

УДК 535.32

ПРОБЛЕМА ПОЛУЧЕНИЯ ВЫСОКОГО
ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ
И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА
ГЕТЕРОГЕННЫХ СРЕД

О. А. Займидорога, В. Н. Самойлов

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

И. Е. Проценко

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, Москва

ВВЕДЕНИЕ	101
НЕКОТОРЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОПТИЧЕСКИХ СРЕД	107
ВЫСОКИЙ ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ В УСЛОВИЯХ ПРОЗРАЧНОСТИ, НАВЕДЕННОЙ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫМ ПОЛЕМ	111
Поляризуемость двухуровневой системы.	111
Дисперсия без поглощения в трехуровневой Λ -системе.	114
Поправка локального поля и самоуширение в газе Λ - атомов.	116
ЛОКАЛЬНОЕ ПОЛЕ В ГЕТЕРОГЕННЫХ СРЕДАХ	120
Поправка локального поля и формула Клаузиуса– Моссотти.	120
Самоуширение.	123
Формула Максвелла–Гарнета для локального поля.	127
Оптические свойства гетерогенных сред, обусловленные локальным полем: современное состояние исследований.	130
ВЫСОКИЙ ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ В СИСТЕМЕ С ВНЕШНИМ РЕЗОНАТОРОМ	138
ВЫСОКИЙ ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ И ГИГАНТСКОЕ УСИЛЕНИЕ В ГЕТЕРОГЕННОЙ ОПТИЧЕСКОЙ СРЕДЕ С МЕТАЛЛИЧЕСКИМИ НАНОЧАСТИЦАМИ	144
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	150

УДК 535.32

ПРОБЛЕМА ПОЛУЧЕНИЯ ВЫСОКОГО
ПОКАЗАТЕЛЯ ПРЕЛОМЛЕНИЯ
И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА
ГЕТЕРОГЕННЫХ СРЕД

O. A. Займидорога, B. N. Самойлов

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

I. E. Проценко

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, Москва

Обсуждается современное состояние исследований оптических свойств резонансных атомарных сред и гетерогенных сред из наночастиц в прозрачной матрице при учете эффектов локального поля в связи с задачей получения высокого и управляемого показателя преломления и гигантского коэффициента усиления. Последняя задача обсуждается на примере среды трехуровневых Λ -атомов, системы с «искусственным локальным полем», использующей перерассеяние излучения во внешний резонатор, и гетерогенной среды с металлическими наночастицами, в которой, при наличии источника энергии, оказываются возможными гигантские коэффициенты усиления. Линейные оптические свойства гетерогенных сред сравниваются с соответствующими свойствами резонансных атомарных сред; анализируются преимущества и недостатки обоих типов сред, самоуширение, рэлеевское рассеяние, физический механизм и различные способы описания локального поля.

The state-of-art of research of optical properties of resonance atomic media and heterogeneous media of nanoparticles in the transparent matrix is discuss with an account of local field effects in relation to the problem of the realization of high and controllable index of refraction and giant amplification coefficient. The last problem is discussed with examples of the medium of three-level Λ atoms; the medium with the «artificial local field» with the rescattering of the radiation into the external cavity; the heterogeneous medium with metallic nanoparticles where, at presence of the external energy source, a giant amplification coefficient became possible. Linear optical properties of heterogeneous media are compared with respective properties of resonant atomic media; advantages and disadvantages of media of both kinds, the self-broadening, Rayleigh scattering, the physical mechanism and various approaches for the description of the local field are analyzed.

ВВЕДЕНИЕ

Применение когерентного излучения для исследования свойств и управления малыми объектами, содержащими небольшое число атомов, требует точного и быстрого контроля параметров световых пучков: их поперечных

размеров, направления, длины волны, длительности и формы импульсов. Точный контроль светового пучка необходим, например, для спектроскопии одиночных атомов и молекул [1], для функционирования логических ячеек квантовых компьютеров [2], при использовании квантовых свойств света для сверхпредCISIONНЫХ (неразрушающих) измерений [3], бесшумового усиления сверхслабых (квантовых) полей [4], квантовой криптографии [5]. Задачи контроля оптического когерентного излучения вызывают растущую потребность в оптических материалах с новыми, наперед заданными и управляемыми свойствами и стимулируют экспериментальные и теоретические исследования новых оптических материалов.

С исследованиями пассивных (поглощающих) *резонансных* оптических материалов, т. е. таких, в которых собственная частота колебаний атомных электронов близка к частоте квазимонохроматического излучения, связаны открытия замечательных особенностей распространения излучения в веществе, таких как самоиндуцированная прозрачность [6], самофокусировка [7], эффекты локального поля [8–11], узкие резонансы в доплеровски-уширенном газе [12, 13], прозрачность, наведенная электромагнитным полем (Electromagnetically Induced Transparency — EIT) [14–17], когерентный захват спонтанного излучения (Coherent Population Trapping) [18], и других, имеющих как фундаментальное, так и прикладное значение. Активные оптические (лазерные) материалы могут использоваться как для управления, так и для генерации когерентного излучения. В настоящее время в полупроводниковых лазерах получены очень высокие (до 10^4 см^{-1}) коэффициенты усиления [19]. Повышение коэффициента усиления позволяет понизить пороговый ток накачки, что приведет к уменьшению теплопотерь в полупроводниковых микролазерах, являющихся частью интегральных схем. Задача уменьшения тепловыделения чрезвычайно актуальна для современной микрэлектроники. Большой коэффициент усиления позволяет получать генерацию в малых объемах активных сред при меньшей добротности резонатора, что снижает требования к качеству зеркал и, следовательно, повышает надежность и снижает стоимость лазеров. Известны лазер без инверсии в системах А-атомов (типа используемых для EIT) [20], низкотороговый и беспороговый полупроводниковый лазер без инверсии [21]. Безинверсная и беспороговая лазерная генерация, представляющая интерес для фундаментальных и прикладных исследований, облегчается в среде с большим усилением.

Использование резонансных сред для управления лазерным излучением весьма перспективно. Например, широко известны оптические бистабильные среды для создания оптических затворов [22]; предложена EIT-среда с высоким показателем преломления (Phaseonium) [14]. В большинстве резонансных сред элементарной частицей, взаимодействующей с полем, является отдельный атом. По причинам, подробно анализируемым в обзоре на примере EIT-сред, особые свойства атомарных резонансных сред бывает трудно

использовать для получения высокого показателя преломления и управления когерентным излучением. Достаточно отметить, что многие когерентные эффекты исчезают при плотностях газа выше $10^{13}–10^{14}$ см $^{-3}$. Поэтому не случайно, что в настоящее время растет интерес к исследованию оптических свойств *гетерогенных* сред, в которых элементарная частица (наночастица), резонансно взаимодействующая с полем, содержит большое число атомов. Наночастица размером много меньше длины волны оптического диапазона может содержать до $N \sim 10^6$ атомов, поэтому ее поляризуемость оказывается $\sim N$ и по абсолютной величине может быть много больше, чем поляризуемость отдельного атома. Последняя гипотеза подтверждается, например, аномально высоким поглощением в кластерных средах [23].

Хотя физические свойства гетерогенных сред изучаются давно, идея об использовании оптических свойств гетерогенных сред для управления когерентным излучением возникла сравнительно недавно [24–29], но уже привлекла внимание экспериментаторов. К настоящему времени они образуют новый класс резонансных оптических сред с особыми свойствами.

Задача настоящего обзора — проинформировать о новых эффектах в резонансных гетерогенных средах, которые приводят к резкому увеличению дисперсии (показателя преломления) и усиления среды, описать физические механизмы этих эффектов, сравнить соответствующие оптические свойства гетерогенных сред со свойствами резонансных атомарных сред, указать на преимущества оптических гетерогенных сред и привлечь к ним еще большее внимание экспериментаторов и инженеров. Особое внимание в обзоре уделено эффектам локального поля в гетерогенных средах, так как именно они обусловливают новые оптические свойства. Рассмотрение ограничивается, в основном, линейными оптическими свойствами гетерогенных сред. Обсуждаются трудности создания сред с высоким показателем преломления и гигантским усилением и пути их решения.

Реализация оптических сред с высоким и контролируемым показателем преломления важна для многих практических применений, как, например, для повышения разрешающей способности оптических систем. В качестве примера рассмотрим дифракционный предел разрешающей способности оптического микроскопа: $d = 1,22\lambda/A$ — диаметр изображения бесконечно малой светящейся точки (диск Эри), где сосредоточено 84 % всей световой энергии точки. Здесь λ — длина волны оптического излучения, $A = n \sin u$, n — показатель преломления среды между объективом и объектом, u — апертурный угол [30]. Таким образом, помещая прозрачную среду с $n \gg 1$ между объективом и объектом (т. н. иммерсионная система), можно существенно увеличить разрешающую способность оптического микроскопа. В настоящее время максимально достижимое A в иммерсионной системе со специальным маслом не превышает 1,6, в то время как для «сухих» объективов $A \approx 0,95$. Как будет показано, в гетерогенных оптических средах возможен показатель

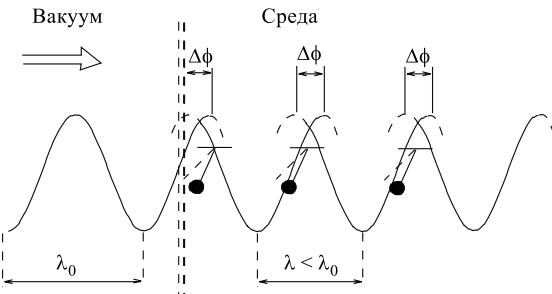


Рис. 1. Физический механизм временной дисперсии, который приводит к снижению фазовой скорости распространения и уменьшению длины волны электромагнитного излучения в среде

$n \sim 3-4$, а при наличии усиления — до 10. При использовании таких сред в иммерсионных системах разрешающая способность возрастает во много раз. Иммерсионные системы могут использоваться и для повышения плотности записи информации на оптических дисках.

Физический механизм увеличения показателя преломления связан с задержкой, которая происходит при распространении в среде из-за поглощения и переизлучения атомами, как показано на рис. 1. Для возбуждения атома и переизлучения им электромагнитного поля требуется конечное время, что приводит к сдвигу фаз $\Delta\phi$ между поглощенным и переизлученным полем. Этот сдвиг фаз приводит к уменьшению длины волны излучения (рис. 1). Сдвиг фаз $\Delta\phi$ тем больше, чем больше добротность атома, рассматриваемого как осциллятор, резонансно возбуждаемый полем. Отметим, что добротность равна числу осцилляций электрона между верхним и нижним уровнями атома, до их затухания в e раз. Аналогичным образом возникает уменьшение длины волны излучения, если вместо атома рассматривать наночастицу, взаимодействующую с полем. Так как наночастица может содержать очень большое число атомов, ее добротность (и, следовательно, поляризуемость) может оказаться гораздо выше, чем добротность (поляризуемость) резонансного атома. Понятие добротности отдельной наночастицы-осциллятора широко используется при анализе особых оптических свойств сред с фрактальной структурой (см. соответствующие ссылки в п. 3.4.1). Следует учитывать, что резонансы, возникающие в системах наночастиц, гораздо шире, чем у отдельных атомов, из-за случайных взаимодействий атомов в наночастице. Из-за этого поляризуемость наночастицы оказывается меньше, чем просто сумма резонансных поляризуемостей составляющих ее атомов, но все равно она может значительно превышать поляризуемость отдельного атома, что показано ниже на

различных примерах. Отметим общие условия для того, чтобы добротность осциллятора (атома, наночастицы), возбуждаемого внешней силой (резонансным полем), оказалась высокой: 1) резонанс с внешней силой; 2) минимум потерь энергии осциллятора; 3) когерентное взаимодействие между осциллятором и возбуждающей силой, т. е. минимум случайных сбоев фазы осциллятора. Условия (1) и (2) выполнить несложно, последнее выполняется за счет накачки среды от внешнего источника энергии. Труднее реализовать достаточно высокую степень когерентности — условие (3), так как сбои фазы взаимодействий в резонансных средах возникают очень легко, особенно при больших концентрациях частиц. Сохранению когерентности может способствовать явление «суперкогерентности» — самофазировки колебаний резонансных диполей под действием локального поля [24].

Появление гигантского усиления в активной гетерогенной среде тесно связано с возникновением высокого резонансного показателя преломления.

В первом разделе обзора приводятся некоторые основные величины и понятия, используемые для описания оптических сред, обозначаются области оптических явлений, рассматриваемых в настоящем обзоре, и те, которых мы не касаемся. Там же поясняются различия микроскопических и макроскопических характеристик электромагнитного поля и среды.

На принципиальную возможность получения сверхвысокого показателя преломления в резонансном атомарном газе было впервые указано в [14]. В разд. 2 обсуждается EIT-эффект в резонансной среде Л-атомов [14–17], который тесно связан с явлением высокой дисперсии без поглощения, лазером без инверсии [20] и наблюдением сверхузких резонансов в газе, уширенном по Доплеру [12, 13]. Следует отметить сильную дисперсию групповой скорости распространения импульсов в нелинейной среде и уменьшение групповой скорости [25, 31]. Исследования этих эффектов показали, что сильная дисперсия групповой скорости сравнительно легко наблюдается в резонансном газе Л-атомов [31].

В разд. 3 рассматривается явление локального поля [8–11] и современное состояние исследований различных эффектов, связанных с локальным полем, например, безрезонаторной оптической бистабильности [32–34]. Поправка локального поля играет принципиальную роль при описании гетерогенных сред, поэтому ей удалено особое внимание. Принимая во внимание поправку локального поля в некоторой среде, мы тем самым рассматриваем ее как неоднородную. «Элементарная» неоднородность среды вызвана тем, что она состоит из отдельных атомов, возможна и более крупномасштабная неоднородность, если среда состоит из наночастиц.

Учет поправки локального поля необходим, в принципе, в любой электродинамической системе и может приводить к выявлению новых эффектов. Например, локальное поле может существенно увеличивать дифракцию в *L*-системах, рассмотренных в разд. 2 [35]. Важная роль локального поля

в настоящее время общепризнана, но все еще существует много вопросов в его теоретическом описании в резонансных средах. Последовательное описание локального поля должно включать учет самоуширения резонансных переходов, которое имеет одинаковую природу и один порядок величины с поправкой локального поля [36, 37]. Обсуждается простой способ оценки самоуширения, как проистекающего из флуктуаций локального поля, указывается на сходство самоуширения и рэлеевского рассеяния.

Существенна роль локального поля при возникновении новых оптических эффектов, но вместе с тем его сложный физический механизм и трудности создания надежной теоретической модели, которая позволила бы найти механизмы контроля, стимулировали поиск систем, в которых эффект, подобный локальному полю, создается искусственно и поддается контролю. Пример такой системы обсуждается в разд. 4 [38].

Сильное увеличение дисперсии в среде за счет локального поля (катастрофа Клаузиуса–Моссотти [9]) — пример взаимной фазировки колебаний диполей в среде за счет взаимообмена фотонами электромагнитного поля. Известны другие примеры существенного усиления взаимодействия частицы-диполя с электромагнитным излучением в присутствии другой частицы. Например, в системе диполь–металлическая сфера происходит резкое увеличение скорости спонтанного излучения диполя, рост нелинейных диэлектрических восприимчивостей [39] (см. также литературу, цитируемую в разд. 3). Совокупность большого числа пар диполь–металлическая сфера, помещенных в некоторую матрицу, — пример искусственной гетерогенной оптической среды. Важная особенность гетерогенных сред — новые оптические свойства, которыми не обладает по отдельности ни одна из их компонент. Возможно создание гетерогенной оптической среды с заданными свойствами в зависимости от вида и соотношения концентраций ее компонент. Пример новых свойств гетерогенной оптической среды — металлических наношаров в прозрачной или активной (усиливающей) матрице — рассматривается в разд. 5 [26, 27]. Существует несомненный интерес у экспериментаторов и инженеров к гетерогенным оптическим средам, состоящим из наночастиц, для создания как новых лазерных сред (например, порошкообразная активная полупроводниковая среда [28]), так и новых пассивных оптических материалов [29].

Отметим некоторые сложные гетерогенные среды, которые не рассматриваются в настоящем обзоре, как, например, среды с одновременно отрицательными ϵ и μ [40, 41] и фотонные кристаллы (ФК) [42, 43]. Среды, в которых одновременно $\epsilon < 0$ и $\mu < 0$, интересны тем, что при определенных условиях отсутствует отраженное излучение от их границ, с их помощью можно создать линзы, фокусирующие излучение в область с размерами много меньше длины волны и обладающие рядом других свойств, интересных с точки зрения практических применений. Вместе с тем практическая реализация таких сред

в оптическом диапазоне встречает трудности, так как неизвестны оптические материалы, в которых μ существенно отлично от единицы.

В ФК диэлектрическая проницаемость периодически изменяется в одном, двух или трех направлениях, поэтому его можно отнести к «упорядоченным» гетерогенным средам. Главной особенностью ФК является существование «запрещенных» для распространения оптического излучения зон в пространстве и в частотном спектре. С помощью ФК можно создавать оптические микрорезонаторы: атом, помещенный в ФК с запрещенными для излучения зонами в направлениях x и y , но с разрешенной зоной в направлении z , будет излучать только в этом направлении.

Необходимо отметить исследования оптических солитонов в связи с важностью их практического применения в системах оптической передачи информации [44]. Хотя в настоящее время нет исследований по распространению солитонов в гетерогенных оптических средах, представляется, что такие среды, вследствие возможной в них сверхвысокой оптической нелинейности и дисперсии, позволяют решить многие проблемы, связанные с практической реализацией солитонного режима распространения импульсов в системах оптической связи.

1. НЕКОТОРЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОПТИЧЕСКИХ СРЕД

Основной макроскопической характеристикой оптических свойств среды является ее диэлектрическая проницаемость (диэлектрическая функция) ϵ , которая определяется как коэффициент пропорциональности между вектором электрической индукции D и напряженностью электромагнитного поля E [45]:

$$D = \epsilon E.$$

Более общей характеристикой является тензор диэлектрической проницаемости $D_i = \epsilon_{ij}E_j$ [45], который вводится для анизотропных диэлектрических сред. В настоящем обзоре мы ограничимся анализом изотропных сред, поэтому будем пользоваться скалярной диэлектрической функцией ϵ , которая используется в линейных задачах; когда она не зависит от E , можно ввести нелинейную диэлектрическую функцию: $\epsilon = \epsilon(E)$. Разложение $\epsilon(E)$ в ряд по степеням E позволяет получить нелинейные восприимчивости, описывающие нелинейно-оптические эффекты. В обзоре основное внимание уделяется линейным оптическим свойствам гетерогенных сред, но ссылки на основные работы по исследованию нелинейных восприимчивостей гетерогенных сред и краткое описание их результатов приводятся в разд. 3.

