4\rangle' = N'_{a12}N'_{s34} + K'_{13}K'^*_{24}, \tag{10}$$

определяющий скорость счета совпадений фотоотсчетов (§§ 4.7, 5.4).

Здесь при $\boldsymbol{k}_1 = \boldsymbol{k}_2$, $\boldsymbol{k}_3 = \boldsymbol{k}_4$ первое слагаемое соответствует «случайным» совпадениям, а второе — «истинным».

Квазигауссову χ-функцию (9), выражающую ОЗК для процессов рассеяния, можно получить также другим путем — с помощью кинетического уравнения и эффективного гамильтониана взаимодействия. Последний в приближении классической накачки имеет, очевидно, вид (6.6.37), где теперь

$$f_j = \sum_{k_a} c_{ja} e^{i\omega_L t} a_a + \sum_{k_s} c_{js} e^{-i\omega_L t} o_s^+. \tag{11}$$

Операторная структура здесь точно такая же, как и в эффективном гамильтониане взаимодействия (6.6.37), описывающем ПР при поглощении на холостой частоте, поэтому следующее из (11) кинетическое уравнение для χ-функции и его решение будут отличаться от рассмотренных в § 6.6 лишь определениями коэффициентов (что и видно из сравнения (9) и (6.6.54)).

Корреляция в одномерном приближении. Мы предполагаем, что МР в (9) можно определять с помощью полуклассических моделей, что существенно упрощает вычисления. Используем, например, коэффициенты преобразования (7.2.3) для плоской одномерной модели, когда матрицы $\boldsymbol{U}$, $\boldsymbol{V}$ диагональны вследствие закона сохранения поперечного импульса. При этом формулы (7а), (7б) переходят в (7.2.4), (7.2.5) и в результате (9) полностью определяет статистику поля рассеяния (в приближении нулевого радиуса поперечной когерентности) через кубическую восприимчивость.

Согласно (7.2.3) при большой интенсивности накачки коэффициенты преобразования U и V для мод, примерно удовлетворяющих условию синхронизма, имеют одинаковый порядок величины $U \sim V \sim e^{\beta l}$. При этом из (8) следует, что $N_{a,s}$ и K также одного порядка, и согласно (10) случайные совпадения происходят столь же часто, как и истинные (при $V_{\text{дет}} \leqslant V_{\text{ког}}$):

$$\langle \hat{N}_a \hat{N}_s \rangle \sim 2 N_a N_s. \tag{12}$$

Такое соотношение характерно для классической корреляции интенсивностей в эксперименте Брауна — Твисса (§ 4.7) с тем лишь отличием, что здесь коррелируют разночастотные и разнонаправленные моды (так что надобность в разделительном зеркале отпадает).

Рассмотрим теперь случай слабой накачки, когда можно ограничиться первыми членами в разложении МР в ряд по безразмерной константе взаимодействия $\bar{\beta} \equiv \beta l$:

$$\begin{aligned} U_a^* &= 1 + i\bar{\beta} + \left(\frac{\bar{\beta}}{2\bar{\Delta}}\right)^2 (1 - 2i\bar{\Delta} - 2\bar{\Delta}^2 - e^{-2i\bar{\Delta}}) + \ldots, \\ V_a^* &= i\bar{\beta}\,\mathrm{sinc}\,\bar{\Delta} e^{-i\bar{\Delta}} + \ldots \quad (\bar{\Delta} \equiv \Delta l/2). \end{aligned} \tag{13}$$

Подставив эти разложения в (8), найдем

$$N_a = 2\bar{\beta}''\mathcal{N}_0\left[1 - \bar{\beta}'\frac{1-\operatorname{sinc} 2\bar{\Delta}}{\bar{\Delta}} - \bar{\beta}''(1-\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta})\right] + \\ + |\bar{\beta}|^2\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta} + \ldots, \quad (14)$$

$$N_s = 2\bar{\beta}''(\mathcal{N}_0+1)\left[1 - \bar{\beta}'\frac{1-\operatorname{sinc} 2\bar{\Delta}}{\bar{\Delta}} + \bar{\beta}''(1-\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta})\right] + \\ + |\bar{\beta}|^2\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta} + \ldots, \quad (15)$$

$$K^* = i\,[\bar{\beta}' + i\bar{\beta}''(2\mathcal{N}_0+1)]\operatorname{sinc}\bar{\Delta}e^{-i\bar{\Delta}} + \ldots, \quad (16)$$

$$\langle \hat{N}_a\hat{N}_s\rangle = 4\bar{\beta}''^2\mathcal{N}_0(\mathcal{N}_0+1)(1+\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta}) + \\ + |\bar{\beta}|^2\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta} + \ldots \equiv 4\bar{\beta}''^2\mathcal{N}_0(\mathcal{N}_0+1)(1+m) + \ldots, \quad (17)$$

$$m \equiv \left[1 + \frac{|\chi|^2}{4\chi''^2\mathcal{N}_0(\mathcal{N}_0+1)}\right]\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta}. \quad (18)$$

Множитель $\operatorname{sinc}\bar{\Delta}$ ограничивает коррелирующие моды конусами продольного синхронизма, т. е. почти продольным рассеянием под углами $\vartheta_s \sim \vartheta_a \sim 1°$ (см. (7.1.2)). Кроме того, конечно, должно с дифракционной точностью выполняться условие поперечного синхронизма: $\boldsymbol{q}_a + \boldsymbol{q}_s = 0$. Согласно (18) при высоких температурах (когда $\mathcal{N}_0 \gg 1$) и в случае частот, не слишком далеких от резонанса (когда $|\chi''| \gtrsim \chi_\infty$), имеет место корреляция *интенсивностей* ($m \sim 1$, как и при больших уровнях накачки). В противоположном случае ($\varkappa T \ll \hbar\omega_i$ или $|\chi''| \ll \chi_\infty$) $m \gg 1$ и

$$\langle \hat{N}_a\hat{N}_s\rangle \approx N_a = |\bar{\beta}|^2\operatorname{sinc}^2\bar{\Delta}. \quad (19)$$

Этот результат очевиден с точки зрения наглядной фотонной картины, согласно которой при низких температурах (или вне резонанса) a-фотоны рождаются лишь в результате параметрических четырехфотонных процессов за счет флуктуаций вакуума, т. е. лишь в парах с s-фотонами. Заметим, что число таких пар $|\bar{\beta}|^2$ в области частотного резонанса много меньше числа одиночных s-фотонов $2\bar{\beta}''(\mathcal{N}_0+1)$, рождающихся за счет тепловых и нулевых флуктуаций молекул.

Существенно, что за счет χ_∞ коррелированные пары рождаются в широком частотном интервале (эффект ГПР), и поэтому при регистрации широкополосными детекторами совпадения будут носить квантовый характер (несмотря на то, что обычно $\chi_\infty < \Delta\chi$). Классическую корреляцию с $m \sim 1$ можно наблюдать лишь при выделении узких спектральных интервалов около низкочастотных резонансов (в пределе — в релеевской области) или при мощной импульсной накачке.

Функция взаимной когерентности s- и a-амплитуд при фиксированном направлении наблюдения равна фурье-образу взаимной спектральной функции (16). Соответственно, время взаимной когерентности $\tau_{\text{ког}}$ будет по порядку величины равно обратной ширине функции (16). Последняя равна или ширине резонанса $1/\tau$ или ширине синхронизма (§ 6.3), так что $\tau_{\text{ког}}$ определяется или временем релаксации молекулярных колебаний или относительным запаздыванием a- и s-волн при пересечении образца:

$$\tau_{\text{ког}} \sim \min\{\tau,\ 2/\Delta\omega_{\text{эф}}\}, \tag{20}$$

$$\frac{2}{\Delta\omega_{\text{эф}}} = \frac{2}{\pi}\left|\frac{\partial\overline{\Delta}}{\partial\omega}\right| \approx \frac{l}{u_s} - \frac{l}{u_a} \approx \frac{2kl\vartheta_0^2}{\omega_0}$$

(здесь ϑ_0 — угол синхронизма при частотном резонансе согласно (7.1.2) и $k \equiv k_L$).

Скорость совпадений. Рассмотренная одномерная модель применима лишь в случае идеализированных «точечных» детекторов с площадью, много меньшей площади когерентности, и достаточно большого сечения луча накачки. Однако, поскольку вероятность совпадения (17) квадратична по интенсивности накачки, следует использовать фокусировку, которая нарушит условие применимости одномерной модели.

Пусть теперь поле накачки имеет произвольное пространственное распределение

$$E(rt) = E_L[F(r)e^{-i\omega_L t} + \text{к. с.}], \tag{21}$$

а нелинейность по-прежнему ограничена слоем. Тогда в первом порядке МР равна

$$\begin{aligned} U_a^*(kk') &= v\delta(k - k') + i\beta cv\delta(\omega_k - \omega_{k'})f_1(k - k'), \\ V_a^*(kk') &= i\beta cv\delta(\omega_k + \omega_{k'} - 2\omega_L)f_2(k + k'), \end{aligned} \tag{22}$$

где пренебрегается отличием групповой скорости от c и введены форм-факторы:

$$\begin{aligned} f_1(k) &\equiv (2\pi)^{-2}\int dr\,\pi(z)e^{-ik\cdot r}|F(r)|^2, \\ f_2(k) &\equiv (2\pi)^{-2}\int dr\,\pi(z)\,e^{-ik\cdot r}F^2(r), \\ \pi(z) &\equiv \begin{cases} 0 & (|z| > l/2), \\ 1 & (|z| < l/2) \end{cases} \end{aligned} \tag{23}$$

(стоксовы матрицы отличаются заменой β на β^*).

Подставляя (22) в (8) и (10), находим в первом приближении:

$$N_a^{(1)}(kk') = vc2\beta''\mathcal{N}_0\delta(\omega_k - \omega_{k'})f_1(k' - k), \tag{24}$$

$$N_s^{(1)}(kk') = vc2\beta''(\mathcal{N}_0 + 1)\delta(\omega_k - \omega_{k'})f_1(k' - k), \tag{25}$$

$$K^{(1)*}(\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}') = ivc\,[\beta' + i\beta''(2\mathcal{N}_0 + 1)]\,\delta(\omega_k + \omega_{k'} - 2\omega_L)\,f_2(\boldsymbol{k} + \boldsymbol{k}'), \tag{26}$$

$$\langle a_1^+ a_2 b_3^+ b_4 \rangle = N_a(\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_2)\,N_s(\boldsymbol{k}_3\boldsymbol{k}_4) + K(\boldsymbol{k}_1\boldsymbol{k}_3)\,K^*(\boldsymbol{k}_2\boldsymbol{k}_4). \tag{27}$$

Нам понадобится также второй момент антистоксова поля, квадратичный по накачке (слагаемое, пропорциональное $\beta^2\mathcal{N}_0$, не учитываем):

$$N_a^{(2)}(\boldsymbol{k}\boldsymbol{k}') = vc^2\,|\beta|^2\delta(\omega_k - \omega_{k'}) \times$$
$$\times \int d\boldsymbol{k}_s\delta(\omega_k + \omega_{k_s} - 2\omega_L)\,f_2^*(\boldsymbol{k} + \boldsymbol{k}_s)\,f_2(\boldsymbol{k}' + \boldsymbol{k}_s). \tag{24a}$$

Из (24) с помощью (4.6.32) определяем скорость счета a-фотонов в первом приближении:

$$W_a^{(1)} = \frac{\eta_a k^2\beta_0 V\mathcal{N}_0\Delta\Omega_a}{4\pi^2\tau} = \eta_a\mathcal{N}_0\sigma_\Omega M_0 l\Delta\Omega_a W_L, \tag{28}$$

где η_a и $\Delta\Omega_a$ — квантовая эффективность и угловая апертура детектора, $\beta_0 = \beta''(\omega_0)$, $V = 4\pi^2 f_1(0) \equiv Al$ — эффективный объем образца, $\sigma_\Omega \equiv \hbar k^4\Delta\chi/\tau M_0$ — сечение рассеяния (мы полагаем $k_a \sim k_s \sim k_L \sim \omega_L/c$), M_0 — концентрация молекул, W_L — поток фотонов накачки в единицу времени. Аналогичное выражение для $W_s^{(1)}$ отличается лишь заменой $\mathcal{N}_0$ на $\mathcal{N}_0 + 1$.