Аналогично ϵ вводится магнитная проницаемость μ , которая в изотропной среде связывает вектор магнитной индукции B и напряженность магнит-

ногого поля \mathbf{H} : $\mathbf{B} = \mu\mathbf{H}$. В настоящем обзоре не рассматриваются магнитооптические явления и принимается $\mu = 1$.

Вектор электрической индукции \mathbf{D} не является физически наблюдаемой величиной, хотя он удобен при вычислениях. Физической величиной, связанной с \mathbf{D} , является макроскопическая поляризация среды \mathbf{P} , при этом $\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi\mathbf{P}$. Здесь и далее используется система единиц СГСЭ. Поляризация может быть записана как $\mathbf{P} = \chi\mathbf{E}$, где коэффициент χ называется диэлектрической восприимчивостью вещества и $\epsilon = 1 + 4\pi\chi$. Поляризация \mathbf{P} есть средний дипольный момент единицы объема вещества. В обзоре мы ограничиваемся дипольным приближением при описании взаимодействия вещества и электромагнитного излучения, квадрупольными и высшими моментами всегда пренебрегаем, считая размеры элементарной частицы, взаимодействующей с полем, много меньше длины волны излучения.

Для вычисления поляризации \mathbf{P} среды следует выбрать ее объем V достаточно большим, чтобы он содержал $N \gg 1$ частиц среды, так что флуктуации плотности частиц оказались бы много меньше среднего значения плотности. В то же время V должен быть достаточно малым, чтобы можно было пренебречь изменениями амплитуды и фазы электромагнитного поля в V . Из анализа микроскопической задачи определяется дипольный момент i -й частицы μ_i . В линейной изотропной среде $\mu_i = \alpha_i\mathbf{E}$, где α_i — поляризуемость частицы. Таким образом, задача анализа среды сводится к вычислению α_i . Величина \mathbf{P} есть средний дипольный момент всех N частиц из V , деленный на V :

$$\mathbf{P} = \frac{1}{V} \overline{\sum_{i=1}^N \mu_i}. \quad (1)$$

Здесь горизонтальная черта означает усреднение, которое проводится по квантовым и классическим флуктуациям элементарных дипольных моментов. В качестве примера квантовых флуктуаций можно привести флуктуации населенностей уровней и дипольных моментов перехода между состояниями газа двух- или многоуровневых атомов, резонансно взаимодействующих с электромагнитным полем. Примером классических флуктуаций являются флуктуации плотности (числа частиц) в объеме V , по которому проводится усреднение (за исключением весьма специального, но очень интересного случая бозе-конденсата холодных атомов, когда флуктуации плотности становятся квантовыми и, в частности, полностью исчезают для атомов из бозе-конденсата). Другой пример классических флуктуаций есть флуктуации скоростей частиц газа, усреднение по которым, для случая резонансного взаимодействия с полем, приводит к доплеровскому уширению резонанса. Правильный учет флуктуаций чрезвычайно важен, так как они могут существенно изменить диэлектрическую функцию среды, особенно в случаях, когда исследуются резонансные эффекты. Например, флуктуации плотности приводят к рэлеевскому

рассеянию в нерезонансных средах и к самоуширению в резонансных средах, которые будут обсуждаться ниже.

Согласно формуле (1) диэлектрическая восприимчивость и поляризумость связаны соотношением

$$\chi = \frac{1}{V} \overline{\sum_{i=1}^N \alpha_i} \equiv N_0 \alpha, \quad (2)$$

где α — средняя поляризумость; N_0 — плотность частиц.

В общем случае поляризация \mathbf{P} определяется не только значением электромагнитного поля \mathbf{E} в данный момент времени t , но и его величиной во все предыдущие моменты $\tau \leq t$. Этот эффект называется временной дисперсией диэлектрической проницаемости. Он объясняется тем, что колебания частиц среды в переменном электромагнитном поле отстают по фазе от колебаний электромагнитного поля (рис. 1). Соответственно общий вид линейной зависимости между $\mathbf{D}(t)$ и $\mathbf{E}(t)$ записывается в виде линейного интегрального оператора [45]:

$$\mathbf{D}(t) = \mathbf{E}(t) + \int_0^\infty f(\tau) E(t - \tau) d\tau$$

или $\mathbf{D} = \hat{\epsilon} \mathbf{E}(t)$, где $\hat{\epsilon}$ — линейный интегральный оператор, действие которого определяется приведенным выше соотношением. Мы будем обсуждать, как правило, воздействие монохроматических электромагнитных полей на вещество. В этом случае

$$\mathbf{D} = \epsilon(\omega) \mathbf{E},$$

где ω — частота поля, $\epsilon(\omega)$ — диэлектрическая проницаемость среды при ее взаимодействии с монохроматическим электромагнитным полем. Соотношение

$$\epsilon(\omega) = 1 + \int_0^\infty f(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau$$

устанавливает связь между ядром $f(\tau)$ интегрального оператора $\hat{\epsilon}$ и $\epsilon(\omega)$. На практике удобнее определять не $f(\tau)$, а $\epsilon(\omega)$ из микроскопической задачи взаимодействия частицы с монохроматическим электромагнитным полем. Процедура вычисления $\epsilon(\omega)$ включает определение поляризумости $\alpha(\omega)$ из микроскопической задачи, усреднение по частицам из элементарного объема, определение поляризации $P(\omega)$ и, соответственно, диэлектрической восприимчивости $\chi(\omega)$ и затем определение $\epsilon(\omega)$ из соотношения $\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi\chi(\omega)$.

Диэлектрическая проницаемость среды в точке, определяемой радиусом-вектором \mathbf{r} , может зависеть не только от величины электромагнитного поля в этой точке, но и от поля в других точках среды. Это явление называется пространственной дисперсией [45]. При этом для монохроматического поля с частотой ω зависимость \mathbf{D} от \mathbf{E} определяется соотношением

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) + 4\pi \int \chi(\omega, \mathbf{r}') \mathbf{E}(\mathbf{r}') dV',$$

где интегрирование ведется по всему объему среды. Одним из примеров пространственной дисперсии является эффект Доплера. Другим проявлением пространственной дисперсии является эффект локального поля, подробно обсуждаемый в разд. 3.

Диэлектрическая проницаемость среды $\epsilon(\omega)$ является в общем случае комплексной величиной:

$$\epsilon(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega).$$

Действительная $\epsilon'(\omega)$ и мнимая $\epsilon''(\omega)$ части $\epsilon(\omega)$ не являются независимыми функциями, но подчиняются соотношениям Крамерса–Кронига [45], которые отражают принцип причинности: поляризация среды в данный момент времени может определяться значениями электромагнитного поля только в этот или в предыдущие моменты времени. Заметим, что при выводе диэлектрической проницаемости из любой микроскопической модели (в том числе используемых в настоящей работе) соотношения Крамерса–Кронига удовлетворяются автоматически и не требуют проверки. Они необходимы тогда, когда по известной действительной (мнимой) части $\epsilon(\omega)$ для всего частотного диапазона требуется восстановить ее мнимую (действительную) часть.

Уравнения Максвелла для среды без источников $\text{rot } \mathbf{E} = -(1/c)\partial\mathbf{B}/\partial t$, $\text{rot } \mathbf{B} = (1/c)\partial\mathbf{D}/\partial t$, $\text{div } \mathbf{D} = 0$ и соотношение $\mathbf{D} = \epsilon\mathbf{E}$ приводят к уравнению для E :

$$\Delta\mathbf{E} - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon} \text{grad} (\mathbf{E} \text{grad} \epsilon), \quad (3)$$

где c — скорость света в вакууме. Допустим, что ϵ не зависит от пространственных координат, тогда правая часть этого уравнения обращается в нуль и оно переходит в известное волновое уравнение для электромагнитного поля. Случай $\epsilon(\mathbf{r})$ будет рассмотрен в п. 3.2 и разд. 4 в связи с анализом самоуширения и рассеяния. Подставляя в (3) модуля поля в виде плоской электромагнитной волны $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp[i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)]$, приходим к дисперсионному уравнению для $k \equiv |\mathbf{k}|$, $k(\omega) = k_0[\epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)]^{1/2}$, $k_0 \equiv \omega/c$. Отсюда следует, что показатель преломления среды есть $n(\omega) = \text{Re}[\epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)]^{1/2}$ и ее коэффициент поглощения $\kappa(\omega) = \text{Im}[\epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)]^{1/2}$. Часто коэффициентом

поглощения называют размерную величину $k_0\kappa(\omega)$, а $\kappa(\omega)$ — коэффициентом экстинкции (для поглощения). Условие $\kappa(\omega) < 0$ означает усиление электромагнитного поля в среде. Для часто встречающегося случая $\epsilon''(\omega) \ll \epsilon'(\omega)$ получаем $n^2(\omega) \approx \epsilon'(\omega)$ и $\kappa(\omega) \approx \epsilon''(\omega)/2$.

2. ВЫСОКИЙ ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ В УСЛОВИЯХ ПРОЗРАЧНОСТИ, НАВЕДЕННОЙ ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫМ ПОЛЕМ

В основе многих необычных когерентных эффектов находятся так называемые «trapped states» — непоглощающие резонансы, или «темные состояния» [18, 46]. Они приводят, в частности, к наведенной электромагнитным полем прозрачности (EIT) [47] и так называемому лазеру без инверсии [15, 20]. В работе [14] было предложено создание прозрачной среды с высоким показателем преломления на основе EIT, идея [14] развивалась в [15, 16] и была проверена в эксперименте [17]. Обсудим возможности создания резонансной среды по методу [14, 16], при этом удобно начать с анализа дисперсии и поглощения в среде двухуровневых атомов. Хотя случай двухуровневых атомов хорошо известен (см., например, [6]), удобно привести краткий вывод его результатов, при этом мы определим ряд параметров и соотношений, облегчающих исследование более сложного случая [14, 16], приведем некоторые соображения, касающиеся максимально возможной величины показателя преломления в резонансных средах, и продемонстрируем технику расчета резонансной поляризуемости атома.

2.1. Поляризуемость двухуровневой системы. Допустим, монохроматическое электромагнитное поле $E(t) = E_0 \cos(\omega t + \phi)$ резонансно переходу между состояниями $|a\rangle$ и $|b\rangle$ среды двухуровневых атомов с частотой перехода ω_{ab} (рис. 2). Гамильтониан системы имеет вид

$$H = \hat{H}_0 + \hat{V} + \hat{\Gamma},$$

где \hat{H}_0 — гамильтониан двухуровневого атома без учета его взаимодействия с электромагнитным полем; H_0 имеет только диагональные матричные элементы в базисах $|a\rangle$ и $|b\rangle$; E_a и E_b — энергии соответствующих состояний; $\hat{V} = -\hat{\mu}E(t)$; оператор дипольного момента $\hat{\mu}$ имеет матричные элементы $\mu_{ab} = \mu \exp(i\phi_{ab})$, $\mu_{ba} = \mu_{ab}^*$; $\hat{\Gamma}$ описывает релаксацию двухуровневого атома из-за его взаимодействия с окружением. В приближении медленно изменяющихся амплитуд уравнения для матричных элементов матрицы

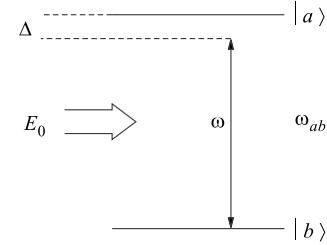


Рис. 2. Двухуровневый атом в резонансном поле

плотности $i\hbar\dot{\varrho} = [H\varrho]$ имеют вид

$$\dot{\sigma}_{ab} = (i\Delta - \gamma)\sigma_{ab} + i\frac{E_0\mu}{2\hbar}(\varrho_{bb} - \varrho_{aa}),$$

$$\dot{\varrho}_{aa} = i\frac{E_0\mu}{2\hbar}(\sigma_{ba} - \sigma_{ab}) - \gamma_{sp}\varrho_{aa},$$

где $\sigma_{ab} = \varrho_{ab} \exp [i(\omega t + \phi - \phi_{ab})]$; $\Delta = \omega - \omega_{ab}$; γ_{sp} — время спонтанной релаксации населенности состояния a в состояние b :

$$\gamma = 0,5\gamma_{sp} + \Gamma, \quad (4)$$

Γ — время затухания поляризации из-за процессов, не связанных со спонтанной релаксацией. Нетрудно найти стационарное значение σ_{ab} , затем стационарную амплитуду поляризации $P = 2\mu N_0 \sigma_{ab}$, после чего из соотношений $P = \chi E_0$ и $\chi = \alpha N_0$ можно определить диэлектрическую восприимчивость χ и поляризуемость α . Результат для α можно представить в общем виде для систем резонансных (не обязательно двухуровневых) атомов:

$$\alpha = \alpha_0 \frac{\gamma_{sp}}{\gamma} y(\delta). \quad (5)$$

Здесь $\alpha_0 = \frac{3}{4} \left(\frac{\lambda}{2\pi} \right)^3$ — характерная поляризуемость резонансного атома; λ — длина волны падающего излучения в вакууме; безразмерная функция y от безразмерной отстройки от резонанса $\delta = \Delta/\gamma$ зависит от структуры резонансных уровней поглощающего атома, различных параметров. При достаточно больших интенсивностях падающего излучения y зависит и от интенсивности, т. е. взаимодействие атома и поля становится нелинейным.

Для получения среды с большим показателем преломления принципиально необходимо $\chi = \alpha N_0 \gg 1$. Сильное поглощение, которое возникает в такой среде, можно скомпенсировать с помощью внешнего источника энергии, как, например, рассматривается ниже. Восприимчивость χ можно увеличивать двумя способами: увеличивая N_0 либо α . Первый способ, как будет показано, не позволяет непосредственно достичь больших значений $\chi \gg 1$ в среде двух- или трехуровневых атомов, так как оказывается, что из-за самоуширения $\gamma \sim N_0$, если $N_0 > \alpha_0^{-1}$, а, как видно из соотношения (5), $\alpha \sim 1/\gamma$. Второй способ получения больших χ — определить условия, при которых $y(\delta) \gg 1$. Как будет показано, последнее может иметь место, если учесть поправку локального поля.

Соотношение (5) получено в результате усреднения по квантовым флуктуациям. В общем случае величины в его правой части испытывают также классические флуктуации как, например, флуктуации δ из-за неоднородного

уширения и флуктуации плотности, так что (5) следует усреднить и по классическим флуктуациям. Процедура усреднения по флуктуациям плотности рассмотрена в п. 3.2, неоднородное уширение учитывается путем усреднения (5) с соответствующей функцией распределения, как, например, максвелловская функция распределения по скоростям частиц в газе*. Классические флуктуации приводят к добавочному уширению резонансного перехода. Для целей настоящего раздела достаточно аппроксимировать это уширение вкладом Γ в полную ширину (4).

Для газа двухуровневых систем можно получить

$$y(\delta) = \frac{i - \delta}{1 + \delta^2 + S}, \quad (6)$$

где $S = I(\gamma_{\text{sp}}/\gamma)$ — параметр насыщения; $I = (\alpha_0 E_0 / \mu)^2$ — безразмерная интенсивность падающего излучения. Максимальная дисперсия соответствует $\max[\text{Re}(y)] = 1/2$ при $\delta = -1$ и слабому полю $S \ll 1$. При этом поглощение весьма велико: $\text{Im}(y) = 1/2$ — порядка максимального значения $\max[\text{Im}(y)] = 1$.

Таким образом, для газа резонансных двухуровневых атомов действительная и мнимая части поляризуемости α оказываются порядка характерного значения α_0 или меньше. Эта оценка остается справедливой и для других, более сложных систем многоуровневых резонансных атомов, если в них можно пре-небречь коллективными эффектами, такими как поправка локального поля. Вместе с тем вопрос о том, является ли величина $\sim \alpha_0$ предельным максимальным значением поляризуемости отдельного резонансного атома независимо от числа и структуры резонансных уровней, остается открытым и может быть темой отдельного исследования, интересного с точки зрения оценки максимально возможной дисперсии и поглощения в резонансных средах. По-видимому, $\max \alpha < \alpha_0$, по крайней мере, если число уровней, взаимодействующих с полем, не слишком велико. Заметим, что максимальное значение линейной поляризуемости достигается в линейном режиме, когда параметр насыщения $S \ll 1$.

Одной из причин поиска высокого показателя преломления в гетерогенных средах является то, что предельное значение поляризуемости для одиночного резонансного атома скорее всего не превышает α_0 . В этом случае естественным способом увеличения поляризуемости отдельной частицы-диполя, взаимодействующей с электромагнитным полем, является увеличение числа атомов в частице [24]. Действительно, суммарный дипольный

*Заметим, что максвелловская функция распределения хорошо аппроксимируется суммой двух функций распределения Лоренца, что дает возможность получить результаты в аналитической форме [13].

момент $N \gg 1$ частиц, сосредоточенных в области пространства размером много меньше длины волны излучения λ , может быть, в принципе, в N раз больше дипольного момента одной частицы. Поскольку объем отдельного атома $\sim 10^{-24}$ см³, в частице объемом $\sim 10^{-16}$ см³, линейные размеры которой много меньше $\lambda/(2\pi) \sim 10^{-5}$ см, может оказаться до 10^8 атомов! Действительно, экспериментально наблюдается аномально высокое поглощение в кластерных средах, каждая частица-диполь которых состоит из многих атомов [23, 48]. Из-за большой плотности атомов в наночастице-кластере механизм поглощения наночастиц отличен от механизма поглощения отдельных атомов с конечным числом уровней. В средах с наночастицами появляются плазмонные резонансы поглощения [48], поглощении может быть связано с отрывом полем отдельных атомов от кластера [23], возможны и другие механизмы поглощения. При этом влияние локального поля в среде наночастиц оказывается принципиальным.