Рассмотрим сперва случай, когда объем детектирования (§ 4.6) равен объему когерентности a-поля. Радиус когерентности определяется поперечным размером излучающей области, т. е. диаметром накачки $2a$ в нашей модели, а длина когерентности — временем релаксации молекулярных колебаний. Из (28) при $\eta_a = 1$, $V = 4a^2 l$, $\Delta\Omega_a = \Delta\Omega_{\text{ког}} \equiv 4/(ka)^2$ и времени счета $t = \tau$ находим, что среднее число тепловых a-фотонов в объеме когерентности, т. е. параметр вырождения для a-поля, отличается от фактора вырождения фононов коэффициентом $\beta_0 l$ (ср. (4.6.41)):

$$\mathcal{N}_a \equiv W_a^{(1)}\tau/\eta_a \approx \beta_0 l\mathcal{N}_0. \tag{29}$$

Аналогичное соотношение (с добавлением нулевых флуктуаций молекул) справедливо и для s-поля.

В общем случае следует учитывать и «параметрические» a-фотоны, скорость счета которых согласно (24а) равна

$$W_a^{(2)} = \frac{\eta_a k^4}{2\pi}\int\limits_{\Delta\Omega_a} d\Omega_a \int\limits_{4\pi} d\Omega_s \int\limits_{\omega_L}^{2\omega_L} d\omega_a\,|\beta f_2(\boldsymbol{k}_a + \boldsymbol{k}_s)|^2, \tag{30}$$

где $\omega_s + \omega_a = 2\omega_L$. Далее из (27) и (4.7.2) (при нулевой электрон-

ной задержке) находим скорость счета совпадений:

$$W_c = W_a W_s T + \frac{\eta_a \eta_s k^4}{4\pi^2 T} \int\limits_0^T dt_a dt_s \int\limits_{\Delta\Omega_a} d\Omega_a \int\limits_{\Delta\Omega_s} d\Omega_s \times$$
$$\times \left| \int d\omega_a e^{i\omega_a(\bar{t}_s - \bar{t}_a)} f_2(\boldsymbol{k}_a + \boldsymbol{k}_s)(\beta + 2i\beta''\mathcal{N}_0) \right|^2, \quad (31)$$

где T — разрешающее время схемы совпадений, $\bar{t} = t - r/c$, r — расстояние между центрами образца и соответствующего детектора и $\Omega \equiv \boldsymbol{q}/k$.

В случае узких линий, когда $2/\tau \ll \Delta\omega_{эф}$ (см. (20)), можно пренебречь зависимостью f_2 от ω_a в (30) и (31). Пусть, кроме того, $\Delta\chi \gg \chi_\infty$ и $|r_a - r_s| \ll cT$, тогда

$$W_a^{(2)} = \frac{\eta_a k^4 \beta_0^2}{2\tau} \int\limits_{\Delta\Omega_a} d\Omega_a \int\limits_{4\pi} d\Omega_s |f_2(\boldsymbol{k}_a + \boldsymbol{k}_s)|^2, \quad (32)$$

$$W_c = W_a W_s T + \frac{\eta_a \eta_s k^4 \beta_0^2}{2\tau} \times$$
$$\times (2\mathcal{N}_0^2 + 2\mathcal{N}_0 + 1)\, \varphi\left(\frac{T}{\tau}\right) \int\limits_{\Delta\Omega_a} d\Omega_a \int\limits_{\Delta\Omega_s} d\Omega_s |f_2(\boldsymbol{k}_a + \boldsymbol{k}_s)|^2 \quad (33)$$

(функция φ определена формулой (4.7.14)). Итак, согласно (33) область взаимной когерентности s- и a-поля определяется фурье-образом $f_2(k_a + k_s)$ пространственного распределения накачки. Теперь $\omega_{a,s} = \omega_L \pm \omega_0$ и аргумент этой функции берется при заданной длине векторов $\boldsymbol{k}_{a,s}$, так что фактически f_2 зависит от двух независимых проекций $\boldsymbol{q}_{a,s}$ волновых векторов на плоскость нелинейного слоя.

Из сравнения (32) и (33) находим, что в случае достаточно большой угловой апертуры s-детектора скорости счета истинных совпадений и параметрических a-фотонов пропорциональны:

$$W_c = W_a W_s T + \eta_s (2\mathcal{N}_0^2 + 2\mathcal{N}_0 + 1)\, \varphi\left(\frac{T}{\tau}\right) W_a^{(2)}. \quad (34)$$

Гауссова накачка. Пусть теперь поле накачки является TEM_{00}-волной с осью, перпендикулярной слою, так что $F(\boldsymbol{r})$ определяется формулой (6.3.24) при $\rho = 0$ и с дополнительным множителем $\exp(ik_L z)$. При этом из (23) следует (ср. (6.3.28)):

$$f_2(\boldsymbol{k}_a + \boldsymbol{k}_s) = \frac{V}{4\pi^2} f(\boldsymbol{q}_a, \boldsymbol{q}_s),$$
$$f(\boldsymbol{q}_a, \boldsymbol{q}_s) \equiv l^{-1} \exp\left[-\frac{(\boldsymbol{q}_a + \boldsymbol{q}_s)^2 a^2}{8}\right] \int\limits_{-l/2}^{l/2} \frac{dz \exp(-iz\bar{\Delta})}{1 + 2iz/b}, \quad (35)$$

$$\bar{\Delta}(\boldsymbol{q}_a, \boldsymbol{q}_s) \equiv \Delta + \frac{(\boldsymbol{q}_a + \boldsymbol{q}_s)^2}{4k} \approx k\vartheta_0^2 - \frac{(\boldsymbol{q}_a - \boldsymbol{q}_s)^2}{4k}, \quad A \equiv \pi \frac{a^2}{2}.$$

Здесь a и $b \equiv ka^2$ — радиус и длина фокальной области, центр которой расположен в середине слоя.

Таким образом, в случае «мягкой» фокусировки, когда длина фокальной области много больше толщины слоя ($l/b \equiv \alpha \ll 1$), коррелируют лишь лучи, удовлетворяющие условию синхронизма $\varphi_s = \varphi_a + \pi$, $\vartheta_s = \vartheta_a \approx \vartheta_0$ (где $\vartheta = q/k$, $\varphi = \operatorname{arctg}(q_x/q_y)$). Размеры областей взаимной когерентности определяются радиусом фокусировки и угловым интервалом продольного синхронизма $\Delta\vartheta$. При $\alpha \ll 1$

$$\Delta\vartheta_{\text{ког}} = \min\{\theta_{\text{диф}}, \Delta\vartheta\}, \quad \Delta\varphi_{\text{ког}} = \theta_{\text{диф}}/\vartheta_0, \tag{36}$$

где $\theta_{\text{диф}} \sim \lambda/2a$ — дифракционный угол и $\Delta\vartheta \equiv \lambda/2l\vartheta_0$ (ср. (6.3.16)) — угловая ширина синхронизма. По мере усиления фокусировки две области взаимной когерентности для a- и s-лучей перекрываются и совпадают с дифракционным кружком $\Delta\Omega_{\text{ког}} = \theta^2_{\text{диф}}$.

Пусть $\Delta\Omega_a \gg \Delta\Omega_{\text{ког}}, 4\vartheta_0^2$, тогда из (32) и (35)

$$W_a^{(2)} = \frac{\eta_a \xi^2}{4\pi\tau}\Phi(\alpha, \gamma), \tag{37}$$

$$\Phi(\alpha, \gamma) \equiv$$

$$\equiv \frac{k^2 l^2}{8\pi^3}\int\limits_{4\pi} d\Omega_a d\Omega_s f^2(\boldsymbol{q}_a, \boldsymbol{q}_s) = \frac{1}{\pi}\int\limits_{-\gamma}^{\infty} dx\left(\int\limits_0^{\alpha} dz\,\frac{\cos xz + z\sin xz}{1+z^2}\right)^2, \tag{38}$$

$$\xi \equiv k\beta_0 A, \quad \alpha \equiv l/b, \quad \gamma \equiv (ka\vartheta_0)^2/2 \sim (\vartheta_0/\theta_{\text{диф}})^2.$$

Функция Φ характеризует нарастание скорости счета параметрических a-фотонов (и согласно (34) скорости счета истинных совпадений) при фокусировке накачки. При мягкой фокусировке $\Phi(\alpha, \infty) \approx \alpha$, при $\alpha = 2$ $\Phi = 0{,}93$—$1{,}08$, при жесткой фокусировке $\Phi = \pi/2$. Таким образом, при $l \gg b$ скорость излучения бифотонов при резонансном ГПР равна

$$\frac{W_a^{(2)}}{\eta_a} = \frac{\xi^2}{8\tau} \approx \frac{2\pi^4}{\tau}\left(\frac{\omega^2\Delta\chi\mathscr{P}_L}{c^3}\right)^2. \tag{39}$$

Формулы (34) и (39) определяют абсолютное число совпадений при больших апертурах детекторов. Однако при увеличении апертур увеличивается и число случайных совпадений $W_{\text{сл}} = W_a^{(1)}W_s^{(1)}T$, что затрудняет регистрацию. Найдем «контраст» $m \equiv W_c/W_{\text{сл}} - 1$ при произвольных апертурах. Из (28), (33) и (35) следует (ср. (4.7.11)):

$$m = \frac{\operatorname{ch}(\hbar\omega_0/\varkappa T)}{g_\parallel g_\perp} = \frac{1}{g_\parallel g_\perp}\left(1 + \frac{1}{2\mathscr{N}_0(\mathscr{N}_0+1)}\right), \tag{40}$$

$$g_\parallel^{-1} \equiv \frac{\tau}{T}\varphi\left(\frac{T}{\tau}\right),$$

$$g_\perp^{-1} \equiv \frac{1}{\Delta\Omega_a\Delta\Omega_s}\int\limits_{\Delta\Omega_a} d\Omega_a \int\limits_{\Delta\Omega_s} d\Omega_s f^2(\boldsymbol{q}_a, \boldsymbol{q}_s).$$

Параметр $g_{\parallel}$ имеет смысл эффективного числа независимых продольных мод, регистрируемых детектором совпадений, а $g_{\perp}$ — число поперечных мод. Это число минимально и равно единице при $\Delta\Omega \gg \Delta\Omega_{\text{ког}}$. Из (40) следует, что при высоких температурах контраст много меньше 1, а при низких температурах и высоком пространственном и временном разрешении детектора совпадений $m \gg 1$.