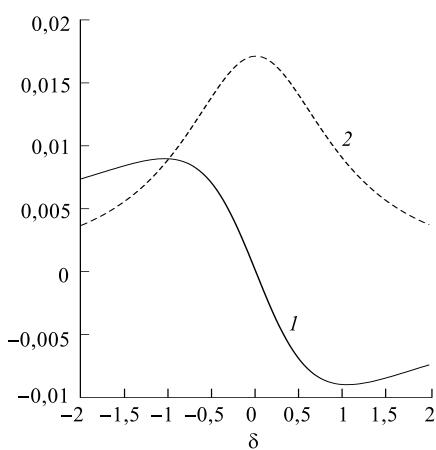


Рис. 3. Показатель преломления $n - 1$ (кривая 1) и коэффициент поглощения (кривая 2) газа резонансных двухуровневых атомов как функции безразмерной отстройки от резонанса с приложенным полем. Максимальный показатель преломления находится вблизи максимального поглощения

ходу ac . Для простоты полагаем частоту поля E_d совпадающей с частотой перехода ac . Скорость релаксации поляризации для переходов ab и ac предполагается одинаковой и равной γ , населенность состояния a релаксирует в состояния b и c с одинаковыми скоростями γ_{sp} , переход cb является дипольно

Зависимости показателя преломления $n(\delta)$ и коэффициента поглощения $\kappa(\delta)$ для газа двухуровневых атомов изображены на рис. 3 для $\alpha_0 = 3 \cdot 10^{-15}$ см³, $N_0 = 10^{12}$ см⁻³, $\Gamma/\gamma_{sp} = 0,5$ и $I = 1$. Как видно из рис. 3, максимальная дисперсия, когда $n - 1 \sim 10^{-2}$, сопровождается сильным поглощением $\kappa \sim 10^{-2}$, что означает полное поглощение падающего электромагнитного излучения с $\lambda \sim 10^{-4}$ см на длине $\sim 0,01\lambda/(2\pi) \sim 10$ мкм.

2.2. Дисперсия без поглощения в трехуровневой Л-системе. Дисперсия без поглощения возможна в трехуровневой системе, изображенной на рис. 4. Здесь слабое (пробное) электромагнитное поле с амплитудой E_p , частотой ω почти резонансно переходит между состояниями $|a\rangle$ и $|b\rangle$ с частотой ω_{ab} , отстройкой $\Delta = \omega - \omega_{ab} \ll \omega_{ab}$ и сильное поле с амплитудой E_d («drive») резонансно переходит ac .

запрещенным, скорость релаксации населенности состояния c в b $\gamma'_{sp} \ll \gamma_{sp}$, имеется некогерентная накачка с уровня b на уровень c со скоростью $r\gamma'_{sp}$. Для простоты примем, что $\mu_{ab} = \mu \exp(i\phi_{ab})$ и $\mu_{ac} = \mu \exp(i\phi_{ac})$. Скорость релаксации поляризации перехода bc есть $\gamma' = 0,5\gamma'_{sp}(1+r)$. Мы пренебрегаем насыщением перехода ab , но принимаем во внимание насыщение перехода ac , так как E_d велико. В этом случае стационарные диагональные элементы матрицы плотности ϱ_{ii} , $i = a, b, c$, и ϱ_{ab} можно рассчитать, полагая, что пробное поле вообще отсутствует, затем подставить эти матричные элементы в общие уравнения для матрицы плотности и получить из них стационарные значения для ϱ_{ac} и ϱ_{bc} . Технически расчет происходит совершенно аналогично случаю двухуровневого атома, рассмотренного в п. 2.1, в результате находим, что поляризуемость для пробного поля определяется соотношением (5), в котором

$$y(\delta) = \frac{(\gamma'/\gamma - i\delta)(\varrho_{bb} - \varrho_{aa}) - i(S_d/8)(\varrho_{aa} - \varrho_{cc})}{(2 - i\delta)(\gamma'/\gamma - i\delta) + S_d/4}, \quad (7)$$

где $\delta = \Delta/\gamma$; $S_d = I_d\gamma_{sp}/\gamma$ — параметр насыщения перехода ac сильным полем; $I_d = (\alpha_0 E_d/\mu)^2$;

$$\begin{aligned} \varrho_{aa} &= \frac{(r/8)S_d}{1 + r + (S_d/8)(1 + 2r + \gamma_{sp}/\gamma'_{sp})}, \\ \varrho_{cc} &= \frac{r - (r + \gamma_{sp}/\gamma'_{sp})\varrho_{aa}}{1 + r}, \\ \varrho_{bb} &= 1 - \varrho_{cc} - \varrho_{aa}. \end{aligned}$$

Зависимость показателя преломления n и коэффициента поглощения κ для пробного поля от δ показана на рис. 5 для $I_d = 1$, $\gamma'_{sp} = 0,05\gamma_{sp}$, $r = 0,3$ и тех же величин остальных параметров, что и для случая рис. 3. Как видно из рис. 5, в окрестности $\delta = 0$ поглощение сменяется усилением (из-за присутствия накачки на переходе bc и малой ширины этого перехода), коэффициент поглощения проходит через 0, но дисперсия остается достаточно высокой, лишь в несколько раз меньшей, чем максимальная дисперсия газа двухуровневых систем в окрестности резонанса.

Таким образом, дисперсия газа Л-атомов вблизи точки прозрачности оказывается гораздо большей, чем дисперсия газа двухуровневых систем при том же (близком к 0) коэффициенте поглощения. Это позволило авторам [14–16]

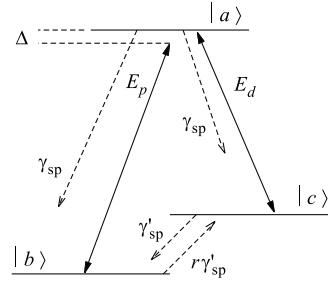


Рис. 4. Трехуровневый Л-атом

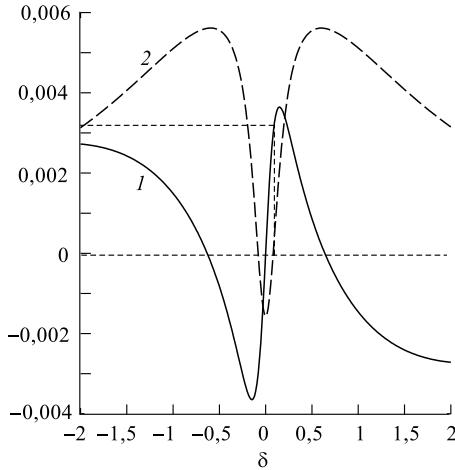


Рис. 5. Показатель преломления $n - 1$ (кривая 1) и коэффициент поглощения (кривая 2) для перехода ab газа резонансных Л-атомов. Вблизи нуля поглощения показатель преломления оказывается порядка максимально возможного в газе двухуровневых атомов (ср. с рис. 3)

действие между атомными переходами и при дальнейшем увеличении N_0 рост дисперсии без поглощения в Л-атомах прекращается.

В работе [35] отмечалось, что поправка локального поля может приводить к тому, что большой по абсолютной величине показатель преломления $n \gg 1$ в газе Л-атомов может возникать при сравнительно невысоких плотностях газа $N_0 \sim 10^{13} - 10^{14} \text{ см}^{-3}$, но анализ [35] был выполнен без учета самоуширения. Выясним влияние поправки локального поля и самоуширения на дисперсию в газе Л-атомов.

2.3. Поправка локального поля и самоуширение в газе Л-атомов. При вычислении диэлектрической проницаемости поправка локального поля может учитываться по формуле Клаузиуса–Москотти (15), вывод которой приведен в п. 3.1. Разрешая (15) относительно диэлектрической проницаемости ϵ , находим

$$\epsilon = 1 + \frac{4\pi\alpha N_0}{1 - (4\pi/3)\alpha N_0}. \quad (8)$$

Как следует из этой формулы, в случае, если поглощение (равно как и усиление) в среде отсутствует, и поляризуемость α и ϵ являются, следовательно,

предположить, что в газе Л-атомов достижимы значения показателя преломления $n \sim 10$ и более. Увеличение дисперсии в газе Л-атомов наблюдалось в эксперименте [17], но абсолютные значения $n - 1$ оказались незначительными: $n - 1 \sim 10^{-4}$, так как эксперимент проводился при низких плотностях газа $N_0 \sim 10^{12} \text{ см}^{-3}$ (которые и были выбраны при построении рис. 5). Таким образом, экспериментально определенная величина $n - 1$ оказывается даже меньше, чем следует из оценок по рис. 5, что связано с вкладом от диплеровского уширения, который не учитывался в формуле (7). Эксперимент и оценки, приводимые ниже, показывают, что при плотностях $N_0 > 10^{12} \div 10^{13} \text{ см}^{-3}$ становится существенным самоуширение, разрушается когерентное взаимодействие между атомными переходами и при дальнейшем увеличении N_0 рост дисперсии без поглощения в Л-атомах прекращается.

действительными величинами, то $\epsilon \rightarrow \infty$, если концентрация атомов N_0 стремится к критической величине

$$N_0^{\text{cr}} = 3/(4\pi\alpha). \quad (9)$$

Таким образом, показатель преломления $n = \sqrt{\text{Re}\epsilon}$ стремится к бесконечности при $N_0 \rightarrow N_0^{\text{cr}}$. Эта особенность называется катастрофой Клаузиуса–Моссотти [9], она обсуждалась в [35] для случая газа Л-атомов. Следуя [35], для учета поправки локального поля в газе трехуровневых систем, изображенных на рис. 4, нужно поляризуемость α , определяемую формулой (5), в которой $y(\delta)$ дается соотношением (7), подставить в выражение (8) для ϵ . На рис. 6 представлены зависимости n и κ для пробного поля от δ для $N_0 = 0,95N_0^{\text{cr}}$, где $N_0^{\text{cr}} = 4,996 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ определено из (9), в котором α соответствует точке прозрачности $\delta = 0,0813$, и величин остальных параметров, таких же, что и на рис. 3, 5. Как следует из рис. 6, при приближении N_0 к N_0^{cr} область резонанса сужается, а дисперсия и поглощение (усиление) существенно возрастают, по сравнению с рис. 5, где не учитывалась поправка локального поля. Качественным образом изменяется и форма кривых поглощения и дисперсии вблизи резонанса.

Таким образом, предсказывается, что поправка локального поля приводит к резкому росту показателя преломления для пробного поля в газе Л-атомов даже при сравнительно низких концентрациях $N_0 \sim 10^{14} \text{ см}^{-3}$ — к такому выводу пришли авторы [35]. Этот результат указывает на важную роль локального поля при возникновении высокой дисперсии в среде. Вместе с тем в обычных условиях локальное поле не приводит к столь значительному росту показателя преломления в газе Л-атомов, что связано с возникновением самоуширения при концентрациях атомов $\geq 10^{13}—10^{14} \text{ см}^{-3}$. Самоуширение более подробно обсуждается ниже, в п. 3.2, его физический механизм — диполь–дипольное взаимодействие между резонансными атомами. Из-за флуктуаций расстояний между частицами энергия диполь–дипольного взаимодействия некоторого атома с остальными быстро изменяется, что приводит к уширению резонансного перехода, тем большему, чем большее концентрация

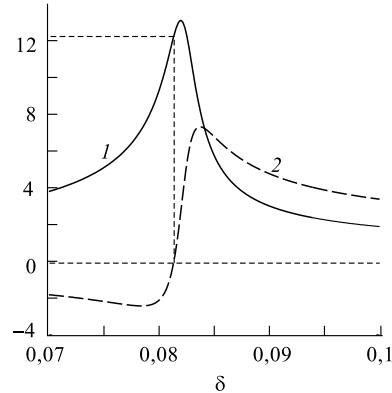


Рис. 6. Показатель преломления n (кривая 1) и коэффициент поглощения (кривая 2) для перехода *ab* газа резонансных Л-атомов с учетом поправки локального поля. Область резонанса сужается, а показатель преломления возрастает по сравнению с рис. 5, построенным без учета поправки локального поля

атомов. Оценку самоуширения в газе резонансных атомов можно выполнить следующим образом. Энергия диполь-дипольного взаимодействия между атомами, расположенными на расстоянии r , есть $V_{dd} \sim \mu^2/r^3$, где μ — матричный элемент дипольного момента атомного перехода. Полагая, что r — среднее расстояние между атомами и, следовательно, $r^3 \sim N_0^{-3}$, выражая μ^2 через $\gamma_{sp} = 4k^3\mu^2/(3\hbar)$ — спонтанное время жизни верхнего уровня резонансного перехода, получаем, что величина самоуширения $\Gamma_{self} \equiv D_{dd}/\hbar \sim \gamma_{sp}N_0/k^3$ и, таким образом,

$$\Gamma_{self} = D\gamma_{sp} \frac{N_0}{k^3}, \quad (10)$$

где D — безразмерный коэффициент пропорциональности. Как показано в [36], в обычных условиях фактор $D \approx 10$. Оценки [49] для минимально возможной величины D , когда движение атомов полностью отсутствует, атомы представляют собой бозе-конденсат и самоуширение определяется взаимодействием резонансных атомов по Ван-дер-Ваальсу, дают $D \approx 1$. Таким образом, $1 < D \leq 10$.

Подставим $\Gamma = \Gamma_{self}$ в выражение (4) для полной ширины линии резонансного перехода. Заметим, что такая оценка ширины линии является заниженной, так как она не учитывает доплеровского уширения и ряда других факторов, в том числе самоуширение переходов *ac* и *dc* трехуровневой системы, изображенной на рис. 4. Нетрудно получить, что при учете самоуширения на переходе *ab* (рис. 4) формула (9) для критической концентрации частиц, при приближении к которой показатель преломления обращается в бесконечность в точке прозрачности, приобретает вид

$$\frac{N_0^{cr}}{k^3} = \frac{1}{2[\pi y(\delta) - D]}. \quad (11)$$

Выражение в правой части формулы (11) должно быть положительным, в противном случае катастрофа Клаузиуса–Моссотти невозможна. Так как для газа двух- или трехуровневых атомов заведомо $y(\delta) < 1$ (см. (6) и (7)), то для выполнения $N_0^{cr} > 0$ требуется, как минимум, $D < \pi < 10$, т. е. особые условия, когда самоуширение подавлено. Учитывая, что для случаев, представленных на рис. 5, 6, в точке прозрачности $y(\delta = 0, 0813) \approx 0, 1$, получаем, что для достижения условий катастрофы Клаузиуса–Моссотти требуется $D < 0, 3$, что невозможно даже при самых оптимистических оценках самоуширения для атомов, находящихся в бозе-конденсате, и нулевых флуктуациях их плотности. На рис. 7, *a, b* показана зависимость показателя преломления и коэффициента поглощения для пробного поля в газе Λ -атомов при тех же условиях, что и для рис. 6, но при учете самоуширения при величине параметра $D = 1$ и $D = 10$ соответственно. Как видно из сравнения рис. 6 и 7, самоуширение для $D = 1$ сильно подавляет рост показателя преломления, вызванный

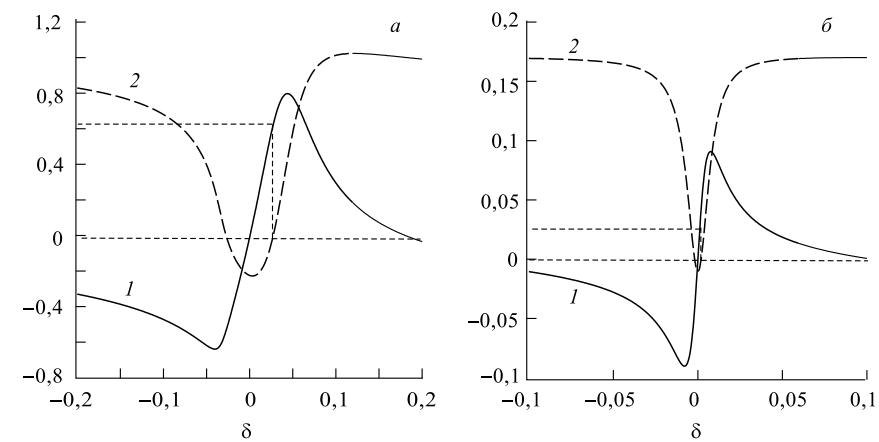


Рис. 7. Показатели преломления $n - 1$ (кривые 1 на (а) и (б)) и коэффициенты поглощения (кривые 2 на (а) и (б)) для перехода ab газа резонансных Λ -атомов при учете локального поля и самоуширения перехода ab , когда полная ширина этого перехода определяется по формулам (4), (10). Факторы $D = 1$ (а) и $D = 10$ (б), величины остальных параметров те же, что и для рис. 6

локальным полем, а для $D = 10$ почти полностью уничтожает влияние локального поля на показатель преломления. Очевидно, что при концентрациях N_0 больших, чем соответствующие на рис. 7, увеличения показателя преломления не происходит, так как $\alpha \sim 1/N_0$ при $DN_0/k^3 > 1$. Практически достижимые значения n оказываются даже меньше, чем следует из оценок по рис. 7, б, из-за доплеровского уширения и самоуширения переходов ac и bc .

Вместе с тем достижение условий, при которых реализуется катастрофа Клаузиус–Моссотти в резонансных оптических средах, не является принципиально неосуществимым. Как можно заметить, все величины в правой части выражения (11) для критической концентрации резонансных частиц — порядка единицы, так что относительно небольшое изменение свойств оптического материала, которое повлечет небольшое увеличение фактора $\pi y(\delta)$ и (или) уменьшение D , приведет к тому, что N^{cr} станет положительным. В принципе, фактор $\pi y(\delta)$ может быть увеличен, если в качестве элементарной частицы, резонансно взаимодействующей с полем, использовать не один, а несколько атомов, находящихся в объеме $V \ll [\lambda/(2\pi)]^3$, где λ — длина волны оптического диапазона. Так как $\lambda/(2\pi) \sim 10^{-5}$ см, а характерный размер атома 10^{-8} см, в наночастице размером $\sim 10^{-6} \ll \lambda/(2\pi) \sim 10^{-5}$ см может находиться до $N \sim 10^6$ атомов! Это, конечно, не означает, что поляризуемость такой наночастицы будет в N раз больше поляризуемости одного атома, так как атомы в наночастице взаимодействуют, что приводит к ушире-

нию резонанса и даже к изменению механизма взаимодействия наночастицы с полем. Вместе с тем очень сильное увеличение поляризуемости наночастицы, по сравнению с поляризуемостью резонансного атома, и не требуется. Даже увеличение поляризуемости в несколько раз может привести к катастрофе Клаузиуса–Моссотти и, соответственно, к резкому увеличению показателя преломления.