Рассмотрим также другой легко измеряемый параметр, имеющий смысл условной вероятности регистрации s-импульса при появлении a-импульса:

$$P(s \mid a) \equiv \frac{W_c}{W_a} = W_s T (1 + m). \tag{41}$$

При высоких температурах $P(s \mid a) \approx W_s T \ll 1$. Если же $\mathcal{N}_0 \ll 1$, $m \gg 1$ и $\Delta\Omega_s \gg \Delta\Omega_{\text{ког}}$, то из (34) следует

$$P(s \mid a) = \frac{\eta_s \varphi(T/\tau)}{1 + W_a^{(1)}/W_a^{(2)}}, \tag{42}$$

где согласно (28), (32) и (35)

$$\frac{W_a^{(2)}}{W_a^{(1)}} = \frac{\kappa \xi l}{8\pi^2 \mathcal{N}_0 \Delta\Omega_a} \int\limits_{\Delta\Omega_a} d\Omega_a \int\limits_{4\pi} d\Omega_s f^2(\boldsymbol{q}_a, \boldsymbol{q}_s). \tag{43}$$

Это отношение максимально и имеет порядок $\xi/\mathcal{N}_0$ при умеренной фокусировке ($\alpha \sim 1$). Таким образом, если параметрических фотонов регистрируется больше, чем тепловых ($\xi \gg \mathcal{N}_0$), и $T \gg \tau$, то $P(s \mid a) = \eta_s$, т. е. a-импульсы с вероятностью, равной квантовой эффективности s-канала η_s, сопровождаются s-импульсом. Этот естественный результат можно, в принципе, использовать для абсолютной калибровки счетчиков фотонов (§ 6.4).

Заметим, что при $\mathcal{N}_0 \ll 1$, ξ и $T \ll \tau$ из (34) и (29) следует

$$m = \frac{\eta_s}{W_s^{(1)}\tau} = \frac{1}{\mathcal{N}_s} = \frac{1}{\beta_0 l} \tag{44}$$

— контраст и фактор вырождения s-фотонов являются обратными величинами.

Обратим внимание еще на одно различие квантовой ($m \gg 1$) и классической ($m \lesssim 1$) корреляции, которое можно обнаружить при наблюдении задержанных совпадений в случае $T \ll \tau$. Согласно (31) при задержке $t_a - t_s \equiv \Delta t$

$$W_c(\Delta t) \sim \sim \left| \int d\omega e^{i\omega\Delta t} \frac{2\mathcal{N}_0 + 1 + i\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \right|^2 = \frac{4\pi^2}{\tau^2} e^{-2|\Delta t|/\tau} [\theta(\Delta t) + \mathcal{N}_0]^2, \tag{45}$$

где $\theta(x) = 0, 1/2, 1$ при $x < 0$, $x = 0$, $x > 0$ соответственно. Таким образом, при низких температурах и малой нерезонансной

нелинейности a-фотоны регистрируются только позже s-фотонов (с задержкой $0 - \tau$). Этот результат согласуется с наглядной картиной двухэтапного квантового перехода: сначала фотон накачки распадается на s-фотон и фонон, а затем через время τ этот фонон и второй фотон накачки объединяются в a-фотон. При высоких же температурах из-за наличия тепловых фононов второй этап может происходить независимо от первого.

Оценка числа совпадений. В жидком азоте наблюдается очень узкая интенсивная комбинационная линия с частотой $\nu_0 = 2331$ см$^{-1}$, обладающая согласно [173] следующими параметрами: $\tau = 0{,}16$ нс, $2\beta_0/S_L = 1{,}7\cdot 10^{-8}$ см/Вт. Пусть $\mathcal{P}_L = 1$ Вт и $\lambda_L = 0{,}5$ мкм, тогда $\xi = 10^{-3}$. При $\Delta\Omega_1 \gg \Delta\Omega_{\text{ког}}$, $\eta = 0{,}1$ и $l \sim b$ из (39) находим $W_a^{(2)} = 50$ с$^{-1}$. Если $\Delta\Omega_s \sim \Delta\Omega_{\text{ког}}$, то, подставив в (28) $\mathcal{N}_0 = 1$ и $l\Delta\Omega_s = b\Delta\Omega_{\text{ког}} = 4/k$, найдем $W_s^{(1)} = \eta_s\xi/\pi^2\tau \sim W_a^{(2)}/\xi = 5\cdot 10^4$ с$^{-1}$. Пусть $T = 10$ нс, тогда скорость случайных совпадений будет $2{,}5\cdot 10^{-2}$ с$^{-1}$, и из (34) следует $W_c = \eta_s W_a^{(2)} = 5$ с$^{-1}$, так что $m = 200$ (при $T \ll \tau$ из (44) следовало бы $m = 10^4$). Обнаружение нескольких совпадений в секунду не должно представлять больших затруднений (при условии, что удастся избежать нагрева образца).

Итак, явление КР позволяет, в принципе, «изготовлять» состояния поля с коррелированными разночастотными модами, причем в отличие от ПР или ГПР характер корреляции можно непрерывно изменять от чисто квантовой до чисто классической. Абсолютная скорость совпадений увеличивается при уменьшении сдвига частоты ω_i (см. (2)), когда в пределе КР переходит в молекулярное рассеяние на флуктуациях ориентации и концентрации молекул. Очень сильное рассеяние происходит в мутных средах, содержащих взвесь макрочастиц, а также в однородных средах при фазовых переходах (*критическая опалесценция*). При этом, однако, рассеяние квазиупруго ($\omega_i \to 0$) и спектральное разделение a- и s-компонент невозможно. Для пространственного разделения коррелирующих полей при квазиупругом рассеянии можно использовать двухлучевую накачку и, в частности, стоячую волну. В последнем случае свет, упруго рассеиваемый в противоположные стороны (под произвольным углом к накачке), должен флуктуировать синхронно. Такой экспериментальный метод может дать дополнительную информацию о кратности рассеяния, функции распределения частиц и др.

ПРИЛОЖЕНИЕ

ФУНКЦИЯ ГРИНА И ТИПЫ ПОЛЯРИЗАЦИИ ПОЛЯ В ПОГЛОЩАЮЩЕЙ АНИЗОТРОПНОЙ СРЕДЕ

В учебной литературе вопрос разбиения поля по типам поляризации в анизотропной поглощающей среде, описываемой тензором диэлектрической проницаемости $\varepsilon(\boldsymbol{k}\omega)$, обычно не рассматривается и поэтому ниже будет дано формальное определение ортов поляризации $\boldsymbol{e}_\nu$, а также тензорной функции Грина $G(\boldsymbol{k}\omega)$ через $\varepsilon(\boldsymbol{k}\omega)$.

Различные операции с тензорами или матрицами значительно упрощаются, если они приведены к диагональному виду с помощью преобразования подобия. Однако, при наличии поглощения тензор ε и, следовательно, G неэрмитовы и поэтому мы предварительно рассмотрим формальную процедуру диагонализации и обращения неэрмитовых матриц (более подробное и строгое изложение см., например, в книге Белмана [156]).

Диагонализация и обращение неэрмитовых матриц. Пусть квадратная матрица или тензор A размерности N имеет различные ненулевые собственные значения λ_k [1]). Определим левые и правые собственные векторы уравнениями:

$$\boldsymbol{A}\cdot\boldsymbol{a}_k = \lambda_k \boldsymbol{a}_k, \tag{1а}$$

$$\boldsymbol{b}_k\cdot\boldsymbol{A} = \lambda_k \boldsymbol{b}_k, \tag{1б}$$

где $k = 1, 2, \ldots, N$ (мы рассматриваем комплексные векторы и тензоры: $\boldsymbol{a} = \boldsymbol{a}' + i\boldsymbol{a}''$, $\boldsymbol{A} = \boldsymbol{A}' + i\boldsymbol{A}''$). Равенства (1) написаны в *инвариантном* виде. С помощью какой-либо ортогональной системы координат их можно представить в виде

$$\sum_{ij} A_{ij}(\boldsymbol{a}_k)_j = \lambda_k(\boldsymbol{a}_k)_i, \qquad \sum_{ij} A_{ij}(\boldsymbol{b}_k)_i = \lambda_k(\boldsymbol{b}_k)_j.$$

Точка в (1) означает операцию свертывания, т. е. суммирования по соседним индексам. Определим также операции транспонирования $\widetilde{A}_{ij} \equiv A_{ji}$ (поэтому $\boldsymbol{b}\cdot\boldsymbol{A} = \widetilde{\boldsymbol{A}}\cdot\boldsymbol{b}$) и комплексного и эрмитова сопряжений:

$$\boldsymbol{a}^* \equiv \boldsymbol{a}' - i\boldsymbol{a}'', \qquad \boldsymbol{A}^* = \boldsymbol{A}' - i\boldsymbol{A}'',$$

$$\boldsymbol{A}^+ \equiv \widetilde{\boldsymbol{A}}^*, \qquad (\boldsymbol{b}\cdot\boldsymbol{A})^* = \boldsymbol{A}^+\cdot\boldsymbol{b}^*, \qquad (\boldsymbol{A}\cdot\boldsymbol{B})^+ = \boldsymbol{B}^+\cdot\boldsymbol{A}^+.$$

Следовательно, векторы $\boldsymbol{b}_k^*$ являются собственными для матрицы $\boldsymbol{A}^+$, и в случае эрмитовой матрицы $\boldsymbol{b}_k = \boldsymbol{a}_k^*$ и $\lambda_k = \lambda_k^*$. Из двух произвольных векторов можно образовать скалярное произведение, которое мы будем обозначать точкой:

$$\boldsymbol{c}\cdot\boldsymbol{d} \equiv \sum c_j d_j = \sum [c_j' d_j' - c_j'' d_j'' + i(c_j' d_j'' + c_j'' d_j')].$$

Набор векторов $\boldsymbol{a}_k$ образует полную систему координат (базис пространства); в случае действительного двух- или трехмерного пространства —

[1]) Случаи кратных или нулевых собственных значений и, вообще, «особые» случаи обычно можно рассматривать с помощью предельных переходов, и в дальнейшем мы не будем их особо оговаривать.

это обычные косоугольные оси координат. Любой вектор или матрицу можно задать (*представить*) ее компонентами — проекциями на эти оси. Набор $\boldsymbol{b}_k$ образует другую систему, называемую обратной или взаимной (в случае трех действительных измерений $\boldsymbol{b}_1 = \boldsymbol{a}_2 \times \boldsymbol{a}_3/[\boldsymbol{a}_1\cdot(\boldsymbol{a}_2 \times \boldsymbol{a}_3)]$, и проекции на оси $\boldsymbol{a}_k$ называют контравариантными компонентами, а на оси $\boldsymbol{b}_k$ — ковариантными). Покажем, что при $k \neq l$ векторы $\boldsymbol{a}_k$ и $\boldsymbol{b}_l^*$ ортогональны, т. е. $\boldsymbol{a}_k\cdot\boldsymbol{b}_l = 0$. Для этого умножим (1а) слева на $\boldsymbol{b}_l$ и (1б) справа на $\boldsymbol{a}_k$ (в дальнейшем мы будем писать «умножим на $\boldsymbol{b}_l\cdot$" или «на $\cdot\,\boldsymbol{a}_k$») и вычтем одно из другого: $(\lambda_k - \lambda_l)\boldsymbol{b}_l\cdot\boldsymbol{a}_k = 0$. Собственный вектор можно умножить на произвольное комплексное число, условие (1) при этом не нарушается. Поэтому можно дополнительно потребовать, чтобы $\boldsymbol{a}_k\cdot\boldsymbol{b}_k = 1$. В результате

$$\boldsymbol{a}_k\cdot\boldsymbol{b}_l = \delta_{kl}. \tag{2}$$

Образуем из векторов $\boldsymbol{a}_k$ матрицу $\mathcal{U}_{ij}$, j-й столбец которой составлен из компонент вектора $\boldsymbol{a}_j$:

$$\mathcal{U}_{ij} \equiv (\boldsymbol{a}_j)_i. \tag{3}$$

Определим также матрицу $\mathcal{V}$, строки которой составлены из компонент $\boldsymbol{b}_i$:

$$\mathcal{V}_{ij} \equiv (\boldsymbol{b}_i)_j. \tag{4}$$

Перемножим эти матрицы с учетом (2):

$$(\mathcal{V}\cdot\mathcal{U})_{ij} = (\boldsymbol{b}_i)_k\,(\boldsymbol{a}_j)_k = \delta_{ij};$$

отсюда следует, что матрицы $\mathcal{V}$ и $\mathcal{U}$ — обратные:

$$\mathcal{V}\cdot\mathcal{U} = \mathcal{U}\cdot\mathcal{V} = \boldsymbol{I}. \tag{5}$$

Распишем (1) по компонентам в обозначениях (3), (4):

$$\sum_j A_{ij}\mathcal{U}_{jk} = \lambda_k\mathcal{U}_{ik} = \sum_l \lambda_l\delta_{lk}\mathcal{U}_{il} \equiv \sum_l \Lambda_{lk}\mathcal{U}_{il}$$

или в инвариантном виде: $\boldsymbol{A}\cdot\mathcal{U} = \mathcal{U}\cdot\Lambda$, где мы определили диагональную матрицу Λ, составленную из собственных значений рассматриваемой матрицы $\boldsymbol{A}$. После умножения на $\mathcal{U}^{-1}\cdot$ и на $\cdot\,\mathcal{U}^{-1}$ получаем

$$\mathcal{U}^{-1}\cdot\boldsymbol{A}\cdot\mathcal{U} = \Lambda, \qquad \boldsymbol{A} = \mathcal{U}\cdot\Lambda\cdot\mathcal{U}^{-1}. \tag{6}$$

Умножение матрицы на $\mathcal{U}\cdot$ и $\cdot\,\mathcal{U}^{-1}$ называется преобразованием подобия. Согласно (6) преобразование подобия с помощью собственной матрицы превращает матрицу в диагональную. Теперь нетрудно найти и обратную к $\boldsymbol{A}$ матрицу. Так как $(\boldsymbol{A}\cdot\boldsymbol{B})^{-1} = \boldsymbol{B}^{-1}\cdot\boldsymbol{A}^{1}$, то

$$\boldsymbol{A}^{-1} = \mathcal{U}\cdot\Lambda^{-1}\cdot\mathcal{U}^{-1}. \tag{7}$$

Обращение же диагональной матрицы тривиально:

$$(\Lambda^{-1})_{ij} = \delta_{ij}\lambda_i^{-1}.$$

Иначе говоря, обратные матрицы имеют одинаковые собственные векторы и обратные собственные значения.

Иногда удобно представлять тензор $\boldsymbol{A}$ или $\boldsymbol{A}^{-1}$ в виде суммы диад. Диадой называется матрица, составленная из произведений компонент двух векторов по правилу $\mathcal{D}_{ij} = c_i d_j$. Мы будем обозначать диады следующим образом: $\mathcal{D} = \boldsymbol{cd}$.

Вместо термина *диада* используют также название *внешнее произведение* векторов (в обозначениях Дирака (§ 2.2) $\boldsymbol{cd}^* = |c\rangle\langle d|$). Пусть $\boldsymbol{c}\cdot\boldsymbol{c}^* = 1$, тогда тензор $\boldsymbol{cc}^*$, действуя на любой вектор $\boldsymbol{f}$, выделяет его составляющую

вдоль «направления» c: $cc^*\cdot f = c\,(c^*\cdot f)$. Тензор cc^* называют *проекционным*.

Пусть набор векторов e_k образует полную ортонормированную систему, т. е. $e_k\cdot e_l^* = \delta_{kl}$, $e_k e_k^* = I$, тогда любой вектор можно представить в виде суммы N векторов:

$$f = \sum_k e_k f_k, \quad f_k \equiv e_k^*\cdot f, \tag{8}$$

а любой тензор — в виде суммы из N^2 диад:

$$A = \sum_{kl} e_k e_l A_{kl}, \quad A_{kl} \equiv e_k^*\cdot A\cdot e_l. \tag{9}$$

С помощью «собственных» матриц $\mathcal{U}$, $\mathcal{U}^{-1}$ и Λ можно представить A, A^{-1} в виде однократной суммы из «собственных» диад:

$$A = \sum_k a_k b_k \lambda_k, \quad A^{-1} = \sum_k a_k b_k \lambda_k^{-1}. \tag{10}$$

Умножив (10) на $\cdot a_l$ и $b_l\cdot$, найдем следующие выражения для собственных значений:

$$\lambda_k = b_k\cdot A\cdot a_k = (b_k\cdot A^{-1}\cdot a_k)^{-1}. \tag{11}$$

Если A — эрмитова матрица, то, как уже отмечалось, $b_k = a_k^*$, $a_k\cdot a_l^* = \delta_{kl}$, так что из (5) следует $(\mathcal{U}^{-1})_{ij} = \mathcal{U}_{ji}^*$. Таким образом, матрица $\mathcal{U}$ унитарна: $\mathcal{U}^{-1} = \mathcal{U}^+$. При этом $\Lambda = \Lambda^*$ и вместо (6) и (10) имеем

$$A = A^+ = \mathcal{U}\cdot\Lambda\cdot\mathcal{U}^+ = \sum_k a_k a_k^* \lambda_k. \tag{12}$$

Собственные векторы и значения тензора Грина. Применим изложенный выше формализм к тензору $G\,(k\omega)$, определенному формулой (3.4.7) через тензор π, проектирующий векторы на перпендикулярную k плоскость, и тензор диэлектрической проницаемости $\varepsilon\,(k\omega)$. Теперь $N = 3$, а k, ω и $n \equiv ck/\omega$ являются параметрами тензоров (которые мы, как правило, опускаем). Полагая в (1) $A = G^{-1}$, находим уравнения, определяющие собственные векторы и значения G (мы будем нумеровать их индексом ν, $\nu = 1, 2, 3$):

$$(n^2\pi - \varepsilon)\cdot a_\nu = \frac{4\pi}{\lambda_\nu} a_\nu, \quad b_\nu\cdot(n^2\pi - \varepsilon) = \frac{4\pi}{\lambda_\nu} b_\nu. \tag{13}$$

Разложение G по собственным диадам согласно (10) и (11) имеет вид

$$G = \sum_{\nu=1}^{3} \lambda_\nu a_\nu b_\nu, \tag{14}$$

$$\lambda_\nu = \frac{4\pi}{b_\nu\cdot(n^2\pi - \varepsilon)\cdot a_\nu}. \tag{15}$$

Две тройки векторов a_ν, b_ν образуют два взаимных (биортогональных) базиса нашего трехмерного комплексного пространства:

$$a_\nu\cdot b_\mu = \delta_{\nu\mu}, \quad \sum_\nu a_\nu b_\nu = I. \tag{16}$$

В непоглощающей среде $\boldsymbol{b}_\nu = \boldsymbol{a}_\nu^*$, а в непоглощающей и негиротропной среде векторы $\boldsymbol{a}_\nu$ действительны и образуют обычную тройку ортов, ориентация которых относительно осей кристалла зависит от ω и $\boldsymbol{k}$ непосредственно через $n^2\pi$, а также через зависимость $\varepsilon(\boldsymbol{k}, \omega)$. Аналогично, $\lambda_\nu = \lambda_\nu(\boldsymbol{k}\omega)$. В изотропной поглощающей среде $\varepsilon = \varepsilon \boldsymbol{I}$, так что

$$\lambda_1 = \lambda_2 = \frac{4\pi}{n^2 - \varepsilon}, \qquad \lambda_3 = -\frac{4\pi}{\varepsilon}, \tag{17}$$

и векторы $\boldsymbol{a}_\nu$ можно выбрать действительными ($\boldsymbol{a}_3 = \boldsymbol{k}/k \equiv \hat{\boldsymbol{k}}$).

Согласно (14)

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{P} = \sum_\nu \lambda_\nu \boldsymbol{a}_\nu (\boldsymbol{b}_\nu\cdot\boldsymbol{P}), \tag{18}$$

где $\boldsymbol{P}$ — заданная поляризация (источник поля). Умножим это равенство на $\boldsymbol{b}_\mu$, тогда в силу (16)

$$\boldsymbol{E}\cdot\boldsymbol{b}_\mu = \lambda_\mu \boldsymbol{P}\cdot\boldsymbol{b}_\mu, \tag{19}$$

т. е. амплитуда поля в «направлении» $\boldsymbol{b}_\mu$ в λ_μ раз больше проекции поляризации на это направление. В изотропной среде эта амплитуда максимальна, если $n^2 \approx \varepsilon'$ (для $\nu = 1, 2$); при этом $\lambda \approx 4\pi i/\varepsilon''$ (напомним, что здесь ω и $\boldsymbol{k}$ — независимые величины).