Особые оптические свойства гетерогенных сред, состоящих из прозрачной матрицы, и помещенных туда наночастиц, в частности, возможность получения в них высокого показателя преломления и гигантского усиления, будут рассматриваться в следующих разделах. Эти свойства обусловлены, в первую очередь, взаимодействием наночастиц через локальное поле, которое вызывает самофазировку колебаний диполей — суперкогерентность [24].

3. ЛОКАЛЬНОЕ ПОЛЕ В ГЕТЕРОГЕННЫХ СРЕДАХ

3.1. Поправка локального поля и формула Клаузиуса–Моссотти. Определяющую роль при возникновении особых оптических свойств гетерогенных сред может играть поправка локального поля, как это видно на примере, рассмотренном в предыдущем разделе. Поправка локального поля учитывает отличие электромагнитного поля, действующего в среде на микроскопических масштабах порядка расстояния между частицами $N_0^{-1/3}$, где N_0 — концентрация частиц, от «среднего» электромагнитного поля, усредненного по объему, содержащему большое число частиц. «Среднее», или «максвелловское», поле определяется из макроскопических, т. е. усредненных по многим частицам уравнений Максвелла. Авторы [8] показали, что в однородной изотропной среде поправка локального поля равна $(4\pi/3)\mathbf{P}$, где \mathbf{P} — макроскопическая поляризация среды. Таким образом, если поле \mathbf{E} — решение макроскопических уравнений Максвелла, то

$$\mathbf{E}_{\text{loc}} = \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3}\mathbf{P} \quad (12)$$

есть полное поле в среде с учетом поправки локального поля.

Для того чтобы вычислить \mathbf{E}_{loc} в данной точке, нужно принять во внимание дискретность среды, т. е. согласно принципу суперпозиции просуммировать вклады от всех частиц среды в этой точке и добавить к этой сумме поле, поступающее в среду извне. Рассчитав таким образом полное поле во всех точках некоторого малого объема*, следует взять среднее значение поля

*Объем должен быть достаточно малым, чтобы амплитуда и фаза поля пренебрежимо мало изменялись вдоль него, но достаточно большим, чтобы флуктуации поля оказались много меньше среднего по объему поля.

по этому объему. Такой подход использован во многих работах, например, в [32]. Дискретность среды можно учесть и более простым способом, следуя [8], что приводит к формуле Лоренца–Лоренца (12) для полного поля в среде и к соотношению Клаузиуса–Моссотти [9, 11] для диэлектрической проницаемости среды. Поскольку соотношения (12) и формула Клаузиуса–Моссотти широко используются при расчетах, приведем простой вывод уравнения (12), следуя [8], что даст представление о приближениях, в рамках которых получено (12).

Рассмотрим сферическую, достаточно малую область среды, в которой нет ни одной частицы* (рис. 8). Поле \mathbf{E}_{loc} в этой области складывается из внешнего поля \mathbf{E} и полей от других частиц. Последние создают макроскопическую поляризацию \mathbf{P} среды, которая наводит поле \mathbf{E}_{sph} в сферической полости. Таким образом,

$$\mathbf{E}_{\text{loc}} = \mathbf{E} + \mathbf{E}_{\text{sph}}. \quad (13)$$

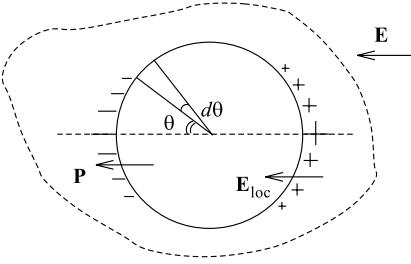


Рис. 8. К расчету поправки локального поля

Так как единственное выделенное направление задается внешним полем \mathbf{E} , то поле \mathbf{E}_{sph} должно быть направлено так же, как \mathbf{E} . Рассчитаем E_{sph} . Поверхностная плотность заряда на стенах полости есть $-P \cos \theta$, и, следовательно, заряд кольца, соответствующего углу $d\theta$ (см. рис. 8), равен

$$de = -2\pi r^2 \sin \theta d\theta P \cos \theta.$$

Полное поле от кольца поверхностных зарядов

$$dE_{\text{sph}} = \frac{de}{r^2} \cos \theta,$$

а поле от всей поверхности сферической полости

$$E_{\text{sph}} = \int dE_{\text{sph}} = 2\pi P \int_0^{2\pi} \sin \theta \cos^2 \theta d\theta = \frac{4\pi}{3} P. \quad (14)$$

Подставляя значение E_{sph} из (14) в соотношение (13), получаем формулу (12).

Данный вывод проведен для статического внешнего поля, но он остается справедлив и для переменного внешнего поля — электромагнитной волны.

*Для этого объема области должен быть $V \ll N_0^{-1}$, тогда вероятность найти одну частицу в V есть $\sim VN_0 \ll 1$.

В этом случае в формулу (8) следует подставить фурье-компоненты полей и поляризации [9]. Действительно, для полости размером $r \ll \lambda$ фурье-компоненты $E(t)$ изменяются много медленнее, чем характерное время r/c прохода поля через полость. Следовательно, при вычислении локального поля $E(t)$ может рассматриваться как статическая.

Поляризация \mathbf{P} определяется локальным полем: $\mathbf{P} = \chi \mathbf{E}_{\text{loc}}$. Подставляя сюда выражение (12) для E_{loc} , используя $\epsilon = 1 + 4\pi\chi$ и $\chi = N_0\alpha$, находим

$$(\epsilon - 1)/(\epsilon + 2) = (4\pi/3)\alpha N_0. \quad (15)$$

Легко обобщить (15) на случай смеси многих компонент с поляризуемостями α_k и концентрациями N_k :

$$\frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} = \frac{4\pi}{3} \sum_k \alpha_k N_k. \quad (16)$$

Соотношение (16) называется формулой Клаузиса–Моссотти для диэлектрической проницаемости смеси разных сортов частиц при учете поправки локального поля. Оно будет использоваться для анализа гетерогенной среды в разд. 5. Как видно из (16), при учете поправки локального поля аддитивными величинами являются поляризуемости компонент смеси. Формула (16) позволяет вычислить ϵ смеси по известным поляризуемостям ее компонент.

Записав (16) для каждой k -й компоненты смеси и тем самым выразив α_k через диэлектрическую проницаемость ϵ_k данной компоненты, приводим (16) к виду

$$\frac{\epsilon_{\text{mix}} - 1}{\epsilon_{\text{mix}} + 2} = \sum_k \eta_k \frac{\epsilon_k - 1}{\epsilon_k + 2}, \quad (17)$$

где η_k — объемная концентрация k -й компоненты; ϵ_k — ее диэлектрическая проницаемость; ϵ_{mix} — диэлектрическая проницаемость смеси. Формула (17) — одна из основных в теории оптических гетерогенных сред, развитой в [26].

Отметим, что если поле падающей электромагнитной волны и поляризация принимаются комплексными, а соотношение (12) применяется для их фурье-компонент, в уравнении (16) α_k и ϵ оказываются комплексными величинами, $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$, где ϵ' описывает дисперсию, а ϵ'' — поглощение (усиление) поля. При этом вывод формулы (12), приведенный выше, остается справедливым, несмотря на то, что приходится рассматривать комплексный заряд поверхности полости. Комплексный заряд — такая же абстракция, как и комплексная поляризация — дипольный момент единицы объема. Реальный заряд — это, как обычно, действительная часть от комплексного заряда.

3.2. Самоуширение. Обсудим некоторые общие положения, касающиеся эффекта самоуширения, а затем рассмотрим его применительно к интересующему нас случаю гетерогенных оптических сред.

Формулы (12) и (16) принимают во внимание диполь-дипольное взаимодействие между частицами среды (см. более подробное обсуждение в [24]). Оно зависит от расстояния r между частицами, а также $\sim r^{-1}$ в дальней зоне и $\sim r^{-3}$ в ближней* [50]. Флуктуации расстояния между частицами, как временные, так и пространственные, приводят к самоуширению резонансных линий, которое становится существенным при плотностях частиц $N_0 k^{-3} > 1$, где k — волновой вектор электромагнитного поля. Для полей оптической области спектра самоуширение становится порядка естественной ширины линии для $N_0 \geq 10^{13}-10^{14} \text{ см}^{-3}$ и при больших концентрациях возрастает $\sim N_0$. Физический механизм самоуширения в резонансных средах состоит в следующем. Диполь-дипольное взаимодействие приводит к сдвигу уровня резонансного перехода, и, из-за флуктуаций расстояния между частицами во времени и в пространстве, этот сдвиг изменяется и приводит к «размытию» уровня. Таким образом, поправка локального поля и самоуширение имеют общую природу и должны приниматься во внимание одновременно. Согласно модели со случайным сдвигом уровня самоуширение можно отнести к неоднородному уширению, что подтверждается некоторыми экспериментами по исследованию особенностей спектра (spectral hole burning) в плотных газах [55]. Вместе с тем существует мнение, что самоуширение является комбинацией однородного и неоднородного типов уширения [36].

Впервые явление самоуширения было отмечено в [56], оно исследовалось в различных экспериментах, например, по измерению коэффициентов самоуширения [57], селективного отражения [55, 58] и других. Самоуширение исследовалось теоретически во многих работах, например [36, 59, 60], однако его строгая теория оказывается весьма сложной, и до настоящего времени она не создана. В реальных системах вклад в самоуширение дают много различных процессов: динамическое и статическое диполь-дипольное взаимодействие между атомами [36], столкновения с изменением скорости между самими атомами и между атомами и стенками резервуара [60] и другие процессы.

Для практических целей существенно, чтобы теория самоуширения оказалась не слишком громоздкой, но в то же время учитывала наиболее существенные особенности явления. В [49] был предложен простой способ учета

*В ближней зоне существует также взаимодействие Ван-дер-Ваальса, пропорциональное r^{-6} [51], которое следует учитывать в строгой теории локального поля [36, 52]. Отмечалась идентичная физическая природа сил Ван-дер-Ваальса и сил Казимира — взаимодействие между частицами через взаимообмен фотонами спонтанного излучения [53, 54].

самоуширения, происходящего из флуктуаций расстояний между частицами. При использовании метода расчета [39] подход [49] непосредственно применим для описания самоуширения в гетерогенных оптических средах. При этом, следя [36], диэлектрическая проницаемость среды ϵ вычисляется по формуле (16) Клаузуса–Моссотти, а затем принимаются во внимание флуктуации плотности частиц N_0 .

Допустим, что монохроматическое поле $E\hat{e}_x e^{-i(\omega t - kz)}$, поляризованное вдоль оси x с единичным вектором \hat{e}_x , распространяется вдоль оси z в объеме V среды, состоящей из диэлектрической матрицы и наночастиц (наношаров) с диэлектрической проницаемостью $\epsilon_{\text{mix}} + \delta\epsilon(\mathbf{r})$, где $\delta\epsilon(\mathbf{r})$ — флуктуации диэлектрической проницаемости, связанные с флуктуациями плотности среды. Наша задача — определить вклад флуктуаций $\delta\epsilon$ в потери падающего излучения и в его дисперсию. Механизм потерь падающего излучения можно рассматривать как его рассеяние на флуктуациях плотности. Рассмотрим поле $\mathbf{E}'(\mathbf{r}) e^{-i\omega t}$ с той же частотой, что и падающее, рассеянное на флуктуациях $\delta\epsilon(\mathbf{r})$. Допустим, что среда изотропна, и рассеяние происходит на флуктуациях скалярных величин — плотности и размеров наношаров, так что ϵ_{mix} и $\delta\epsilon(\mathbf{r})$ — скаляры. Из уравнений Максвелла следует уравнение для амплитуды $\mathbf{E}_{\text{tot}}(\mathbf{r}) = E\hat{e}_x e^{ikz} + \mathbf{E}'(\mathbf{r})$ полного поля в среде: $\text{rot rot}[\mathbf{E}_{\text{tot}}(\mathbf{r})] = k_0^2 \mathbf{D}_{\text{tot}}(\mathbf{r})$, где $\mathbf{D}_{\text{tot}}(\mathbf{r}) = [\epsilon_{\text{mix}} + \delta\epsilon(\mathbf{r})]\mathbf{E}_{\text{tot}}(\mathbf{r})$ — вектор электрической индукции; $k_0 = \omega/c$; c — скорость света в вакууме. Таким образом,

$$\text{rot rot}[E\hat{e}_x e^{ikz} + \mathbf{E}'(\mathbf{r})] = k_0^2[\epsilon_{\text{mix}} + \delta\epsilon(\mathbf{r})][E\hat{e}_x e^{ikz} + \mathbf{E}'(\mathbf{r})]. \quad (18)$$

Обозначим $\langle \dots \rangle$ — усреднение по флуктуациям. Усредняя уравнение (18), учитывая, что $\langle \mathbf{E}'(\mathbf{r}) \rangle = 0$, $\langle \delta\epsilon(\mathbf{r}) \rangle = 0$, $\langle \mathbf{E} \rangle = E\hat{e}_x e^{ikz}$, падающее поле попречно, так что $\text{rot rot}(\hat{e}_x e^{ikz}) = -k^2 \hat{e}_x e^{ikz}$, и разделяя уравнения для средних и флуктуаций, находим, что единственная отличная от нуля x -компоненты среднего поля

$$(k^2 - k_0^2 \epsilon_{\text{mix}})E e^{ikz} = k_0^2 \langle \delta\epsilon(\mathbf{r}) E'_x(\mathbf{r}) \rangle. \quad (19)$$

Таким образом, достаточно определить только компоненту $E'_x(\mathbf{r})$. В соответствии с уравнениями (18) и (19) должно быть

$$\text{rot rot}[\mathbf{E}'(\mathbf{r})] = k_0^2[\epsilon_{\text{mix}} \mathbf{E}'(\mathbf{r}) + \delta\epsilon(\mathbf{r}) E\hat{e}_x e^{ikz} + \delta\epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}'(\mathbf{r}) - \langle \delta\epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}'(\mathbf{r}) \rangle]. \quad (20)$$

Найдем приближенное решение уравнений (19), (20), пренебрегая вкладом разности $\delta\epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}'(\mathbf{r}) - \langle \delta\epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}'(\mathbf{r}) \rangle$ по сравнению с вкладом первых двух слагаемых в (20):

$$\text{rot rot}[\mathbf{E}'(\mathbf{r})] \approx k_0^2[\epsilon_{\text{mix}} \mathbf{E}'(\mathbf{r}) + \delta\epsilon(\mathbf{r}) E\hat{e}_x e^{ikz}]. \quad (21)$$

Заменим в левой части (21) $\text{rot rot } n[\mathbf{E}'(\mathbf{r})] = \text{grad div} [\mathbf{E}'(\mathbf{r})] - \Delta[\mathbf{E}'(\mathbf{r})]$. Найдем $\text{div} [\mathbf{E}'(\mathbf{r})]$, используя

$$\begin{aligned}\text{div} [\mathbf{D}_{\text{tot}}(\mathbf{r})] &\equiv \text{div} \{[\epsilon_{\text{mix}} + \delta\epsilon(\mathbf{r})][E\hat{e}_x e^{ikz} + \mathbf{E}'(\mathbf{r})]\} \approx \\ &\approx \epsilon_{\text{mix}} \text{div} [\mathbf{E}'(\mathbf{r})] + E \text{div} [\delta\epsilon(\mathbf{r})\hat{e}_x e^{ikz}] = 0,\end{aligned}$$

откуда $\text{div} [\mathbf{E}'(\mathbf{r})] = -(E/\epsilon_{\text{mix}}) e^{ikz} \partial/\partial x [\delta\epsilon(\mathbf{r})]$ и x -компоненты $\{\text{grad div} [\mathbf{E}'(\mathbf{r})]\}_x = -(E/\epsilon_{\text{mix}}) e^{ikz} \partial^2/\partial x^2 [\delta\epsilon(\mathbf{r})]$. Таким образом, для x -компоненты рассеянного излучения имеем

$$-[\Delta + k_0^2/\epsilon_{\text{mix}}]E'_x(\mathbf{r}) \approx \left\{ \frac{1}{\epsilon_{\text{mix}}} \frac{\partial^2 [\delta\epsilon(\mathbf{r})]}{\partial x^2} + k_0^2 \delta\epsilon(\mathbf{r}) \right\} E e^{ikz}. \quad (22)$$

Разложим $E'_x(\mathbf{r})$ в ряд Фурье по пространственной координате в объеме V : $E'_x(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}'} E'_x(\mathbf{k}') e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}}$ и подставим это разложение в (22). Используя свойство ортогональности $\int_V d^3 r e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}} = V \delta_{\mathbf{k}' \cdot \mathbf{k}}$, где $\delta_{\mathbf{k} \cdot \mathbf{k}} = 1$, $\delta_{\mathbf{k}' \cdot \mathbf{k}} = 1$, $\mathbf{k}' \neq \mathbf{k}$, получаем для фурье-коэффициента

$$E'_x(\mathbf{k}') = \frac{\epsilon_{\text{mix}}^{-1} \ddot{\delta\epsilon}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) + k_0^2 \delta\epsilon(\mathbf{k}', \mathbf{k})}{(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2} E, \quad (23)$$

где $\delta\epsilon(\mathbf{k}', \mathbf{k}) = V^{-1} \int_V d^3 r \delta\epsilon(\mathbf{r}) e^{i(kz - \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})}$ и $\ddot{\delta\epsilon}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) = V^{-1} \int_V d^3 r \{\partial^2 [\delta\epsilon(\mathbf{r})]/\partial x^2\} e^{i(kz - \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})}$. Подставляя фурье-разложение для рассеянного излучения в (19) и используя там свойство ортогональности фурье-компонент и результат (23), приходим к дисперсионному уравнению

$$\begin{aligned}k^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2 &= k_0^2 J, \\ J &\equiv \sum_{\mathbf{k}'} \frac{k_0^2 \langle \delta\epsilon(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \delta\epsilon(\mathbf{k}', \mathbf{k}) \rangle}{(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2} + \sum_{\mathbf{k}'} \frac{\langle \delta\epsilon(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \ddot{\delta\epsilon}(\mathbf{k}', \mathbf{k}) \rangle}{\epsilon_{\text{mix}} [(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2]} \equiv J_1 + J_2.\end{aligned} \quad (24)$$

Рассчитаем J_1 . Заменим в J_1 суммирование интегрированием по $d^3 k'$:

$$J_1 \approx \frac{k_0^2}{V} \int \frac{d^3 k'}{(2\pi)^3} \int_V d^3 r d^3 r' \langle \delta\epsilon(\mathbf{r}) \delta\epsilon(\mathbf{r}') \rangle \frac{e^{i[k(z-z') - \mathbf{k}' \cdot (\mathbf{r}-\mathbf{r}')]}}{(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2}. \quad (25)$$

Предположим, что величина k' волнового вектора моды рассеянного излучения близка к $\sqrt{\epsilon_{\text{mix}}} k_0$, тогда основной вклад в интеграл по $d^3 k'$ будет давать полюс подынтегрального выражения в $k' = \sqrt{\epsilon_{\text{mix}}} k_0$. Предположим также, что корреляционная длина для флуктуаций $\delta\epsilon(\mathbf{r})$ много меньше k^{-1} , тогда экспоненту в подынтегральном выражении в (25) можно заменить на 1. Вычисляя интеграл в (25) в этих приближениях, находим

$$J_1 \approx \frac{4\pi k_0^2}{V} \int_0^\infty \frac{(k')^2 dk'}{(2\pi)^3} \frac{\langle \delta\epsilon_V^2 \rangle}{(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2} = \pm \frac{i\sqrt{\epsilon_{\text{mix}}} k_0^3}{2\pi V} \langle \delta\epsilon_V^2 \rangle, \quad (26)$$

где $\langle \delta\epsilon_V^2 \rangle = \int_V d^3r d^3r' \langle \delta\epsilon(\mathbf{r})\delta\epsilon(\mathbf{r}') \rangle$. Для рассеяния в поглощающей среде, когда $\text{Im} \sqrt{\epsilon_{\text{mix}}} > 0$ и полюс $k' = \sqrt{\epsilon_{\text{mix}}}k_0$ находится в верхней полуплоскости, в выражении (26) следует взять знак «+». Для усиливающей среды, $\text{Im} \sqrt{\epsilon_{\text{mix}}} < 0$, полюс находится в нижней полуплоскости и в (26) следует выбрать знак «-».

Приближения, сделанные при выводе результата (26), эквивалентны предположению о дельта-коррелированности флуктуаций $\delta\epsilon(\mathbf{r})$. Действительно, полагая в (25)

$$\langle \delta\epsilon(\mathbf{r})\delta\epsilon(\mathbf{r}') \rangle = V^{-1} \langle \delta\epsilon_V^2 \rangle \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (27)$$

приходим к результату (26). Воспользуемся соотношением (27) для вычисления J_2 . Как и для J_1 , заменим суммирование интегрированием по d^3k' :

$$J_2 \approx \frac{1}{\epsilon_{\text{mix}} V} \int \frac{d^3k'}{(2\pi)^3} \int_V d^3r d^3r' \left\{ \frac{\partial^2}{\partial(x')^2} \langle \delta\epsilon(\mathbf{r})\delta\epsilon(\mathbf{r}') \rangle \right\} \frac{e^{i[k(z-z')-\mathbf{k}'(\mathbf{r}-\mathbf{r}')]}}{(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2}, \quad (28)$$

где мы изменили порядок вычисления среднего по флуктуациям и дифференцирования. Пользуясь (27), можно записать

$$J_2 \approx \frac{\langle \delta\epsilon_V^2 \rangle}{\epsilon_{\text{mix}} V^2} \int \frac{d^3k'}{(2\pi)^3} \int_V d^3r d^3r' \left\{ \frac{\partial^2}{\partial(x')^2} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \right\} \frac{e^{i[k(z-z')-\mathbf{k}'(\mathbf{r}-\mathbf{r}')]} }{(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2}. \quad (29)$$

Можно доказать соотношение

$$\int dx \int dy \left[\frac{\partial^{\mu+\nu}}{\partial x^\mu \partial y^\nu} \delta(x-y) \right] f(x,y) = (-1)^{\mu+\nu} \int dx \left[\frac{\partial^{\mu+\nu}}{\partial x^\mu \partial y^\mu} f(x,y) \right]_{x=y}. \quad (30)$$

Используя (30), можно вычислить интегралы в (29):

$$J_2 \approx -\frac{\langle \delta\epsilon_V \rangle}{\epsilon_{\text{mix}} V^2} \int \frac{d^3k'}{(2\pi)^3} \frac{(k')^2 \sin^2 \theta \cos^2 \varphi}{(k')^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2} = \mp \frac{i \sqrt{\epsilon_{\text{mix}}} k_0^3}{6\pi V} \langle \delta\epsilon_V^2 \rangle. \quad (31)$$

Таким образом, дисперсионное уравнение (24) приобретает вид

$$k^2 - \epsilon_{\text{mix}} k_0^2 = \pm \frac{i \sqrt{\epsilon_{\text{mix}}} k_0^5}{3\pi V} \langle \delta\epsilon_V^2 \rangle. \quad (32)$$

Найдем $\langle \delta\epsilon_V^2 \rangle$. Допустим, что флуктуации диэлектрической проницаемости вызваны, в основном, флуктуациями объема и концентрации наночастиц, и пренебрежем вкладом флуктуаций плотности матрицы. В этом случае

$\delta\epsilon = (\partial\epsilon_{\text{mix}}/\partial\eta)\delta\eta$, где η — объемная концентрация наношаров. Так как ϵ_{mix} , рассматриваемое без учета флуктуаций, не зависит от \mathbf{r} , производная $\partial\epsilon_{\text{mix}}/\partial\eta$ тоже не зависит от \mathbf{r} . Таким образом, $\langle\delta\epsilon_V^2\rangle = (\partial\epsilon_{\text{mix}}/\partial\eta)^2\langle\delta\eta_V^2\rangle$, где $\delta\eta_V = \int_V d^3r\delta\eta(\mathbf{r})$. Так как $\eta = V_bN_b$, где V_b и N_b , соответственно, объем наношаров и их концентрация, $\delta\eta = N_b\delta V_b + V_b\delta N_b$, где V_b и N_b — средние значения, не зависящие от \mathbf{r} . Интегрируя $\delta\eta$ по V , находим $\delta\eta_V = \delta V_{bV} + V_b\delta N_{bV}$, где δV_{bV} , δN_{bV} — флуктуации полного объема и полного числа наношаров в V соответственно. Полагая, что эти флуктуации пуассоновские, можно записать $\langle\delta V_{bV}^2\rangle = N_{bV}\langle\delta V_b\rangle$ и $\langle\delta N_{bV}^2\rangle = N_{bV}$. Обозначив $\langle\delta V_b\rangle = (p-1)V_b^2$, где $p-1$ — дисперсия флуктуаций относительного объема наношаров, получаем $\langle\delta\epsilon_V^2\rangle = pV\eta^2(\partial\epsilon_{\text{mix}}/\partial\eta)^2/N_b$ и явный вид дисперсионного уравнения:

$$k^2 = k_0^2\epsilon_{\text{mix}} \left[1 \pm \frac{ipk_0^3\eta^2}{3\pi N_b\sqrt{\epsilon_{\text{mix}}}} \left(\frac{\partial\epsilon_{\text{mix}}}{\partial\eta} \right)^2 \right], \quad (33)$$

где ϵ_{mix} определяется из уравнения (17), в котором следует положить $k = 1, 2$; $\eta_1 = \eta$, $\epsilon_1 = \epsilon_b$ для наношаров и $\eta_2 = 1 - \eta$, $\epsilon_2 = \epsilon_m$ для матрицы. Знак «+» выбирается для поглощающей среды, знак «-» — для усиливющей.

Формула (33) может применяться для описания самоширения плазмонных резонансов металлических наночастиц в прозрачной матрице из-за рэлеевского рассеяния поля на наночастицах. Вместе с тем подход, использованный при выводе (33), может применяться и для анализа самоширения в случае, когда элементарной частицей, взаимодействующей с полем, является резонансный атом.

3.3. Формула Максвелла-Гарнета для локального поля. Формула Клаузуса–Моссотти (17) не является единственным способом описания локального поля в гетерогенной среде. Она не является абсолютно строгой, в частности, из-за того, что при выделении сферической полости, при выводе (17), предполагалось, что в ней нет частиц, а также из-за приближенного описания полей от частиц, окружающих полость, через макроскопическую поляризацию среды \mathbf{P} . С помощью микроскопической процедуры суммирования излучения от отдельных диполей показано, что для резонансных сред двухуровневых атомов поправка локального поля, как в уравнении (12), в частности соответствует случаю тонкой пленки, толщиной много меньше длины волны падающего излучения [33]. Численные расчеты для резонансных сред различных геометрических конфигураций показывают некоторые отклонения от результата (17). Ссылки на литературу по теоретическому исследованию локального поля приводятся ниже, в этом разделе обсудим наиболее популярную из альтернативных (17) формулу Максвелла-Гарнета [10, 48]. Предлагаемый ниже вывод основан на итерационной процедуре, в которой формула Максвелла-Гарнета получается как первое приближение по отношению к вкладу наночастиц в диэлектрическую проницаемость гетерогенной среды.

Представим формулу Максвелла-Гарнета [27] следующим образом:

$$\frac{\epsilon_{\text{mix}} - \epsilon_m}{\epsilon_{\text{mix}} + 2\epsilon_m} = \sum_k \eta_k \frac{\epsilon_{bk} - \epsilon_m}{\epsilon_{bk} + 2\epsilon_m}, \quad (34)$$

где ϵ_{mix} — диэлектрическая проницаемость смеси наночастиц нескольких сортов, помещенных в матрицу с диэлектрической проницаемостью ϵ_m , и ϵ_{bk} — диэлектрическая проницаемость наночастиц k -го сорта. Можно предложить следующий вывод формулы (34) для простого случая наношаров одного сорта.

Рассмотрим гетерогенную среду, состоящую из матрицы с диэлектрической проницаемостью ϵ_m и наношаров радиусом r из материала с диэлектрической проницаемостью ϵ_b . Выделим в среде сферическую область радиусом R с центром в случайно выбранной точке A . Допустим, что $r \ll R \ll R_{\text{ons}}, \lambda$, где R_{ons} — радиус Онсагера, определяемый из условия $(4\pi/3)R_{\text{ons}}^3 N_b = 1$; N_b — концентрация наношаров; λ — длина волн излучения. При случайному выборе сферической области наиболее вероятны два случая: область не содержит ни одного наношара или область содержит единственный наношар. В силу условия $R \ll R_{\text{ons}}$ вероятность найти в сферической области два наношара и более пренебрежимо мала. Обозначим ϵ — поляризуемость гетерогенной среды и рассчитаем поляризуемость α сферической области методом последовательных приближений по отношению к $\epsilon - \epsilon_m$. В нулевом приближении $\epsilon = \epsilon_m$. В первом приближении диэлектрическая проницаемость среды вокруг сферической области полагается равной ϵ_m , а поляризуемость самой области зависит от того, попала туда наночастица или нет. Таким образом, поляризуемость $\alpha(A)$ сферической области вокруг точки A равна поляризуемости наношара в среде ϵ_m , если в область попала наночастица, т. е.

$$\alpha(A) = r^3 \frac{\epsilon_b - \epsilon_m}{\epsilon_b + 2\epsilon_m} \quad (35)$$

согласно [45]*. Полагая в (35) $\epsilon_b = \epsilon_m$, получаем, что поляризуемость сферической области в матрице равна нулю, если там нет наночастиц. Следовательно, в первом приближении по $\epsilon - \epsilon_m$ поляризуемость сферической области, усредненная по многим случайно выбранным точкам $A = A_1, A_2, \dots$, равна

$$\alpha = W r^3 \frac{\epsilon_b - \epsilon_m}{\epsilon_b + 2\epsilon_m},$$

где W — вероятность обнаружить наношар в сферической области. Для малой области $W \ll 1$ и тогда $W \approx V_R N_b$, где $V_R = (4\pi/3)R^3$ — объем сферической области; N_b^{-1} — объем, приходящийся на один наношар. Таким

*Так как $R, r \ll \lambda$, при определении диэлектрической проницаемости можно пользоваться электростатической теорией, как в [45].

образом, средняя поляризуемость гетерогенной среды в первом приближении по $\epsilon - \epsilon_m$ есть

$$\alpha = R^3 \eta \frac{\epsilon_b - \epsilon_m}{\epsilon_b + 2\epsilon_m}, \quad (36)$$

где $\eta = (4\pi/3)r^3 N_b$ — относительная объемная концентрация наношаров.

Как видно, средняя поляризуемость сферической области гетерогенной среды не равна нулю в отличие от случая однородной (гомогенной) среды. Если же охарактеризовать гетерогенную среду ее диэлектрической проницаемостью ϵ , то в первом приближении по $\epsilon - \epsilon_m$ для поляризуемости сферической области можно записать

$$\alpha = R^3 \frac{\epsilon - \epsilon_m}{\epsilon + 2\epsilon_m}. \quad (37)$$

Приравнивая соотношения (36) и (37), получаем формулу (34) Максвелла–Гарнета для одного сорта наночастиц в матрице. Она естественным образом обобщается на случай многих сортов наночастиц.

Обозначим $\epsilon = \epsilon_1$ — диэлектрическую проницаемость смеси, найденную в первом приближении по $\epsilon - \epsilon_m$. Нетрудно получить, что во втором приближении $\epsilon = \epsilon_2$, где ϵ_2 удовлетворяет уравнению

$$\frac{\epsilon_2 - \epsilon_1}{\epsilon_2 + 2\epsilon_1} = (1 - \eta) \frac{\epsilon_m - \epsilon_1}{\epsilon_m + 2\epsilon_1} + \eta \frac{\epsilon_b - \epsilon_1}{\epsilon_b + 2\epsilon_1}. \quad (38)$$

Первое слагаемое в правой части (38) соответствует поляризуемости сферической области без наношара, которая во втором приближении по $\epsilon - \epsilon_m$ отлична от нуля. Необходимым условием применимости формулы Максвелла–Гарнета для единственного сорта наношаров является, следовательно, $\epsilon_2 < \epsilon_1$. Отметим, что в случае $\epsilon_1 \rightarrow 1$ формула (38) переходит в формулу Клаузиуса–Моссotti для единственного сорта наношаров. Нами были проведены численные эксперименты, в которых вычислялись более высокие итерации и найдено два предельных значения ϵ . Одно соответствует диэлектрической проницаемости сплошной гетерогенной среды, к этому значению стремится ϵ_2 , а другое — диэлектрической проницаемости среды вблизи пустой сферической полости, к этому значению стремится ϵ_1 .

В работах [26, 27] оптические свойства гетерогенных сред исследовались, соответственно, с помощью формул Клаузиуса–Моссotti и Максвелла–Гарнета. Несмотря на некоторое количественное различие результатов, обе формулы предсказывают качественно одинаковые эффекты (см. разд. 5). Наиболее принципиальное явление, которое следует учесть при использовании обеих формул, — самоуширение. Это можно сделать так, как показано в предыдущем разделе.

3.4. Оптические свойства гетерогенных сред, обусловленные локальным полем: современное состояние исследований. Здесь приводятся ссылки и обсуждаются результаты некоторых работ, в которых исследовалось локальное поле в гетерогенных средах. Как отмечалось, поправка локального поля тесно связана со структурой вещества, диполь-дипольным взаимодействием между его микрокомпонентами (наночастицами, отдельными атомами) размером много меньше длины волны.

Локальное поле может быть существенно модифицировано наночастицами. Отметим некоторые теоретические разработки и эксперименты, касающиеся локального поля, выполненные для гетерогенных сред, состоящих из наночастиц, кластеров, фрактальных структур и фуллеренов.

3.4.1. Локальное поле в кластерных средах, в том числе с фрактальной структурой. Было показано, что сильные флуктуации локального поля могут привести к очень большим оптическим нелинейностям композитов (кластеров) малых частиц. В кластерной среде существенно повышаются эффективности четырехволнового взаимодействия, генерации третьей гармоники, рамановского рассеяния, нелинейной дисперсии и поглощения в средах с керровской нелинейностью. Особенно велики флуктуации локального поля и связанные с ними нелинейные эффекты в средах кластеров с фрактальной структурой. Усиление оптических явлений в таких средах описывается через резонансное линейное взаимодействие (поглощение) поля коллективной дипольной модой кластера с определенной добротностью q при линейном взаимодействии $q = q^1$. Показано, что соответствующие восприимчивости композита пропорциональны q^3 для рамановского рассеяния и керровской нелинейности и q^4 , q^6 для генерации третьей гармоники и четырехволнового взаимодействия соответственно [61].

Предсказано гигантское увеличение нелинейных восприимчивостей примесей, включенных во фрактальные структуры, объясняемое воздействием сильного локального поля фрактальных структур на примеси. Важное значение имеет неоднородный характер уширения спектра фрактальных структур и, следовательно, частичное сохранение свойств мономеров, составляющих фрактал. Каждый мономер может рассматриваться как резонатор, и усиление нелинейных восприимчивостей пропорционально Q -фактору этого резонатора. Усиление восприимчивостей зависит от хаусдорфовской размерности фракталов и уменьшается, когда последняя становится тривиальной (целочисленной) [62].

Экспериментально исследовались оптические свойства фрактальных nanoструктур в микрорезонаторах. Во-первых, локальное поле существенно усиливалось вблизи nanoструктур размером много меньше длины волны оптического излучения, во-вторых, оптические эффекты, связанные с локальным полем, возрастили из-за наличия микрорезонатора. В экспериментах с использованием очень слабого лазерного излучения мощностью ниже 1 мВт на-

блюдалось усиление рамановского рассеяния излучения фрактальными структурами [63].