Определим также функцию Грина для вектора индукции:

$$\boldsymbol{D} = \varepsilon\cdot\boldsymbol{E} = \boldsymbol{G}_D\cdot\boldsymbol{P}, \quad \boldsymbol{G}_D = \varepsilon\cdot\boldsymbol{G} = 4\pi(n^2\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1} - \boldsymbol{I})^{-1}. \tag{20}$$

Собственные векторы тензоров $\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1}$ и $\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi}$. Обозначим собственные значения и векторы тензора $\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1}$ через n_ν^{-2}, $\boldsymbol{d}_\nu$, $\boldsymbol{e}_\nu$:

$$\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{d}_\nu = n_\nu^{-2}\boldsymbol{d}_\nu, \qquad \boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1} = n_\nu^{-2}\boldsymbol{e}_\nu, \qquad \boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{d}_\mu = \delta_{\nu\mu}. \tag{21}$$

Согласно (3) и (6)

$$\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1} = \boldsymbol{\mathcal{D}}\cdot\boldsymbol{\Gamma}\cdot\boldsymbol{\mathcal{E}}, \tag{22}$$

$$\boldsymbol{\mathcal{D}}_{\nu\mu} \equiv (\boldsymbol{d}_\mu)_\nu, \qquad \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\nu\mu} \equiv (\boldsymbol{e}_\nu)_\mu, \qquad \boldsymbol{\Gamma}_{\nu\mu} \equiv \delta_{\nu\mu} n_\nu^{-2}, \qquad \boldsymbol{\mathcal{E}}\cdot\boldsymbol{\mathcal{D}} = \boldsymbol{I}. \tag{23}$$

Теперь $\boldsymbol{G}_D$ можно преобразовать следующим образом:

$$\boldsymbol{G}_D/4\pi = (n^2\boldsymbol{\mathcal{D}}\cdot\boldsymbol{\Gamma}\cdot\boldsymbol{\mathcal{D}}^{-1} - \boldsymbol{I})^{-1} = [\boldsymbol{\mathcal{D}}\cdot(n^2\boldsymbol{\Gamma} - \boldsymbol{I})\cdot\boldsymbol{\mathcal{D}}^{-1}]^{-1} = \boldsymbol{\mathcal{D}}\cdot(n^2\boldsymbol{\Gamma} - \boldsymbol{I})^{-1}\cdot\boldsymbol{\mathcal{D}}^{-1} =$$
$$= \sum_\nu \gamma_\nu \boldsymbol{d}_\nu \boldsymbol{e}_\nu/4\pi, \tag{24}$$

$$\gamma_\nu \equiv \frac{4\pi n_\nu^2}{n^2 - n_\nu^2} = \frac{4\pi}{n^2 \boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{d}_\nu - 1}. \tag{25}$$

Таким образом, векторы $\boldsymbol{d}_\nu$, $\boldsymbol{e}_\nu$ являются собственными и для тензора $\boldsymbol{G}_D$, а собственные значения γ_ν этого тензора просто связаны с собственными значениями тензора $\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1}$.

Представление $\boldsymbol{G}_D$ в виде суммы диад (24) соответствует разложению свободного поля по типам поляризации. Ниже будет показано, что векторы $\boldsymbol{d}_1$ и $\boldsymbol{d}_2$ перпендикулярны $\boldsymbol{k}$, а $\boldsymbol{e}_3$ параллелен $\boldsymbol{k}$. Слагаемые с $\nu = 1, 2$ соответствуют двум собственным волнам с поперечной поляризацией $\boldsymbol{D}$, а третье слагаемое соответствует волне с продольной поляризацией электрического поля $\boldsymbol{E}$.

Из (20) и (24) получаем второе диадное представление функции Грина для $\boldsymbol{E}$:

$$\boldsymbol{G} = \varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{G}_D = \sum_\nu \gamma_\nu \boldsymbol{e}'_\nu \boldsymbol{e}_\nu, \tag{26}$$

где мы определили еще одну тройку векторов:

$$\boldsymbol{e}'_\nu \equiv \varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{d}_\nu. \tag{27а}$$

Введем для симметрии четвертую тройку векторов:

$$\boldsymbol{d}'_\nu \equiv \boldsymbol{e}_\nu\cdot\varepsilon. \tag{27б}$$

Из этих определений следует, что штрихованные тройки также биортонормированы:

$$\boldsymbol{e}'_\nu\cdot\boldsymbol{d}'_\mu = \delta_{\nu\mu}. \tag{28}$$

Умножим (27а) на $\boldsymbol{d}'_\mu\cdot$ и (27б) на $\cdot\boldsymbol{e}'_\mu$, тогда

$$\boldsymbol{d}'_\mu\cdot\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{d}_\nu = \boldsymbol{e}_\nu\cdot\varepsilon\cdot\boldsymbol{e}'_\mu = \delta_{\mu\nu}. \tag{29}$$

Согласно (21), кроме определений (27), имеются еще связи:

$$\boldsymbol{d}_\nu = n_\nu^2\boldsymbol{\pi}\cdot\boldsymbol{e}'_\nu = \varepsilon\cdot\boldsymbol{e}'_\nu, \tag{30а}$$

$$\boldsymbol{d}'_\nu = n_\nu^2\boldsymbol{\pi}\cdot\boldsymbol{e}_\nu = \boldsymbol{e}_\nu\cdot\varepsilon. \tag{30б}$$

Перемножив (30а) и (30б), находим с учетом (29) и свойств проекционного оператора ($\boldsymbol{\pi}^2 = \boldsymbol{\pi} = \widetilde{\boldsymbol{\pi}}$):

$$n_\nu^{-2}\cdot\boldsymbol{d}'_\nu\cdot\boldsymbol{d}_\mu = n_\nu^2\boldsymbol{e}_\nu\cdot\boldsymbol{\pi}\cdot\boldsymbol{e}'_\mu = \boldsymbol{e}_\nu\cdot\varepsilon\cdot\boldsymbol{e}'_\mu = \delta_{\nu\mu}. \tag{31}$$

Подействуем тензором $\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi}$ на $\boldsymbol{e}'_\nu$ и учтем (27а) и (30а):

$$\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi}\cdot\boldsymbol{e}'_\nu = n_\nu^{-2}\boldsymbol{e}'_\nu. \tag{32а}$$

Аналогично, умножим $\boldsymbol{d}'_\nu$ на $\cdot\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi}$:

$$\boldsymbol{d}'_\nu\cdot\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi} = n_\nu^2\,\boldsymbol{d}'_\nu. \tag{32б}$$

Отсюда следует, что штрихованные векторы являются собственными для тензора $\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi}$.

Направим ось z декартовой системы вдоль $\boldsymbol{k}$, тогда из определения (3.4.6)

$$\boldsymbol{\pi} = \boldsymbol{I} - \hat{z}\hat{z} = \begin{Bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{Bmatrix}, \tag{33}$$

т. е. матрица проектированная $\boldsymbol{\pi}$ имеет нулевое собственное значение и является поэтому особенной (не имеющей обратной). Иногда удобно считать, что $\boldsymbol{\pi}^{-1}$ существует, полагая $\pi_{zz} = \lim\limits_{\alpha\to 0}\alpha$ и совершая предельный переход в конечных формулах. Тензор $\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1}$ (или $\varepsilon^{-1}\cdot\boldsymbol{\pi}$) также будет *особенным* — его третья строка (или столбец) в $\boldsymbol{k}$-системе состоит из нулей, и уравнение на собственные значения

$$\det\{\boldsymbol{\pi}\cdot\varepsilon^{-1} - n_\nu^{-2}\boldsymbol{I}\} = 0 \tag{34}$$

имеет нулевое решение $n_3^{-2} \sim \alpha \to 0$, $n_3^2 \to \infty$. Поэтому γ_3 в (25) равно —1

и из (30) при $\nu = 3$ следует

$$\pi \cdot e_3' = e_3 \cdot \pi = 0. \tag{35}$$

С другой стороны, умножив (30) на k, получим:

$$k \cdot d_\nu' = k \cdot d_\nu = 0 \qquad (\nu = 1, 2). \tag{36}$$

В прозрачной среде $\varepsilon = \varepsilon^+$ и $n_\nu = n_\nu^*$. Отсюда следует

$$(\pi \cdot \varepsilon^{-1})^+ = \varepsilon^{-1} \cdot \pi, \quad e_\nu' = e_\nu^*, \quad d_\nu' = d_\nu^*. \tag{37}$$

Если, кроме того, отсутствует пространственная дисперсия ($\varepsilon = \varepsilon(\omega)$) и, следовательно, гиротропия [8], то штрихованные и нештрихованные тройки векторов совпадают и все они действительны (при невырожденных собственных значениях).

Углы анизотропии. Перенормируем векторы в диадах (26) на единицу: $\hat{e}_\nu \equiv e_\nu / |e_\nu|$, $\hat{e}_\nu' \equiv e_\nu' / |e_\nu|$. Напомним, что норма комплексного вектора a и «угол» между векторами a, b определяются так:

$$|a| = \sqrt{a \cdot a^*} = \sqrt{a' \cdot a' + a'' \cdot a''}, \qquad \cos\rho = a \cdot b^* / |a|\,|b| \equiv \hat{a} \cdot \hat{b}^*.$$

Введем «углы анизотропии» (индексы $\nu = 1, 2$ временно опускаем):

$$\cos(e, \pi \cdot e) = \frac{e \cdot \pi \cdot e^*}{|e|\,|\pi \cdot e|} = |\pi \cdot \hat{e}|,$$

$$\cos(e', \pi \cdot e^*) = \frac{e' \cdot \pi \cdot e}{|e'|\,|\pi \cdot e|} = \frac{\hat{e}' \cdot \pi \cdot \hat{e}}{|\pi \cdot \hat{e}|}, \tag{39}$$

$$\cos^2\rho \equiv \cos(e, \pi \cdot e)\cos(e', \pi \cdot e^*) = \hat{e}' \cdot \pi \cdot \hat{e} = \frac{1}{n_\nu^2 |e|\,|e'|} = \frac{\varepsilon_\nu}{n_\nu^2}$$

$$(\varepsilon_\nu \equiv \hat{e}_\nu \cdot \varepsilon \cdot \hat{e}_\nu' = \varepsilon_\nu^*, \ \cos\rho_3 = 0).$$

Теперь $\gamma_\nu e_\nu' e_\nu = G_\nu \hat{e}_\nu' \hat{e}_\nu$, где $G_\nu \equiv \gamma_\nu |e_\nu|\,|e_\nu'|$, так что (26) при переходе к единичным векторам принимает вид

$$G(k, \omega) = \sum_{\nu=1}^{3} G_\nu \hat{e}_\nu' \hat{e}_\nu, \tag{40}$$

$$4\pi G_\nu^{-1} = (n^2 - n_\nu^2)\cos^2\rho_\nu = n^2\cos^2\rho_\nu - \varepsilon_\nu = \hat{e}_\nu \cdot (n^2 \pi - \varepsilon) \cdot \hat{e}_\nu'.$$

В изотропной поглощающей среде $\varepsilon = \varepsilon I$. Пусть $\varepsilon = |\varepsilon| e^{i\varphi}$ и $\hat{e}_\nu = \hat{d}_\nu = \hat{x}_\nu$ ($\hat{x}_\nu$ — орты декартовой системы с $\hat{x}_3 = \hat{k}$), тогда согласно (21), (27), (39) $n_1 = n_2 = \pm\sqrt{\varepsilon}$, $\hat{e}_\nu' = \hat{x}_\nu e^{-i\varphi}$, $\cos^2\rho_{1,2} = e^{-i\varphi}$, $\varepsilon_\nu = |\varepsilon|$. При этом (40) совпадает (14), (17).

Итак, мы получили два диадных представления тензора Грина (14) и (40), образованные из собственных векторов тензоров G, $\varepsilon^{-1} \cdot \pi$ и $\pi \cdot \varepsilon^{-1}$. Напомним, что тройки e' и e в общем случае не ортогональны друг к другу (в отличие от a и b). Представление (40) используется в § 3.4 для определения нормальных волн и функции Грина $G(kt)$, а также при квантовании поля в среде. Поле ν-й нормальной волны параллельно вектору e_ν', и если он комплексный, то поле имеет эллиптическую поляризацию (см. [157], с. 142).

ЛИТЕРАТУРА

1. *Глаубер Р.* — В сб.: Квантовая оптика и квантовая радиофизика: Пер. с англ. и франц./Под ред. О. В. Богданкевича и О. Н. Крохина.— М.: Мир. 1966, с. 91.
2. *Клаудер Дж.*, *Сударшан Э.* Основы квантовой оптики: Пер. с англ./Под ред. А. С. Ахманова.— М.: Мир. 1970.
3. *Люиселл У.* Излучение и шумы в квантовой электронике: Пер. с англ.— М.: Наука, 1972.
4. *Арекки Ф.*, *Скалли М.*, *Хакен Г. и др.* Квантовые флуктуации излучения лазера: Пер. с англ./Под ред. А. П. Казанцева.— М.: Мир. 1974.
5. *Лэкс М.* Флуктуации и когерентные явления: Пер. с англ.— М.: Мир, 1974.
6. *Лоудон Р.* Квантовая теория света: Пер. с англ./Под ред. Г. В. Скроцкого.— М.: Мир, 1976.
7. *Ахманов С. А.*, *Чиркин А. С.* Статистические явления в нелинейной оптике.— М.: Изд. МГУ, 1971.
8. *Агранович В. М.*, *Гинзбург В. Л.* Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов.— М.: Наука, 1965.
9. *Ахманов С. А.*, *Хохлов Р. В.* Проблемы нелинейной оптики.— М.: ВИНИТИ, 1964.
10. *Бломберген Н.* Нелинейная оптика: Пер. с англ./Под ред. С. А. Ахманова и Р. В. Хохлова.— М.: Мир, 1966.
11. *Файн В. М.*, *Ханин Я. И.* Квантовая радиофизика.— М.: Сов. радио, 1965.
12. *Летохов В. П.*, *Чеботаев В. П.* Принципы нелинейной спектроскопии.— М.: Наука, 1975.
13. *Апанасевич П. А.* Основы теории взаимодействия света с веществом.— Минск: Наука и техника, 1977.
14. *Аллен Л.*, *Эберли Дж.* Оптический резонанс и двухуровневые атомы: Пер. с англ./Под ред. В. Л. Стрижевского.— М.: Мир, 1978.
15. Резонансные взаимодействия света с веществом/Бутылкин В. С., Каплан А. Е., Хронопуло Ю. Г. и др.— М.: Наука, 1977.— (Современные проблемы физики).
16. *Рапопорт Л. П.*, *Зон Б. А.*, *Манаков Н. Л.* Теория многофотонных процессов в атомах.— М.: Атомиздат, 1978.
17. *Делоне Н. Б.*, *Крайнов В. П.* Атом в сильном световом поле.— М.: Атомиздат, 1978.
18. *Тарасов Л. В.* Физические основы квантовой электроники.— М.: Сов. радио, 1976.
19. *Вавилов С. И.* Микроструктура света.— М.: Изд. АН СССР, 1950.
20. *Фабелинский И. Л.*— УФН, 1978, т. 126, с. 123.
21. *Mayer-Goppert M.*— Naturwiss., 1931, v. 17, p. 932.
22. *Lipeles M.*, *Novick R.*, *Tolk N.*— Phys. Rev. Lett., 1965, v. 15, p. 690.
23. *Kaul R. D.*— J. Opt. Soc. Amer., 1966, v. 56, p. 1262.

23а. *Imhov R. E.*, *Read F. H.*— Rep. Prog. Phys., 1977, v. 40, p. 1.

23б. *Пауль Г.*— Квант. электр., 1977, т. 4, с. 2513.

24. *Brady E. L.*, *Deutsch M.*— Phys. Rev., 1947, v. 72, p. 870.
25. *Heitler W.*, *Nordheim L.*— Physica, 1934, v. 1, p. 240.
26. *Eisenberger P.*, *McCall S. L.*— Phys. Rev. Lett., 1971, v. 26, p. 684.

27. *Hughes V., Grabner L.*— Phys. Rev., 1950, v. 79, p. 314.
28. *Winter J.*— J. Phys. et Rad., 1958, v. 19, p. 802.
29. *Восканян А. В., Клышко Д. Н., Туманов В. С.*— ЖЭТФ, 1963, т. 45, с. 1399.
30. *Клышко Д. Н., Ярыгин В. П.*— ЖЭТФ, 1964, т. 46, с. 2011.
31. *Клышко Д. Н., Туманов В. С.*— ЖЭТФ, 1964, т. 47, с. 2035.
32. *Kellington C. M.*— Phys. Rev. Lett., 1962, v. 9, p. 57.
33. *Клышко Д. Н., Пенин А. Н., Туманов В. С.*— ЖЭТФ, 1965, т. 49, с. 1724.
34. *Fontana J. R., Pantell R. H., Smith R. G.*— J. Appl. Phys., 1962, v. 33, p. 2085.
35. *Senitzky B., Gordon G., Cutler S.*— Phys. Rev., 1963, v. 130, p. 1460.
36. *Клышко Д. Н., Константинов Ю. С., Туманов В. С.*— Изв. вузов: сер. Радиофиз., 1965, т. 8, с. 513.
37. *Louisell W. H., Yariv A., Siegman A. E.*— Phys. Rev., 1961, v. 124, p. 1646.
38. *Forrester A. T., Gudmunsen R. A., Johnson P. O.*— Phys. Rev., 1955, v. 99, p. 1691.
38a. *Chang C. S., Stehle P.*— Phys. Rev., 1972, v. 5, p. 1928.
39. *Brown R. H., Twiss R. Q.*— Nature, 1956, v. 177, p. 27.
40. *Franken P. et al.*— Phys. Rev. Lett., 1961, v. 7, p. 118.
41. *Robl H. R.*— In: Quantum Electronics.— N. Y., 1964, p. 1535.
42. *Кролль Н.*— В сб. [1], с. 9.
43. *Гринберг А. А., Крамер Н. И.*— ФТТ, 1966, т. 8, с. 1555.
44. *Клышко Д. Н.*— Письма в ЖЭТФ, 1967, т. 6, с. 490.
45. *Ахманов С. А., Фадеев В. В., Хохлов Р. В., Чунаев О. Н.*— Письма в ЖЭТФ, 1967, т. 6, с. 575.
46. *Harris S. E., Oshman M. K., Byer R. L.*— Phys. Rev. Lett., 1967, v. 18, p. 732.
47. *Magde D., Mahr, H.*— Phys. Rev. Lett., 1967, v. 18, p. 905.
47a. *Magde D., Scarlet R., Mahr H.*— Appl. Phys. Lett., 1967, v. 11, p. 381.
48. *Magde D., Mahr H.*— Phys. Rev., 1968, v. 171, p. 393.
49. *Byer R. L., Harris S. E.* — Phys. Rev., 1968, v. 168, p. 1064.
50. *Giallorenzi T. G., Tang C. L.*— Appl. Phys. Lett., 1968, v. 12, p. 376.
51. *Budin J. P., Godard B., Ducuing J.*— IEEE, 1968, v. QE4, p. 831.
52. *Smith R. G. et al.*— Appl. Phys. Lett., 1968, v. 12, p. 97.
53. *Клышко Д. Н., Криндач Д. П.*— ЖЭТФ, 1968, т. 54, с. 697; Опт. и спектр., 1969, т. 26, с. 981.
54. *Byer R. L. et al.*— J. Appl. Phys., 1969, v. 40, p. 444.
55. *Dowley M. W.*— Opto-electr., 1969, v. 1, p. 179.
56. *Giallorenzi T. G., Tang C. L.*— Phys. Rev., 1969, v. 184, p. 353.
57. *Клышко Д. Н., Пенин А. Н., Полковников Б. Ф.*— Письма в ЖЭТФ, 1970, т. 11, с. 11.
58. *Campillo A. J., Tang C. L.*— Appl. Phys. Lett., 1970, v. 16, p. 242.
59. *Kruger J. S., Gleason T. J.*— J. Appl. Phys., 1970, v. 41, p. 3903.
60. *Burnham D. C., Weinberg D. L.*— Phys. Rev. Lett., 1970, v. 25, p. 84.
61. *Weinberg D. L.*— J. Appl. Phys., 1970, v. 41, p. 4239.
62. *Amman E. O., Yarborough J. M.*— Appl. Phys. Lett., 1970, v. 17, p. 233.
63. *Криндач Д. П., Кроль Л. М.*— Опт. и спектр., 1971, т. 30, с. 140.
64. *Claus R.*— Opt. Com., 1971, v. 3, p. 17.
65. *Клышко Д. Н., Пенин А. Н., Полковников Б. Ф.*— Квант. электр., 1971, т. 5, с. 122.
66. *Hordvic A., Schlossberg H. R., Stickley C. M.*— Appl. Phys. Lett., 1971, v. 18, p. 448.
67. *Yarborough J. M., Massey E. M.*— Appl. Phys. Lett., 1971, v. 18, p. 438.
68. *Winter F. X.*— Phys. Lett., 1972, v. 40A, p. 425.
69. *Rabson T. A. et al.*— Appl. Phys. Lett., 1972, v. 21, p. 129.