Построена масштабно-инвариантная теория линейных оптических свойств нетривиальных фракталов в области коллективного взаимодействия с полем, т. е. около центра линии поглощения. Исследованы сильные флуктуации локального поля в нетривиальных фрактах, приводящие к гигантскому усилению рамановского и нелинейного параметрического рассеяния света. Рассчитан порог спектрально-селективной и поляризационно-селективной фотомодификации фракталов [64]. В [65] отмечались гигантские флуктуации интенсивности локального поля во фрактальных кластерах, связанные с высокой добротностью (низкими потерями) оптических резонансов. Показано, что аномалии нелинейно-оптических свойств фракталов связаны именно с флуктуациями, а не с большим средним значением локального поля. Рассчитана функция распределения локального поля, в ней найдена новая зависимость от характерного масштаба.

Теоретическое исследование локального поля в окрестности одного или пары металлических кластеров выполнено в [66], теория локального поля в системах наночастиц, разработанная с использованием диаграммной техники, представлена в [67].

Отмечалось, что усиление рамановского рассеяния и флуоресценции вызвано, вполне возможно, сильным локальным полем, возникающим при падении электромагнитной волны $\lambda \sim 200\text{--}1200$ нм на поверхность помещенной в воду микросферы из благородного металла (Ag, Cu и Au) радиусом $0\text{--}300$ нм. Наибольший эффект возникал, когда частота поля совпадала с частотой дипольного или мультипольного плазмонного резонанса микросферы [68].

Путем расчетов с использованием формализма Максвелла-Гарнета предсказано изменение знака нелинейного поглощения золотых частиц в воде, хотя нелинейное поглощение положительно для каждой из компонент смеси в отдельности. Это объясняется тем, что плазмонный резонанс приобретает минимум компоненту из-за сдвига фаз между приложенным полем и локальным полем внутри частицы [69].

Развита нелинейная теория возмущений для описания оптических свойств нелинейной матрицы с частицами и получена общая формула для вычисления нелинейных восприимчивостей до пятого порядка включительно. Теория применима для двумерных и трехмерных систем. В двумерном случае рассматривались частицы в виде цилиндров и концентрических цилиндров, последний случай обобщался на среду с частицами — эллиптическими цилиндрами. Выведена общая формула для эффективной нелинейной восприимчивости композита из случайно ориентированных эллиптических цилиндров в линейной диэлектрической матрице. Для трехмерной задачи рассмотрены сферические частицы и сферические частицы с покрытием из другого материала. Общее выражение для нелинейной диэлектрической восприим-

чивости получено вплоть до восприимчивостей пятого порядка. Для частиц с покрытием можно подобрать оптимальные условия усиления нелинейно-оптических свойств, варьируя материалы покрытия и частиц, толщину покрытия и т. д. [70].

Предсказывается, что при фемтосекундном возбуждении случайно расположенных кластеров, композитов или шероховатых поверхностей в оптическом линейном режиме возникнут сверхбыстрые гигантские флуктуации локальных полей. Эти флуктуации вызовут переходные режимы (на масштабах времени порядка наносекунд), при которых возникнут сильные поля в областях пространства размерами порядка нанометров. Пространственное распределение таких полей сильно отличается от того, которое возникает в стационарном режиме [71].

Разработана теория линейных и нелинейных оптических восприимчивостей в неупорядоченных композитах наночастиц в диэлектрических матрицах, базирующаяся на спектральном представлении в рамках дипольного приближения. Проведены численные расчеты и получена линейная диэлектрическая функция и нелинейная гипервосприимчивость третьего порядка для объемных концентраций наночастиц от 0,001 до 0,12. В определенных областях спектра возникает сильное увеличение нелинейных гипервосприимчивостей (до 10^3 для серебряных наночастиц). Отмечается, что теории среднего поля обеспечивают достаточно точные предсказания только для малых объемных концентраций — до 0,001, так как они не учитывают флуктуации локального поля [72].

Исследовалось влияние локального поля на процесс возникновения оптического пробоя в металлических микроструктурах [73].

Рассчитывалась функция распределения локального поля для композитной среды неупорядоченных наночастиц различной формы (круглые диски, квадратные пластинки, иголки). Предполагалось, что среда помещена в постоянное или тепловое (флуктуирующее) электрическое поле; показано, что локальное поле в композите будет испытывать сильные пространственные флуктуации. При расчетах решалось дифференциальное уравнение в частных производных с использованием эффективной и точной техники интегральных уравнений. В случае дисков и прямоугольных пластинок функция распределения локального поля имеет два пика. Это означает, что флуктуации локального поля не могут быть хорошо описаны только с помощью дисперсии (вторых моментов). В случае иголок распределение имеет один пик, но его моменты высокого порядка существенно больше, чем соответствующие моменты для дисков или квадратных пластинок [74].

3.4.2. Некоторые эксперименты. Отметим некоторые интересные эксперименты по исследованию свойств гетерогенных сред, обусловленных локальным полем.

Экспериментально наблюдалась оптическая бистабильность в системе сферических наночастиц CdS, покрытых серебром. Бистабильность возникала за счет нелинейности третьего порядка в ядре CdS и усиливалась серебряным покрытием за счет сильного возрастания локального поля на частотах, близких к частоте плазмонного резонанса. Толщина серебряного покрытия подбиралась так, чтобы плазмонный резонанс возникал на длине волны 514,5 нм используемого аргонового ионного лазера мощностью 2 Вт. Результаты показали сильную зависимость характеристик оптической бистабильности от толщины серебряного покрытия, они хорошо согласуются с предсказаниями теории оптической бистабильности в гетерогенных полупроводниковых средах [75].

Теоретически и экспериментально исследовались гиперполяризуемости атомов и центрально-симметричных молекул, наведенные дальнодействующими силами при столкновениях [76]. Оптическая бистабильность, связанная с локальным полем, наблюдалась в стекле с примесями Yb^{3+} и Tm^{3+} при комнатной температуре. В волноводных лазерах из этих материалов наблюдались неустойчивости [77]. Учет эффектов локального поля приводит к лучшему соответствуию результатов экспериментов и теоретических расчетов спектров потерь энергии [78].

Экспериментально исследовались оптические свойства фрактальных nanoструктур в микрорезонаторах [62].

В эксперименте определялась симметрия локального электрического потенциала в фуллеренах с помощью так называемого «расщепления нулевым полем» — взаимодействия между фуллеренами и атомами азота или фосфора, помещенными в них с помощью ионной бомбардировки. Так как подобное взаимодействие отсутствует в чистом ^{60}C в силу симметрии, могут быть зафиксированы даже малые эффекты, такие как длинномасштабный порядок кристаллической фазы. Изучался фазовый переход первого рода в ^{60}C , показана возможность детектирования следов парамагнитной фазы по флуктуациям взаимодействия магнитных диполей [79].

Проведена экспериментальная оценка зависимости оптических характеристик пленок от локального поля по измерениям показателя преломления [80], исследовался отклик на воздействие резонансным излучением плотного атомарного газа (potassium) в условиях, когда существенны эффекты, связанные с локальным полем. Результаты экспериментов находятся в хорошем согласии с теорией, обнаружен сдвиг резонансной линии газа, индуцированный столкновениями [81]. В эксперименте наблюдалась четкая зависимость скорости спонтанного излучения от показателя преломления среды при участии эффектов локального поля в случае излучения электрических диполей, но эффекты локального поля не давали вклад в аналогичный процесс при излучении магнитных диполей [82].

3.4.3. Локальное поле в тонких пленках и средах трехуровневых А-систем. Большой интерес вызывает исследование локального поля в тонких пленках и около поверхностей, где оно сильно влияет на отраженное излучение. Фактически излучение, отраженное от поверхности, вызвано локальным полем в области вещества из поверхностного слоя толщиной $\sim \lambda$. В тонких пленках может наблюдаться оптическая бистабильность за счет локального поля и другие эффекты (см. ниже).

Исследовалось локальное поле вблизи поверхностей. Следует отметить, что шероховатая поверхность есть пример двумерной гетерогенной среды. Рассматривалось, в частности, усиление локального поля вблизи шероховатой поверхности из-за поверхностных плазмонов определенного типа. Это локальное поле может приводить к существенным изменениям нелинейных свойств молекул, абсорбированных на поверхности [83].

Изучалось влияние локального поля на сверхизлучение пленки трехуровневых атомов (А-атомов) при начальной когерентности на переходе между двумя нижними уровнями. Показано, что локальное поле может приводить к когерентному рамановскому переходу между подуровнями нижнего дублета [84]. Рассматривалось влияние локального поля на безынверсное сверхизлучение пленки трехуровневых А-атомов [85]. Найдены условия сверхизлучения без инверсии в системах трехуровневых А-атомов при воздействии низкочастотного поля на нижнюю пару уровней атомов и учете поправки локального поля [86]. Предсказано увеличение показателя преломления за счет локального поля в точке прозрачности газа А-атомов [35] и «пьезофотонное переключение» между поглощением и усилением электромагнитного поля [87].

С помощью техники функций Грина рассчитывалось нелинейное отражение и выходной сигнал четырехволнового смешения с временным разрешением от монослоя молекул. Предсказана когерентность молекул монослоя с длиной когерентности порядка длины волны. Предсказан добавочный пик рассеяния, не следующий из теорий, использующих приближение локального поля, и некоторые другие противоречия с этими теориями [88]. Предсказана оптическая бистабильность, обусловленная локальным полем, в том числе в излучении, отраженном от среды двухуровневых атомов, где возможны также пороговый режим «оптического переключателя» и колебательные режимы [89]. Оптическая бистабильность в гетерогенной среде экспериментально наблюдалась в [75].

3.4.4. Влияние локального поля на параметры оптических сред и устройств. Исследовалось влияние локального поля на характеристики оптических сред и приборов, например, на скорость спонтанного излучения, захват излучения, лазерный порог.

Теоретически исследовалось влияние поправки локального поля на спонтанное излучение в поглощающем диэлектрике с дифракцией с использо-

ванием микроскопической квантово-электродинамической теории передачи энергии в конденсированных средах. Это позволило непосредственно учесть эффекты, связанные с дискретностью среды, в том числе локальное поле, в выражениях для скоростей релаксации [90, 91]. Перенормировка скоростей спонтанного излучения в диэлектрике выполнена на основании микроскопических многочастичных операторных уравнений Максвелла–Блоха для двухуровневых атомов в линейной диэлектрической матрице с поглощением и дисперсией. Полученное увеличение скоростей спонтанного излучения за счет локального поля меньше, чем в предшествующих работах [92]. Детальная теория перенормированной скорости спонтанного излучения атома в диэлектрике с учетом поправки локального поля представлена в [93].

Захват когерентного излучения в плотной среде при учете поправки локального поля исследовался в [94] с помощью включения поправок локального поля в уравнения для матрицы плотности и последующего численного анализа. Показано, что состояние с захваченным излучением слабо зависит от поправок локального поля, но к ним весьма чувствительны состояния, близкие к захвату излучения. Локальное поле замедляет переход к состоянию захвата. Результаты обобщены на случай лазерной генерации без инверсии в плотных средах А-систем.

Предсказано понижение «второго порога» лазера за счет локального поля при отрицательной отстройке от резонанса [95]. При концентрациях частиц $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ локальное поле сильно изменяет профиль спектральных линий из-за интерференции квантовых переходов [96].

Показано, что возможно десятикратное увеличение эффекта вращения поляризации световой волны за счет локального поля в непроводниках (таких как кварц и Se), хотя влияние локального поля на другие оптические свойства этих веществ не превышает 10 %. Интересно отметить, что этот эффект, связанный с векторным характером электромагнитного излучения, вызывается скалярным локальным полем [97].

Существенно влияние локального поля на процессы рамановского и рэлеевского рассеяния излучения. В частности, отмечалась роль локального поля в увеличении сечения рамановского рассеяния поглощающих молекул [98]. Рассеяние электромагнитного излучения в неоднородной поляризуемой среде с учетом эффектов локального поля, рассматриваемых во втором порядке теории возмущений, исследовалось в [99]. Изучалось изотропное и анизотропное рэлеевское рассеяние в жидкостях, получены интенсивности анизотропного рассеяния как функции показателя преломления. Для разделения рассеяния на отдельных молекулах и рассеяния при столкновениях и из-за статических парных корелляций использовались спектроскопические методы. При рассеянии на отдельных молекулах большую роль играют эффекты локального поля вблизи молекул. Результаты экспериментов сравнивались с результатами теоретического анализа локального поля в жидкостях в рамках различных мо-

делей, для всех моделей показана эквивалентность поправки локального поля в четвертом порядке теории возмущений и поправки, рассчитанной по флуктуациям диэлектрической функции. Поправка локального поля, вычисленная по эллипсоидальной модели Онсагера–Шолте, согласуется со всеми экспериментальными данными [100].

3.4.5. Теоретические исследования локального поля. Локальному полю в гетерогенных средах посвящено большое число фундаментальных теоретических разработок и обзоров. Обзор различных эффектов, связанных с резонансным диполь–дипольным взаимодействием частиц в конденсированных средах, дан, например, в [101], где отмечалась важность учета локального поля при анализе различных свойств оптических материалов, в том числе тонких пленок.

Обзор и введение в проблему локального поля в диэлектриках выполнены в [102]. Обсуждаются микроскопические аспекты проблемы, представлены результаты, касающиеся электрон–фононного взаимодействия в квазидвумерных системах, в том числе в высокотемпературных сверхпроводниках.

В теории, рассматривающей термодинамические характеристики разупорядоченных систем электро- или магнитодипольных моментов, взаимодействие между соседними частицами описывается с помощью случайного локального поля. Распределение последнего находится самосогласованным образом в предположении, что вклады отдельных частиц статистически независимы. Таким образом, удается явно учесть температурные флуктуации локального поля и получить явные выражения для вторых вироильных коэффициентов восприимчивости и теплоемкости [103].

Распространение падающей и отраженной волн в диэлектрике может быть описано с помощью последовательного применения принципа суперпозиции. В результате получается независимое от конкретной модели среды выражение для локального поля [104].

Теория эффективного поля в бесконечной немагнитной неоднородной среде представлена в [105]. Получено самосогласованное интегродифференциальное уравнение для эффективного поля в каждой точке среды, учитывающее рассеяние в любой области среды. Это уравнение решается путем итераций, представляя эффективное поле в виде степенного ряда интегральных операторов, действующих на эффективное поле, определенное для однородной среды. Из двух сортов операторов одни дают вклад в эффективное поле типа вклада от брэгговского рассеяния (т. е. зависящий от волнового вектора моды), другие — однородный вклад во все моды и формируют «базовое» эффективное поле. Последнее используется для определения эффективной диэлектрической постоянной, что справедливо для сред, флуктуации в которых не коррелированы на длинах больших, чем длина волны оптического излучения.

В [106] сравнивались различные выводы соотношения Клаузиуса–Моссотти и выполнен расчет этого соотношения методами статистической механики для системы классических гармонических осцилляторов, взаимодействующих через кулоновский потенциал. Выполнен анализ приближений и области применимости, для которых справедливо соотношение Клаузиуса–Моссотти.

Вычислялись поправки к соотношению Клаузиуса–Моссотти, связанные со структурными корреляциями в диэлектрике, с использованием обобщенного метода Онсагера, предсказана характерная структура распределения локального поля с двумя пиками [107, 108]. Эта структура найдена аналитически в [109], она возникает как конволюция распределений, связанных с взаимодействием ближайших соседей, и гауссовского распределения, связанного с взаимодействием остальных частиц.

3.4.6. Локальное поле в гетерогенных средах с периодической и квазипериодической структурой. Эффекты локального поля в гетерогенных средах с периодической или квазипериодической структурой могут иметь ряд особенностей по сравнению с неупорядоченными гетерогенными средами. Рассматривалась, например, периодическая двумерная решетка диэлектрических сфер на плоской подложке и рассчитывался ее отклик на падающую плоскую электромагнитную волну. Существенной особенностью такой системы является возникновение резонансных мод электромагнитного поля, связанных с локализованными модами рассматриваемой диэлектрической структуры. При возбуждении резонансных мод локальное поле около сферы усиливается, что приводит к существенным изменениям различных оптических свойств образца. Рассчитаны фактор усиления для спектра рэлеевского рассеяния и предсказана оптическая bistабильность при низкой мощности падающего излучения [110].

В [111] разработана теория электромагнитного поля в среде, расстояние между элементарными излучателями которой не является малым по сравнению с длиной волны излучения. Дискретность среды рассматривается как количественно измеримый параметр. Противоречие с законом сохранения энергии, возникающее при учете радиационного затухания в формуле Лоренца–Лоренца, разрешается путем правильного описания дискретности среды. Рассчитаны поправки локального поля и диэлектрическая проницаемость среды, проведено сравнение газовой, гелеподобной и твердотельной сред с кубической кристаллической решеткой. Обсуждается применение теории для случая неупорядоченных сред. Теория [111] применима для расчетов оптических свойств сильно охлажденных газов, композитных материалов и полупроводниковых сред с квантовыми точками.

3.4.7. Локальное поле в твердотельных гетерогенных средах. Большое число работ посвящено исследованию локального поля в твердотельных гетерогенных структурах, в том числе квантовых ямах [112], твердотельных материалах [113]. Поправка локального поля учитывалась в обобщенных уравне-

ниях Максвелла–Блоха для полупроводников [114]. Разработана теория полупроводников, учитывающая многочастичные поправки к одночастичным энергиям при вычислении поляризации. Для низкочастотной области поправки локального поля уменьшают ϵ , в то время как учет обменно-корреляционного взаимодействия увеличивает силу осциллятора. Рассматриваемые эффекты существенно изменяют вид плазмонного резонанса в функции потерь [115]. Переформировка зон в полупроводниках при изменении концентрации электронов, связанная с поправкой локального поля при кулоновском взаимодействии электронов, исследовалась в [34].

Изучалось локальное поле в ионных кристаллах [116, 117], где отмечалось слабое (около 2 %) отклонение от формулы Лоренца–Лоренца и Клаузиуса–Моссotti из-за экспоненциальной зависимости от радиусов ионов, и в ионных проводниках [118].