70. *Киселев В. А., Куцов В. Ф., Пенин А. Н. и др.*— ЖЭТФ, 1972, т. 62, с. 1846.
71. *Клышко Д. Н., Куцов В. Ф., Пенин А. Н. и др.*— ЖЭТФ, 1972, т. 62, с. 1291.
72. *Бурнейка К. П., Игнатовичюс М. В., Кабелка В. И. и др.*— Письма в ЖЭТФ, 1972, т. 16, с. 365.
73. *Pearson J. E., Yariv A., Ganiel U.*— Appl. Opt., 1973, v. 12, p. 1165.
74. *Montgomery G. P., Giallorenzi T. G.*— Phys. Rev., 1973, v. B8, p. 808.
75. *Горохов Ю. А., Криндач Д. П., Майоров В. С. и др.*— Опт. и спектр., 1974, т. 36, с. 1001.
76. *Георгиев Г. М., Китаева Г. Х., Михайловский А. Г. и др.*— ФТТ, 1974, т. 16, с. 3524.
77. *Георгиев Г. М., Михайловский А. Г., Пенин А. Н. и др.*— ФТТ, 1974, т. 16, с. 2907.
78. *Акципетров О. А., Георгиев Г. М., Митюшева И. В. и др.*— ФТТ, 1975, т. 17, с. 2027.
79. *Nicola J. H., Freitas J. A., Leite R. C.*— Sol. State Com., 1975, v. 17, p. 1379.
80. *Chemla D. S., Batifold E.*— Appl. Phys. Lett., 1976, v. 28, p. 135.
81. *Акципетров О. А., Георгиев Г. М., Михайловский А. Г. и др.*— ФТТ, 1976, т. 18, с. 665.
82. *Акципетров О. А., Георгиев Г. М., Лаптинская Т. В. и др.*— Квант. электр., 1976, т. 3, с. 926.
83. *Акципетров О. А., Китаева Г. Х., Пенин А. Н.*— ФТТ, 1977, т. 19, с. 1001.
84. *Акципетров О. А., Китаева Г. Х., Пенин А. Н.*— ФТТ, 1977, т. 19, с. 127.
85. *Акципетров О. А., Китаева Г. Х., Пенин А. Н.*—ФТТ, 1978, т. 20, с. 402.
86. *Georgiev G. M., Nicolov J. S.*— Phys. Stat. Sol., 1978, v. 86, p. 431.
87. *Giallorenzi T. G., Tang C. L.*— Phys. Rev., 1968, v. 166, p. 225.
88. *Kleiman D. A.*— Phys. Rev., 1968, v. 174, p. 1027.
89. *Клышко Д. Н.*— ЖЭТФ, 1968, т. 55, с. 1006.
90. *Зельдович Б. Я., Клышко Д. Н.*— Письма в ЖЭТФ, 1969, т. 9, с. 69.
91. *Обуховский В. В., Стрижевский В. Л.*— ЖЭТФ, 1969, т. 57, с. 520.
92. *Obukhovskii V. V., Ponath H. E., Strizhevskii V. L.*— Phys. Stat. Sol., 1970, v. 41, p. 837.
93. *Стрижевский В. Л., Обуховский В. В., Понат Г. Э.*— ЖЭТФ, 1971, т. 61, с. 537.
94. *Зельдович Б. Я.*— ЖЭТФ, 1970, т. 58, с. 1348.
95. *Mollow B. R.*— Phys. Rev. A, 1973, v. 8, p. 2684.
96. *Клышко Д. Н., Назарова Н. И.*— ЖЭТФ, 1973, т. 43, с. 2158.
97. *Бушуев В. А., Клышко Д. Н.*— ЖТФ, 1973, т. 43, с. 2255.
98. *Баранова Н. Б. Зельдович Б. Я.*— ЖЭТФ, 1976, т. 71, с. 727.
99. *Клышко Д. Н.*— Квант. электр., 1977, т. 4, с. 1056.
100. *Mollow B. R., Glauber R. I.*— Phys Rev., 1967, v. 160, p. 1076.
101. *Mista L., Perina J.*— Czech. J. Phys., 1978, v. B28, p. 392.
102. *Henry C. H., Hopfield J. J.*— Phys. Rev. Lett., 1965, v. 15, p. 964.
103. *Porto S. P. S., Tell P., Damen T. C.*— Phys. Rev. Lett., 1966, v. 16, p. 450.
104. *Barker A. S., Loudon R.*— Rev. Mod. Phys., 1972, v. 44, p. 18.
105. *Поливанов Ю. Н.*— УФН, 1978, т. 126, с. 185.
106 *Соколовский Р. И.*— Опт. и спектр., 1972, т. 33, с. 586.
107. *Косолобов С. Н., Соколовский Р. И.*— Изв. вузов: сер. Физ., 1975, № 7, с. 52.
108. *Kosolobov S. N., Sokolovsky R. I.*— Opt. Com., 1977, v. 23, p. 128.
109. *Клышко Д. Н., Назарова Н. И., Хохлов Р. В.*— ЖЭТФ, 1970, т. 58, с. 878.

110. *Bersohn R.*— J. Amer. Chem. Soc., 1964, v. 86, p. 3505.
111. *Kielich S.*— Physica, 1964, v. 30, p. 1717.
112. *Li Y. Y.*— Acta Phys. Sinica, 1964, v. 20, p. 164.
113. *Ахманов С. А., Клышко Д. Н.*— Письма в ЖЭТФ, 1965, т. 2, с. 171.
114. *Terhune R. W., Maker P. D., Savage C. M.*— Phys. Rev. Lett., 1965, v. 14, p. 681.
115. *Ницолов С. Л.*— Вестн. Моск. ун-та,. 1977, т. 18, с. 75.
116. *Келих С.*— Квант. электр., 1977, т. 4, с. 2574.
117. *Денисов В. Н., Маврин Б. Н., Подобедов В. Б. и др.*— ЖЭТФ, 1978, т. 75, с. 684.
118. *Днепровский В. С., Карменян К. В., Нурминский И. И.*— Изв. АН Арм. ССР: сер. Физ., 1972, т. 7, с. 348.
119. *Penzkofer A., Laubereau A., Kaiser W.*— Phys. Rev. Lett., 1973, v. 31, p. 863.
120. *Гринберг А. А., Рывкин С. М., Фишман И. М. и др.*— Письма в ЖЭТФ, 1968, т. 7, с. 324.
121. *Weinberg D. L.*— Appl. Phys. Lett., 1969, v. 14, p. 32.
122. *Meadors J. G., Kavage W. T., Damon E. K.*— Appl. Phys. Lett., 1969, v. 14, p. 360.
123. *Ito H., Inaba H.*— Opto-electr., 1970, v. 2, p. 81.
124. *Eichler H., Knof J.*— Zs. Phys., 1971, v. 241. p. 271.
125. *Giuliani S. F.*— IEEE, 1972, v. QE8, p. 241.
126. *Andrews R. A., Rabin H., Tang C. L.*— Phys. Rev. Lett., 1970, v. 25, p. 605.
127. *Аракелян С. М., Тункин В. Г., Холодных А. И. и др.*— ЖЭТФ, 1974, т. 44, с. 1253.
128. *Бабин А. А., Беляев Ю. Н., Фрейдман Г. И.*— Квант. электр., 1976, т. 3, с. 101.
129. *Tang C. L.*— Phys. Rev., 1969, v. 182, p. 367.
130. *Клышко Д. Н., Назарова Н. И.*— ЖЭТФ, 1970, т. 58, с. 878.
131. *Ильинский Ю. А., Петникова В. М.*— Квант. электр., 1972, № 5, с. 124.
132. *Ильинский Ю. А., Петникова В. М.*— ЖТФ, 1973, т. 43, с. 803.
133. *Ильинский Ю. А., Клышко Д. Н., Петникова В. М.*— Квант. электр., 1975, т. 2, с. 2467.
134. *Terhune R. W.*— Bull. Amer. Phys. Soc., 1963, v. 8, p. 359.
135. *Венкин Г. В., Клышко Д. Н., Кулюк Л. Л.*— Квант. электр., 1977, т. 4, с. 982.
136. *Клышко Д. Н.*— ЖЭТФ, 1973, т. 64, с. 1160.
137. *Клышко Д. Н.*— Квант. электр., 1977, т. 4, с. 1341.
138. *Maker P. D., Terhune R. W.*— Phys. Rev., 1965, v. 137, p. 801.
139. *Ахманов С. А., Коротеев Н. И.*— УФН, 1977, т. 123, с. 405.
140. *Harris S. E., Miles R. B.*— Appl. Phys. Lett., 1971, v. 19, p. 385.
141. *Соколовский Р. И.*— ЖЭТФ, 1970, т. 59, с. 799.
142. *Schuda F., Stroud C., Hercher M.*— J. Phys., 1974, v. B7, p. 198.
143. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Электродинамика сплошных сред.— М.: Физматгиз, 1959.
144. *Левин М. Л., Рытов С. М.* Теория равновесных тепловых флуктуаций в электродинамике.— М.: Наука, 1967.
145. *Файн В. М., Ящин Э. Г.*— ЖЭТФ, 1964, т. 46, с. 695.
146. *Butcher P. N., Ogg N. R.*— Proc. Phys. Soc., 1965, v. 86, p. 699.
147. *Haus H. A., Kelley P. L., Zeiger H. J.*— Phys. Rev. 1965, v. A138, p. 960.
148. *Ефремов Г. Ф.*— ЖЭТФ, 1968, т. 55, с. 2322.
149. *Стратонович Р. Л.*— ЖЭТФ, 1970, т. 58, с. 1612.
150. *Shen Y. R.*— Phys. Rev., 1967, v. 155, p. 921.
151. *Percell E. M.*— Nature, 1956, v. 178, p. 1449.

152. *Бонч-Бруевич В. Л., Тябликов С. В.* Метод функций Грина в статистической механике.— М.: Физматгиз. 1961.
153. *Арсеньев В. В., Днепровский В. С., Клышко Д. Н., Пенин А. Н.*— ЖЭТФ, 1969, т. 56, с. 760.
154. *Yatsiv S., Rokni M., Barak S.*— Phys. Rev. Lett., 1968, v. 20, p. 1282
155. *Сухоруков А. П., Щеднова А. К.*— ЖЭТФ, 1971, т. 60, с. 1251.
156. *Беллман Р.* Введение в теорию матриц: Пер. с англ./Под ред. В. Б. Лидского.— М.: Наука, 1969.
157. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Теория поля.— М., 1960. Физматгиз.
158. *Стрижевский В. Л.*— ФТТ, 1962, т. 4, с. 1492.
159. *Болошин И. А., Герценштейн М. Е.*— ЖЭТФ, 1978, т. 75, с. 1584.
160. *Kimble H. J., Dagenais M., Mandel L.*— Phys. Rev. Lett., 1977, v. 39, p. 691.
161. *Зельдович Б. Я., Переломов А. М., Попов В. С.*— ЖЭТФ, 1969. т. 57, с. 196.
162. *Левин М. Л., Рытов С. М.*— ЖЭТФ, 1973, т. 65, с. 1382.
163. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Статистическая физика.— М.: Наука, 1964.
164. Спектроскопия оптического смешения и корреляция фотонов/Под ред. Г. Камминса и Э. Пайка: Пер. с англ./Под ред. Ф. В. Бункина.— М.: Мир, 1978.
165. *Кросиньяни Б., Ди Порто П., Бертолотти М.* Статистические свойства рассеянного света: Пер. с англ./Под ред. И. Л. Фабелинского.— М.: Наука, 1980.
166. *Baltes H. P.*— In: Progress in Optics, 1976, v. 13.
167. *Ван де Хюлст Г.* Рассеяние света малыми частицами: Пер. с англ./Под. ред. В. В. Соболева.— М.: ИЛ, 1961.
168. *Rockower E. B., Abraham N. B., Smith S. R.*— Phys. Rev. A, 1978, v. 17, p. 1100.
169. *Coffinet J. P., De Martini F.*— Phys. Rev. Lett., 1969, v. 22, p. 60.
170. *Клышко Д. Н.*— Квант. электр., 1975, т. 2, с. 265.
171. *Поливанов Ю. Н., Суходольский А. Т.*— Письма в ЖЭТФ, 1977, т. 25, с. 240.
172. *Zych L. J. et al.*— Phys. Rev. Lett., 1978, v. 40, p. 1493.
173. *Grun J. B., McQuillan A. K., Stoicheff B. P.*— Phys. Rev., 1969, v. 180, p. 61.
174. *Yatsiv S., Rokni M., Barak S.*— J. Quant. Electr., 1968, v. 4, p. 900.
175. *Mollow B. R.*— Phys. Rev., 1969, v. 188, p. 1969.
176. *Эзекиль Ш., Ву Ф. Ю.*— Квант. электр., 1978, т. 5, с. 1721.
177. *Брагинский В. Б., Воронцов Ю. И.*— УФН, 1974, т. 114, с. 41.
178. *Соколов И. В.*— ЖЭТФ, 1977, т. 72, с. 1688.
179. *Yuen H. P.*— Phys. Rev. A, 1976, v. 13, p. 2226.
180. *Голубев Ю. М.*— Опт. и спектр., 1979, т. 46, с. 3.
181. *Петникова В. М.*— Квант. элекр., 1979, т. 6, с. 456.
182. *Косолобов С. Н., Соколовский Р. И.*— ЖЭТФ, 1979, т. 76, с. 816.
183. *Бочков Г. Н., Кузовлев Ю. Е.*— ЖЭТФ, 1979, т. 76, с. 1071.
184. *Клышко Д. Н.*— ДАН СССР, 1979, т. 244, с. 563.
185. *Стратонович Р. Л.*— ДАН СССР, 1979, т. 245, с. 354.
186. *Келих С.* Молекулярная нелинейная оптика: Пер. с польск./Под ред. И. Л. Фабелинского.— М.: Наука, 1980.
187. *Китаева Г. Х., Пенин А. Н., Фадеев В. В. и др.*— ДАН СССР, 1979, т. 247, с. 586.
188. *Стратонович Р. Л., Крупенников Н. А.*— Изв. вузов: сер. Радиофиз., 1972, т. 15, с. 1834.
189. *Климонтович Ю. Л.*— ЖЭТФ, 1978, т. 775, с. 1694.

ОГЛАВЛЕНИЕ

Предисловие 7

Некоторые обозначения 12

Глава 1. **Рассеяние света на свете в веществе** 13

§ 1.1. Параметрическое рассеяние (ПР) 13

Спектр ПР (13). Когерентное рассеяние (15). Нулевые флуктуации вакуума (16). Эффективная температура ПР (16). Число фотонов на моду и яркость света (18). Яркость ПР (21). Параметрическая сверхлюминесценция (22). Перестроечные кривые (23). Интегральные интенсивности ПР (25).

§ 1.2. Рассеяние на поляритонах (РП) 27

Поляритоны и закон дисперсии (27). Сравнение ПР и РП (28). Интенсивность РП (28). Частотно-угловой спектр РП (29). Нормальная и аномальная дисперсия (30). Эффект линеаризации (31).

§ 1.3. Четырехфотонное рассеяние и нелинейная спектроскопия . . 32

Гиперпараметрическое рассеяние (ГПР) (32). Каскадное ГПР (34). Гиперкомбинационное рассеяние (ГКР) (34). Излучение бифотонов при КР (34). Резонансная люминесценция (35). Двухфотонная резонансная люминесценция (35). Нелинейная спектроскопия (35).

§ 1.4. Многофотонные эффекты — историко-библиографический очерк 36

Каменный (долазерный) век (36). Лазерный век (38). Трехфотонное параметрическое рассеяние (38). Другие виды рассеяния (40). Гиперпараметрическое рассеяние (41).

Глава 2. **Некоторые сведения из квантовой механики и статистической физики** 43

§ 2.1. Переход от классического описания к квантовому 43

Квантование уравнений движения (43). Выбор представления (45). Сравнение теории и эксперимента (46). Экспериментальная процедура (46).

§ 2.2. Обозначения Дирака и геометрическая интерпретация квантовой механики 48

Функции как векторы (48). Преобразования функций и тензоры (49). Разложение единицы (50). Различные представления (51). Унитарные преобразования (52). Связь с физикой (53). Время как параметр (54). Квантовые функции корреляции (56). Смешанные состояния и матрица плотности (56).

§ 2.3. Представление взаимодействия и теория возмущений 58
Представление взаимодействия (58). Другие представления (60). Теория возмущений для оператора рассеяния (61). Вероятность перехода (62). Скорость перехода (63).
§ 2.4. Флуктуационно-диссипативные теоремы (ФДТ) 64
Линейная ФДТ (65). Спектральная форма (68). Симметрия моментов и восприимчивостей (68). Квадратичная ФДТ (69). Приближенная кубическая ФДТ (71).
§ 2.5. Релаксация и кинетические уравнения 73
Кинетическое уравнение для матрицы плотности (74). Кинетические уравнения для средних (75). Кинетические уравнения для населенностей (76). Спонтанные и вынужденные переходы (77).

Глава 3. **Основы квантовой оптики** 79
§ 3.1. Канонические переменные электромагнитного поля 79
Динамические уравнения для поля (79). Пространственное фурье-преобразование полей (80). Канонические переменные поля (82). Канонические уравнения поля и функция Грина (82). Роль размеров нормировочного объема (84).
§ 3.2. Квантование электромагнитного поля 84
Гамильтониан поля (84). Коммутаторы операторов поля (85). Свободное поле (88). Разложение операторов поля в частотный интеграл Фурье (88).
§ 3.3. Возможные состояния поля 90
Энергетические и когерентные состояния (90). Многомодовое поле (92). Свойства базисных состояний (94). Смешанные состояния (94). Характеристическая функция (96). Динамика состояния поля (98). Матрица рассеяния поля (100).
§ 3.4. Функция Грина и квантование макроскопического поля в среде 101
Феноменологические уравнения Максвелла (101). Функция Грина для поля в среде (102). Нормальные волны (104). Закон дисперсии (104). Переход к $\boldsymbol{kt}$-представлению (105). Квантование поля в среде (106). Представление $\omega\boldsymbol{r}$ (108).

Глава 4. **Тепловое излучение в линейном приближении** 110
§ 4.1. Статистика равновесного поля в свободном пространстве . . . 111
Равновесный статистический оператор (111). Характеристическая функция (111). Статистика фотонов (111).
§ 4.2. Флуктуации макроскопического поля в веществе 113
Двухэтапный расчет (113). Прямой путь (114). $\boldsymbol{kt}$-представление (115). Проблема наблюдения (116). Флуктуации поля в изотропной среде (116).
§ 4.3. Тепловое излучение нагретых тел 118
Применение ФДТ (116). Закон Кирхгофа (120).
§ 4.4. Обобщенный закон Кирхгофа (ОЗК) 121
Входное и выходное поля (122). Матрица рассеяния (122). Векторные обозначения (124). Вывод ОЗК по Найквисту (124). Частные случаи (126). Высшие моменты ТИ (127). Тепловое поле по теории возмущения (128). Вывод ОЗК по Ланжевену (129). . . . . .

§ 4.5. Вывод ОЗК с помощью кинетического уравнения 129
Тепловое излучение и кинетическое уравнение (129). Кинетическое уравнение для χ-функции (130). Уравнения для моментов (133). Шумы квантовых усилителей (134).
§ 4.6. Тепловое излучение в дальней зоне 135
Дальнее поле и операторы a_k (135). Функция корреляции (136). Измерение модуля МР (137). Микроскопическая модель (137). Объем когерентности (139). Счет фотонов (140). Феноменологическая модель (141).
§ 4.7. Интерференция интенсивностей 142
Вероятность совпадения фотоотсчетов (143). Роль объема детектирования (144). Интерпретация эффекта (146).

Глава 5. **Влияние ангармонизма вещества на его тепловое излучение** 148
§ 5.1. Многофотонные переходы и высшие моменты поля 149
Ангармонизм и корреляция разночастотных мод (149). Равновесная и неравновесная задачи (149). Двухфотонный парадокс (150).
§ 5.2. Вычисление моментов поля с помощью теории возмущения 151
Связь выходных и входных моментов (152). Общие свойства преобразования (154). Высшие поправки (155).
§ 5.3. Третий момент теплового поля 156
Связь с двухвременной функцией корреляции молекул (156). Интерпретация эффекта (158). Оценка куба поля (160). Проблема детектирования (161).
§ 5.4. Двухфотонный закон Кирхгофа 163
Эффективное кинетическое уравнение (163). Первые моменты (165). Вторые моменты (166). Четвертые моменты (167). Двухфотонный закон Кирхгофа (168). Сравнение с однофотонным ТИ (169). Скорость совпадений фотоотсчетов (170). ОЗК для третьего момента (172).

Глава 6. **Параметрическое рассеяние** 174
§ 6.1. Скорость генерации бифотонов 175
Третий порядок теории возмущения (175). Эффективный гамильтониан (177). Вероятность рождения бифотонов (178). Дифференциальная скорость рождения бифотонов (179). Закон сохранения импульса (180).
§ 6.2. Интегральная интенсивность ПР 181
Детектор с низким частотным разрешением (182). Яркость света ПР (183). Детектор с низким угловым разрешением (184). Учет непараллельности групповой и фазовой скоростей (185).
§ 6.3. Форма спектральной линии ПР 186
Длина когерентности (187). $\boldsymbol{k}$-спектроскопия (188). Эффективная ширина линии (189). Вырожденный случай (190). Влияние спектра накачки на спектр сигнала (190). Гауссов луч накачки (191).
§ 6.4. Статистика поля и метрологические применения ПР 194
Уравнения Гейзенберга для операторов поля (195). Спонтанное рассеяние (196). Эталонный генератор фотонов (197).

Скорость совпадений при гауссовой накачке (198). Абсолютный радиометр (201). Ошибки измерения (202).

§ 6.5. Параметрическая сверхлюминесценция 203

Монохроматическая накачка (204). Характеристическая функция (205). Одномерная модель: представления $\omega q z$ и kz (207). Модулированная накачка и представление ММА (210).

§ 6.6. Рассеяние на поляритонах (РП) 213

Описание РП с помощью линейной ФДТ (213). Применение нелинейной ФДТ (216). Однополюсное приближение (218). Закон Кирхгофа для ПР и РП (220).

Глава 7. **Гиперпараметрическое и комбинационное рассеяния** . . 224

§ 7.1. Нерезонансное ГПР 224

Центросимметричная среда (224). ГПР в пьезокристаллах (225). Интенсивность ГПР в пьезокристаллах (229). Статистика каскадного ГПР (230).

§ 7.2. Резонансное ГПР и комбинационное рассеяние 230

Уравнение для медленно-меняющихся операторов поля (231). Вакуумные шумы (232). Молекулярные шумы (233).

§ 7.3. Корреляция стоксова и антистоксова излучения при КР . . 234

Классическая модель (234). Феноменологическое описание (235). Корреляция в одномерном приближении (238). Скорость совпадений (240). Гауссова накачка (242). Оценка числа совпадений (245).

Приложение. **Функция Грина и типы поляризации поля в поглощающей анизотропной среде** 246

Диагонализация и обращение неэрмитовых матриц (246). Собственные векторы и значения тензора Грина (248). Собственные векторы тензоров $\pi \cdot \varepsilon^{-1}$ и $\varepsilon^{-1} \cdot \pi$ (249). Углы анизотропии (251).

Литература 252