Исследовалось эффективное поле для примесных центров в кристаллах, помещенных во внешнее электрическое поле. Показано, что в этом случае описание локального поля по формуле Лоренца–Лоренца, как правило, несправедливо. Для примесных центров большого радиуса эффективное поле приблизительно совпадает с внешним полем, но во всех других случаях эти два поля различны. Аппроксимация локального поля по формуле Лоренца–Лоренца оказывается справедливой только для достаточно малых примесных центров, соответствующий критерий определен в [119].

Концепция локального поля имеет большое значение не только при исследовании оптических свойств материалов, но и в других областях физики. Например, она используется для описания систем сильновзаимодействующих фермионов [120], при анализе солитонов [121], поправки локального поля существенны при расчетах рассеяния в задачах ядерной физики и физики элементарных частиц [122], существенна роль локального поля при сужении линии магнитного резонанса [123, 124]. Взаимодействие магнитных диполей систем малых частиц теоретически изучалось в [125], рассчитывалась диэлектрическая проницаемость газа взаимодействующих электронов с учетом локального поля [126], локальное поле в плазме исследовалось в [127, 128].

4. ВЫСОКИЙ ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ В СИСТЕМЕ С ВНЕШНИМ РЕЗОНАТОРОМ

Как отмечалось в п. 2.3, формула (12) формально допускает $\epsilon \rightarrow \infty$ при отсутствии поглощения или усиления в среде (действительном α) и при $N_0 = N_0^{\text{cr}}$, определяемом (9). Вместе с тем в резонансных средах двух- или трехуровневых атомов выполнить условие (9) не удается из-за самоуширения: при $N_0 \geq (\lambda/2\pi)^3$ оказывается $\alpha \sim N_0^{-1}$. Чтобы обойти эту трудность, в работах [38] предложена идея создания «искусственного» локального поля с

помощью рассеяния дифрагирующего (пробного) поля во внешний резонатор с усилением и перерассеянием поля из моды резонатора обратно в пробное поле.

Одна из возможных схем реализации предложения [38] представлена на рис. 9. Пробное поле $\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t)$, проходя через p -среду, рассеивается в ней. Часть рассеянного излучения поступает в моды резонатора и создает там поле $\mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t)$, которое усиливается и рассеивается обратно в пробное поле. Показатель преломления пробного поля увеличивается и может контролироваться за счет перерассеянного излучения. Угол между пробным пролем и полем резонатора может быть любым, хотя на рис. 9 это прямой угол.

Получим дисперсионное уравнение для пробного поля. Представим полное поле в p -среде в виде

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t), \quad (39)$$

где $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ удовлетворяет уравнению Максвелла

$$\nabla \cdot \nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) - k_0^2 \left(1 + i4\pi \frac{\sigma}{\omega}\right) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 4\pi k_0^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}), \quad (40)$$

в котором $\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \chi(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r})$ и σ описывает потери, не учитываемые мнимой частью диэлектрической восприимчивости χ , например, потери на зеркалах, дифракция из-за конечных размеров p -среды. Предположим, что

$$\chi = \chi_a + \chi_p + \delta\chi(\mathbf{r}), \quad (41)$$

где χ_a постоянна в усиливающей среде и равна нулю во всем остальном пространстве; χ_p постоянна и не равна тождественно нулю только в p -среде и $\delta\chi(\mathbf{r})$ — тождественный нуль вне p -среды. Уравнение (40) не может быть сведено к волновому уравнению из-за координатной зависимости $\delta\chi(\mathbf{r})$, которая приводит к $\nabla \mathbf{E}(\mathbf{r}) \neq 0$. Представим

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \delta\mathbf{E}(\mathbf{r}), \quad \nabla \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = 0, \quad (42)$$

где $\delta\mathbf{E}(\mathbf{r})$ обусловлена флуктуациями $\delta\chi(\mathbf{r})$. Предполагая $\delta\chi(\mathbf{r}) \ll \chi(\mathbf{r})$ и пренебрегая в уравнении $\nabla \mathbf{D}(\mathbf{r}) \equiv \nabla[1 + 4\pi\chi(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r})] = 0$ малым слагаемым

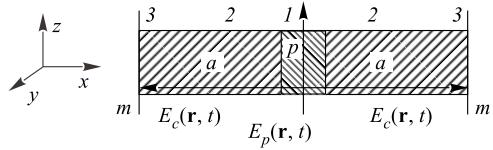


Рис. 9. Схема увеличения и контроля показателя преломления с помощью внешнего резонатора: 1 — среда, показатель преломления которой контролируется; 2 — усиливающая среда; 3 — зеркала, образующие резонатор длиной L

$\sim \delta\chi(\mathbf{r})\delta\mathbf{E}(\mathbf{r})$, получаем

$$\delta\mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{\epsilon}\delta\chi(\mathbf{r})\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \nabla \cdot \mathbf{C}, \quad \epsilon = 1 + 4\pi(\chi_a + \chi_p), \quad (43)$$

где \mathbf{C} — произвольный вектор, который можно считать равным нулю. Используя соотношение (43) и уравнение (40), можно получить

$$\nabla^2\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) - k_0^2 \left(\epsilon + i4\pi\frac{\sigma}{\omega} \right) \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = -\frac{4\pi}{\epsilon} \nabla \cdot \nabla \cdot [\delta\chi(\mathbf{r})\mathbf{E}_0(\mathbf{r})]. \quad (44)$$

Регулярная часть $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$ полного поля $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ в p -среде состоит из двух частей — пробного поля $\mathbf{E}_p(\mathbf{r})$ и поля резонатора $\mathbf{E}_c(\mathbf{r})$:

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_p(\mathbf{r}) + \mathbf{E}_c(\mathbf{r}), \quad \mathbf{E}_p(\mathbf{r}) = E_p \mathbf{U}_p(\mathbf{r}), \quad \mathbf{E}_c(\mathbf{r}) = E_c \mathbf{U}_c(\mathbf{r}), \quad (45)$$

где функции $\mathbf{U}_p(\mathbf{r})$ и $\mathbf{U}(\mathbf{r})$ ортогональны в объеме p -среды.

Определим E_p . Умножая обе части уравнения (44) на $\mathbf{U}_c(\mathbf{r})$ и интегрируя по объему резонатора, находим

$$E_c = \frac{1}{\Delta - i/Q} (R_{cc}E_c + R_{pc}E_p), \quad (46)$$

где

$$\Delta = \left(1 - \frac{\omega_c^2}{\omega^2} \right) \frac{\epsilon_a V_{ac} + \epsilon_p V_{pc}}{V_{cc}}, \quad \frac{1}{Q} = \frac{\epsilon_a'' V_{ac} + \epsilon_p'' V_{pc}}{V_{cc}} + 4\pi \frac{\sigma}{\omega} \frac{V_a}{V_{cc}}, \quad (47)$$

$$R_{pc} = \frac{1}{V_{cc}} \int_p \mathbf{j}_p(\mathbf{r}) \mathbf{U}_c(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad R_{cc} = \frac{1}{V_{cc}} \int_p \mathbf{j}_c(\mathbf{r}) \mathbf{U}_c(\mathbf{r}) d\mathbf{r},$$

$$\mathbf{j}_{p,c}(\mathbf{r}) = \frac{4\pi}{\epsilon_p} \nabla \cdot \nabla \cdot [\delta\chi(\mathbf{r}) \mathbf{U}_{p,c}(\mathbf{r})], \quad \epsilon_{a,p} = 1 + 4\pi\chi_{a,p}, \quad (48)$$

$$V_{cc} = \int_c |U_c(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r}, \quad V_{pc} = \int_p |U_c(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r}, \quad V_a = \int_a |U_c(\mathbf{r})|^2 d\mathbf{r}.$$

Индексы c , a и p у интегралов означают, соответственно, интегрирование по объему резонатора, объемам усиливающей среды и p -среды. Собственная частота резонатора ω_c определяется из уравнения

$$(c_0^2 \nabla^2 + \omega_c^2 \epsilon') U_c(\mathbf{r}) = 0, \quad (49)$$

где c_0 — скорость света в вакууме, и соответствующих граничных условий. Подставим E_c , определяемое уравнением (46), в первое из соотношений (45)

и затем $\mathbf{E}_0(\mathbf{r})$ из (45) в (44) и усредним (44) по флуктуациям диэлектрической восприимчивости p -среды, в результате чего получим

$$\langle (\nabla^2 + k_0^2 \epsilon_p) \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \rangle = -\langle \mathbf{j}_p(\mathbf{r}) E_p \rangle - \frac{1}{\Delta - i/Q} \langle \mathbf{j}_c(\mathbf{r}) R_{pc} E_p \rangle. \quad (50)$$

При вычислениях $\langle \mathbf{j}_p(\mathbf{r}) E_p \rangle$ и $\langle \mathbf{j}_c(\mathbf{r}) R_{pc} E_p \rangle$ предположим, что случайная функция координат $\delta\chi(\mathbf{r})$ δ -коррелирована*:

$$\langle \delta\chi(\mathbf{r}) \rangle = 0, \quad \langle \delta\chi(\mathbf{r}) \delta\chi(\mathbf{r}') \rangle = S_0 \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \quad (51)$$

где S_0 — комплексная постоянная, зависящая от рассеивающих свойств материала p -среды. Разделяя средние и флуктуирующие части:

$$E_{p,c} U_{p,c} = \langle E_{p,c} U_{p,c} \rangle + \delta(E_{p,c} U_{p,c}), \quad (52)$$

мы можем пренебречь малыми слагаемыми $\langle \delta(E_{p,c} U_{p,c}) \delta\chi(\mathbf{r}) \delta\chi(\mathbf{r}') \rangle$ при вычислении средних в уравнении (50). Чтобы упростить дальнейшие вычисления, предположим, что пробное поле и поле в резонаторе поляризованы вдоль оси y , после чего векторные обозначения у полей в (50) можно опустить. Представим

$$E_p(\mathbf{r}) = F_p(\mathbf{r}) \exp(ik_p z), \quad E_c(\mathbf{r}) = F_c(\mathbf{r}) \cos(ik_c x), \quad (53)$$

где $k_c^2 = (\omega_c/c_0)\epsilon_p$ и $F_{p,c}(\mathbf{r})$ — медленно изменяющиеся функции по сравнению с $\exp(ik_p z)$ и $\cos(ik_c x)$. Легко получить

$$[\nabla^2 + k_0^2 \epsilon_p + k_p^2 K g(\mathbf{r}, x) + ik_0 \kappa] \langle E_p(\mathbf{r}) \rangle = 0, \quad (54)$$

где

$$g(\mathbf{r}, x) = |F_c(\mathbf{r})|^2 [1 + (1 + 4k_c^2/k_p^2) \cos(2k_c x)]. \quad (55)$$

Подробные вычисления, приводящие к результату (54), опубликованы в работе [38].

Принимая $\langle E_p(\mathbf{r}) \rangle = X(\mathbf{r}) \exp(ik_p z)$, где $X(\mathbf{r})$ — медленно изменяющаяся амплитуда, в сравнении с $\exp(ik_p z)$, и подставляя выражение для пробного поля в уравнение (54), можно получить дисперсионное уравнение для величины волнового вектора пробного поля k_p :

$$k_p^2 - k_0^2 \epsilon_p = k_p^2 K(\xi) + ik_0 \kappa, \quad (56)$$

*Данное предположение справедливо до тех пор, пока флуктуации числа частиц в элементарном объеме среды можно считать пуссоновскими, что выполняется при обычных условиях. О выборе элементарного объема см. разд. 1.

где $K(\xi) = K'(\xi) + iK''(\xi)$; $\epsilon_p = \epsilon'_p + \epsilon''_p$ и $S = S' + iS''$;

$$\begin{aligned} K' &= G \frac{A\xi - B}{\xi^2 + 1}, & K'' &= G \frac{B\xi + A}{\xi^2 + 1}, & \xi &= Q\Delta, \\ G &= 8\pi^2 \frac{k_c^2}{k_0^2} \frac{V_{cp}}{V_{cc}V_{pp}} Q, & A &= \operatorname{Re} \left(\frac{S}{\epsilon_p^2} \right), & B &= \operatorname{Im} \left(\frac{S}{\epsilon_p^2} \right). \end{aligned} \quad (57)$$

Ниже, для простоты, принимается $(k_c - k_0)/k_0 \ll 1$ и $k_c/k_0 \approx 1$.

Для того чтобы p -среда оказалась прозрачной, k_p должно быть действительным, что имеет место, если

$$k_p^2 K''(\xi) + k_0^2 \epsilon''_p + k_0 \kappa = 0, \quad (58)$$

и тогда

$$k_p^2 = \frac{k_0^2 \epsilon'_p}{1 - K'(\xi)}. \quad (59)$$

Формула (59) формально допускает $k_p \rightarrow \infty$ при $K' \rightarrow 1$, но данная теория не учитывает нелинейных эффектов для пробного поля, которые ограничивают рост k_p .

Подставляя k_p из (59) в (58), получаем

$$K''(\xi) + \frac{1}{\epsilon'_p} \left(\epsilon''_p + \frac{\kappa}{k_0} \right) (1 - K') = 0.$$

В условиях, когда k_p максимально и $K' \approx 1$, пренебрегая в последнем выражении слагаемым $\sim (1 - K')$, получаем, что условие прозрачности сводится к $K'' \approx 0$, что, как следует из соотношений (57), эквивалентно

$$A = -B\xi, \quad K' = -GB,$$

т. е. B должен быть отрицательным.

На сколько близким к единице может быть K' ? Как следует из соотношений (57), $K'(\xi)$ пропорционально Q и S . Фактор Q определяется компенсацией потерь за счет усиления, его величина ограничена флюктуациями накачки активной среды. В случае пуассоновских флюктуаций накачки

$$\frac{1}{Q_{\max}} = \frac{1}{V_{cc}} \sqrt{4\pi \beta_a \epsilon''_p V_{pc}}.$$

В качестве примера оценим Q_{\max} для полупроводниковой активной среды. Для GaAs $\beta_a \approx 2 \cdot 10^{-20}$ см³. Полагая $\chi''_p \approx 2 \cdot 10^{-2}$, $V_{cc} \approx 1$ см³, $V_{pc} \approx 10^{-3}$ см³, получаем $Q_{\max} \approx 10^{12}$. Следует отметить, что спектральная область пробного поля, участвующая в процессе перерассеяния с усилением, ограничена величиной ω/Q .

Для определения параметров, при которых возможно увеличение показателя преломления p -среды, требуется установить соотношение между S и ϵ_p , которое зависит от конкретной среды. Здесь мы рассмотрим только случай гетерогенной p -среды, состоящей из прозрачной матрицы и наночастиц, некоторые другие среды рассмотрены в [38]. В качестве прозрачной матрицы может быть использована жидкость или твердое вещество: стекло, полимер, кристалл. Возможно использование гетерогенной полупроводниковой среды типа квантовых точек [129]. В случае жидкой матрицы наночастицы двигаются в жидкости за счет диффузии, и это движение ограничивает максимально достижимый Q -фактор:

$$Q < 2\pi \frac{\bar{c}\lambda}{D}, \quad (60)$$

где \bar{c} — средняя скорость света в резонаторе; D — коэффициент диффузии наночастиц. Поскольку D обычно очень мало, ограничение (60) является малосущественным. Рэлеевское рассеяние света на квантовых точках и на-ношарах было исследовано в [130] (см. также следующий раздел), где было показано, что в области прозрачности гетерогенного материала с квантовыми точками

$$S = (\delta\alpha)^3 N_b, \quad \delta\alpha = b^3 \frac{\epsilon_b - \epsilon_m}{\epsilon_b + 2\epsilon_m}, \quad (61)$$

где b — радиус квантовой точки; ϵ_b , ϵ_m — диэлектрические функции материалов квантовой точки и матрицы соответственно; N_b — концентрация квантовых точек. Допустим, $b \approx 100$ нм, $N_b \approx 10^{14}$ см⁻³ и отношение общего объема, занятого наночастицами, к объему матрицы, свободному от наночастиц, равно 2/3, тогда $\epsilon_p \approx 0,4\epsilon_b + 0,6\epsilon_m$. Так как параметры A и B — функции трех независимых величин, существует много комбинаций, при которых гетерогенная среда становится прозрачной при высоком показателе преломления. На рис. 10 показаны зависимости параметров $A/(b^6 N_b)$ и $B/(b^6 N_b)$ от ϵ_b'' для $\epsilon_b' = 2$, $\epsilon_m = 10$. Как видно, необходимое условие $B < 0$ может быть выполнено.

Прозрачные матрицы типа оптического стекла обладают $\epsilon_m \approx 2$, а значение $\epsilon_b' \approx 10$ характерно для полупроводников [19]. Для большинства полу-

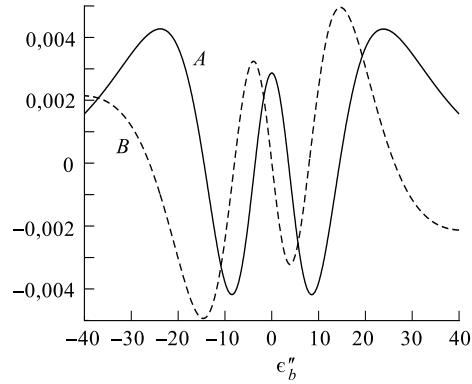


Рис. 10. Зависимость параметров $A/(b^6 N_b)$ и $B/(b^6 N_b)$ от ϵ_b'' для $\epsilon_m = 10$, $\epsilon_b' = 2$

проводников, используемых в технологии полупроводниковых лазеров, величина коэффициента поглощения на межзонном переходе близка к нескольким единицам на 10^4 см^{-1} [19], что соответствует некоторым единицам ϵ_b'' . Для $b = 10^{-5} \text{ см}$, $N_b = 10^{14} \text{ см}^{-3}$ и $Q \approx 10^{12}$ оказывается $K' = 10^{-5} \div 10^{-4}$. В случае металлических наночастиц возможно $\epsilon_p \approx 2$, $\epsilon_p'' \approx 10$, что позволяет достичь $K' \approx 0,5 \cdot 10^{-2}$, что все еще далеко от единицы.

Существенное увеличение эффективности процессов перерассеяния возможно, если вместо плоского резонатора использовать резонатор с зеркалами в виде полого цилиндра, внутри которого помещена p -среда, или сферический резонатор с зеркалами, охватывающими телесный угол $\sim 2\pi$. Плоский резонатор, рассмотренный выше, позволяет использовать в процессе перерассеяния только малую часть излучения пробного поля, рассеянного в p -среде. В случае цилиндрического резонатора количество перерассеянного излучения увеличивается в $2\pi R/\lambda$ раз, а в случае сферического — в $(2\pi R/\lambda)^2$ раз, где R — радиус цилиндрического или, соответственно, сферического образца p -среды. При $R \approx 0,1 \text{ см}$ и $\lambda = 1 \div 5 \text{ мкм}$ эффективность перерассеяния для цилиндрического резонатора возрастает в 10^4 раз по сравнению с линейным резонатором, а для сферического — гораздо выше. Оценки показывают, что сферический или даже цилиндрический резонатор позволяет, при разумных коэффициентах усиления, скомпенсировать потери в p -среде и получить в ней контролируемые высокие значения показателя преломления. Вместе с тем исследование схем со сферическим или цилиндрическим резонатором более сложное, чем с линейным резонатором, так как требуется учесть существенную неоднородность поперечного распределения излучения в резонаторах. Задача оказывается многомодовой; моды, концентрирующиеся преимущественно у поверхности зеркал, непригодны для перерассеяния, потребуется рассматривать только те моды, которые имеют максимумы в центре сферы (цилиндра).

Таким образом, анализ [38] показал принципиальную возможность создания высокого и контролируемого показателя преломления в схеме с внешним резонатором на примере сравнительно простого случая линейного резонатора и возможность практической реализации данной идеи в более сложных схемах со сферическим или цилиндрическим резонатором, исследование которых будет проводиться в ближайшее время.

5. ВЫСОКИЙ ПОКАЗАТЕЛЬ ПРЕЛОМЛЕНИЯ И ГИГАНТСКОЕ УСИЛЕНИЕ В ГЕТЕРОГЕННОЙ ОПТИЧЕСКОЙ СРЕДЕ С МЕТАЛЛИЧЕСКИМИ НАНОЧАСТИЦАМИ

Следуя [26] рассмотрим оптические свойства гетерогенной среды из металлических наночастиц (nanoшаров), помещенных в прозрачную матрицу.

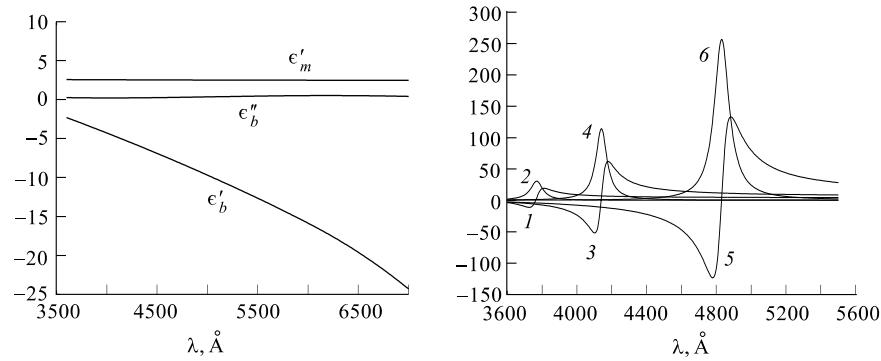


Рис. 11. Диэлектрические функции серебра и оптического стекла

Рис. 12. Действительная часть $\epsilon'_{\text{mix}}(\lambda)$ диэлектрической функции гетерогенной среды (кривые 1, 3, 5) и ее мнимая часть $\epsilon''_{\text{mix}}(\lambda)$ (кривые 2, 4, 6) для $\eta = 0, 2$ (1, 2); 0,4 (3, 4) и 0,6 (5, 6)

Предположим, что материалы наношаров и матрицы не имеют оптических резонансов в рассматриваемой области частот. Обозначим $\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)$, $\epsilon_b(\lambda)$ и $\epsilon_m(\lambda)$ — диэлектрические функции гетерогенной среды и материалов наночастиц и матрицы соответственно, η — объемная концентрация наночастиц. Тогда согласно уравнению (17) три диэлектрические функции связаны соотношением

$$\frac{\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) - 1}{\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) + 2} = \eta \frac{\epsilon_b(\lambda) - 1}{\epsilon_b(\lambda) + 2} + (1 - \eta) \frac{\epsilon_m(\lambda) - 1}{\epsilon_m(\lambda) + 2} \equiv \eta F_b(\lambda) + (1 - \eta) F_m(\lambda). \quad (62)$$

Исследуем уравнение (62) для частного случая серебряных наночастиц в прозрачном оптическом стекле. Соответствующие диэлектрические функции $\epsilon_b(\lambda) \equiv \epsilon'_b(\lambda) + \epsilon''_b(\lambda)$ и $\epsilon_m(\lambda) \equiv \epsilon'_m(\lambda)$ определены в [131, 132] (рис. 11). Диэлектрические функции $\epsilon_b(\lambda)$, рассчитанные из уравнения (62) для различных η , показаны на рис. 12. В отличие от монотонного изменения диэлектрических функций материалов наночастиц и матрицы, представленных на рис. 11, диэлектрическая функция гетерогенной среды на рис. 12 имеет ярко выраженный резонанс, в окрестности которого $\epsilon'_{\text{mix}}(\lambda)$ и $\epsilon''_{\text{mix}}(\lambda)$ существенно возрастают.

Показатель преломления $n_{\text{mix}}(\lambda) = \text{Re}[\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)]^{1/2}$ и коэффициент поглощения $\kappa_{\text{mix}}(\lambda) = \text{Im}[\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)]^{1/2}$ гетерогенной среды, определенные для различных η , показаны на рис. 13. Для $\eta = 0,4$ максимальное значение $\max[n_{\text{mix}}] \approx 10$. Справа от максимума показателя преломления его величина

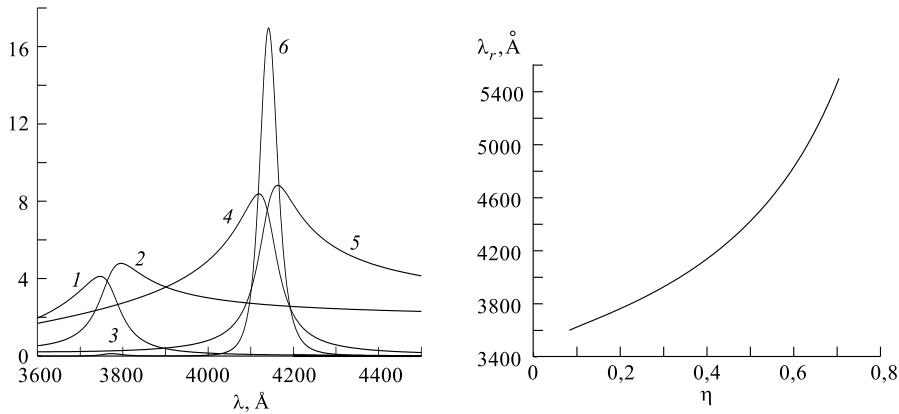


Рис. 13. Показатель преломления $n_{\text{mix}}(\lambda)$ (кривые 2, 5), коэффициент поглощения $\kappa_{\text{mix}}(\lambda)$ (1, 4) и коэффициент экстинкции рэлеевского рассеяния $h(\lambda)$ (3, 6) для $\eta = 0,2$ (кривые 1, 2, 3) и $\eta = 0,4$ (4, 5, 6)

Рис. 14. Длина волны λ_r , соответствующая резонансу в гетерогенной среде, как функция объемной концентрации наночастиц

все еще достаточно велика, $n_{\text{mix}} \sim 4 \div 6$, в то время как поглощение оказывается существенно меньше, чем вблизи резонанса. Длина волны λ_r излучения, соответствующая резонансу, определяется из условия $\epsilon'_{\text{mix}}(\lambda) = 0$, которое эквивалентно равенству

$$\eta = \eta_r(\lambda) \equiv 0,5[-P(\lambda) + \sqrt{P^2(\lambda) + Q(\lambda)}], \quad (63)$$

где

$$P(\lambda) = \frac{[\text{Re } F_b(\lambda) - F_m(\lambda)][2F_m(\lambda) - 0,5]}{[\text{Re } F_b(\lambda) - F_m(\lambda)]^2 + [\text{Im } F_b(\lambda)]^2},$$

$$Q(\lambda) = \frac{2[2F_m(\lambda) - 1][1 - F_m(\lambda)]}{[\text{Re } F_b(\lambda) - F_m(\lambda)]^2 + [\text{Im } F_b(\lambda)]^2}.$$

Для заданного η величина λ_r определяется по графику рис. 14.

Оценим коэффициент экстинкции $\eta(\lambda)$ рэлеевского рассеяния в гетерогенной среде. Согласно формуле (120.1) из [45]

$$\eta(\lambda) = \frac{(2\pi)^2}{3\lambda^3} V \langle \delta\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) \delta\epsilon_{\text{mix}}^*(\lambda) \rangle. \quad (64)$$

Здесь $\delta\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)$ — флуктуации диэлектрической функции в объеме V гетерогенной среды и $\langle \dots \rangle$ означает статистическое усреднение. Величина $\delta\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)$

определяется из уравнения (62):

$$\delta\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) = \eta \frac{\epsilon_b(\lambda) - 1}{\epsilon_b(\lambda) + 2} + (1 - \eta) \frac{\epsilon_m(\lambda) - 1}{\epsilon_m(\lambda) + 2} \equiv \eta F_b(\lambda) + (1 - \eta) F_m(\lambda), \quad (65)$$

где N_m — концентрация атомов в материале матрицы и δN_m — флуктуация концентрации атомов матрицы в объеме V . Предположим, что флуктуации $\delta\eta$ и δN_m статистически независимы, и выполним усреднение по флуктуациям. Для случая пуассоновских флуктуаций полного числа $N_{mV} = VN_m$ атомов матрицы в V имеем $\langle \delta N_{mV}^2 \rangle = N_{mV}$ и, следовательно, $\langle \delta N_m^2 \rangle = N_{mV}/V$. Принимая во внимание, что $\delta\eta = \eta V_b N_b$, где V_b — средний объем наночастицы, получаем $\delta\eta = (V_b/V)\delta N_{bV} + (1/V)\delta b_V$, где $N_{bV} \equiv N_b V$ — полное число наночастиц и $V_{bV} = N_{bV}V$ — объем, занимаемый ими в V . Предполагая пуассоновские флуктуации N_{bV} и V_{bV} , получаем $\langle \delta N_{bV}^2 \rangle = N_{bV}$ и $\langle \delta V_{bV}^2 \rangle = N_{bV}\langle \delta V_b^2 \rangle$. Для флуктуаций δV_b^2 объема наночастиц можно записать $\langle \delta V_b^2 \rangle \equiv (p-1)V_b^2 = (p-1)\eta^2/N_b^2$, где $p \geq 1$ — безразмерный параметр. Подставляя $\delta\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)$ из уравнения (65) в (64) и выполняя усреднение по флуктуациям, получаем

$$\eta(\lambda) = \frac{(2\pi)^2}{3\lambda^3} \frac{|\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) - 1|^4}{[\epsilon_m(\lambda) + 2]^2} \left\{ \frac{\eta^2 p}{N_p} \left| \frac{\epsilon_b(\lambda) - \epsilon_m(\lambda)}{\epsilon_b(\lambda) + 2} \right|^2 + \frac{(1-\eta)^2}{9N_m} [\epsilon_m(\lambda) - 1]^2 \right\}. \quad (66)$$

Зависимости $\eta(\lambda)$ показаны на рис. 13 (кривые 3, 6) для $N_b = 10^{20} \text{ см}^{-3}$ и $p = 1, 1$. Как следует из рис. 13, для $\eta = 0, 2$ рэлеевское рассеяние гораздо слабее, чем поглощение, но для $\eta = 0, 4$ максимум рэлеевского рассеяния существенно превышает максимум поглощения и кривая $\eta(\lambda)$ имеет четко выраженный резонанс. При увеличении радиуса наночастицы рэлеевское рассеяние увеличивается.

Сильное поглощение в гетерогенной среде может быть подавлено с помощью активной матрицы. Допустим, что в матрицу добавлено некоторое количество активных атомов, концентрация которых много меньше концентрации атомов матрицы, так что электромагнитное излучение может усиливаться на некоторой длине волн λ_0 . Предположим для простоты, что кривые усиления и дисперсии в матрице без наночастиц имеют лоренцевскую форму и диэлектрическая функция атомов материала матрицы остается той же, что приведена на рис. 11. Диэлектрическая функция данной трехкомпонентной среды определяется из соотношения

$$\frac{\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) - 1}{\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) + 2} = \eta \frac{\epsilon_b(\lambda) - 1}{\epsilon_b(\lambda) + 2} + (1 - \eta) \left[\frac{\epsilon_m(\lambda) - 1}{\epsilon_m(\lambda) + 2} + \frac{G}{\delta(\lambda)/\gamma + i} \right] \equiv F(\lambda), \quad (67)$$

где $\delta(\lambda) = 2\pi c(\lambda^{-1} - \lambda_0)$ — отстройка от резонанса усиления; c — скорость света в свободном пространстве; γ — ширина линии активного перехода в примесных атомах в матрице; параметр G описывает усиление.

Определим условия, при которых активная гетерогенная среда не поглощает, но обладает высокой дисперсией: $n_{\text{mix}} \gg 1$. Разрешая уравнение (67) относительно $\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)$, находим

$$\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) = \frac{1 + 2F(\lambda)}{1 - F(\lambda)}. \quad (68)$$

Из уравнения (68) следует, что $\epsilon_{\text{mix}}(\lambda)$ действительно, если $\text{Im}[F(\lambda)] = 0$. Для $\lambda = \lambda_0$ последнее условие выполняется для $G = G_{\text{tr}}$:

$$G_{\text{tr}} = \frac{\eta}{1 - \eta} \text{Im} \left[\frac{\epsilon_b(\lambda) - 1}{\epsilon_b(\lambda) + 2} \right]. \quad (69)$$

Допустим, что $G = G_{\text{tr}}$, тогда $\epsilon_{\text{mix}}(\lambda) \gg 1$, если $F(\lambda_0) \equiv \text{Re}[F(\lambda_0)] \rightarrow 1$, что имеет место, если

$$\eta \rightarrow \eta_\infty \equiv \frac{3}{[\epsilon_m(\lambda_0) + 2] \text{Re} \{ [\epsilon_b(\lambda_0) - 1]/[\epsilon_b(\lambda_0) + 2] \}}, \quad \eta < \eta_\infty. \quad (70)$$

Необходимое условие $0 < \eta_{\text{mix}} < 1$ выполняется, если $\text{Re} \{ [\epsilon_b(\lambda_0) - 1]/[\epsilon_b(\lambda_0) + 2] \} > 1$, что справедливо для любых значений $\epsilon_b(\lambda)$, представленных на рис. 11. Таким образом, гетерогенная среда оказывается полностью прозрачной для излучения определенной длины волны, если $G \approx G_{\text{tr}}$ и $\eta \approx \eta_{\text{inf}}$. На рис. 15 показаны зависимости $n_{\text{mix}}(\lambda)$ и $\kappa_{\text{mix}}(\lambda)$, определенные для $G = 1,01G_{\text{tr}}$, $1,01G_{\text{tr}} = 0,135$, $\lambda_0 = 3750 \text{ A}$, $\gamma = 10^{-13} \text{ с}^{-1}$, $\eta = 0,98\eta_\infty$ и $\eta_\infty = 0,193$. В этих условиях рэлеевским рассеянием можно пренебречь, так, уже при $\eta = 0,2$ оно пренебрежимо мало по сравнению с поглощением в пассивной гетерогенной среде (ср. кривые 1 и 3 на рис. 13). Для $\lambda = \lambda_0$ активная гетерогенная среда оказывается абсолютно прозрачной, и ее показатель преломления $n_{\text{mix}}(\lambda_0) = 10,6$ для $\eta = 0,96\eta_\infty$ и $n_{\text{mix}}(\lambda_0) = 15$ для $\eta = 0,98\eta_\infty$.

Для $G > G_{\text{tr}}$ в некоторой окрестности λ_0 в активной гетерогенной среде может возникнуть гигантское усиление резонансного электромагнитного излучения. На рис. 16 показаны зависимости $n_{\text{mix}}(\lambda)$ и $\kappa_{\text{mix}}(\lambda)$ для $\eta = 0,96\eta_\infty$, $G = 1,1G_{\text{tr}}$ при величинах остальных параметров, как для рис. 15. Усиление в окрестности резонанса сильно возрастает в сравнении с усилением в активной матрице без наночастиц. На рис. 16 максимальное значение $\epsilon''_{\text{mix}} = -989,2$, в то время как в активной матрице без наночастиц $\epsilon''_{\text{mix}} = -1,7$. Следует отметить, что существует критическая точка $\lambda = \lambda_{\text{cr}}$, определяемая из уравнения $\epsilon''_{\text{mix}}(\lambda) = 0$. В этой точке, при условии $\epsilon'_{\text{mix}}(\lambda_{\text{cr}}) < 0$, показатель преломления гетерогенной среды обращается в нуль, оптические свойства гетерогенной среды в окрестности λ_{cr} требуют специального исследования.

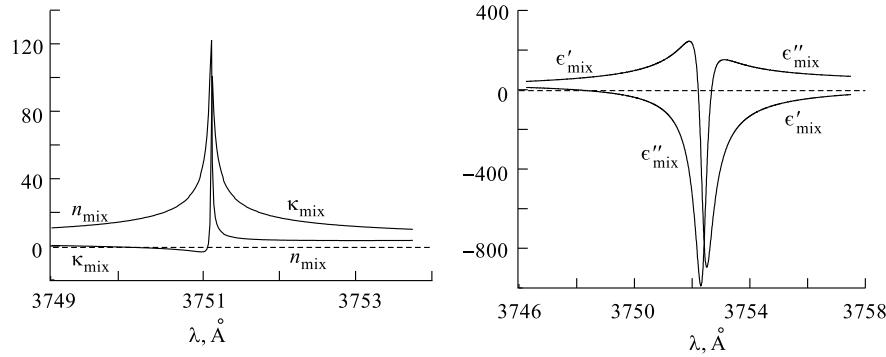


Рис. 15. Показатель преломления $n_{\text{mix}}(\lambda)$ и коэффициент поглощения $\kappa_{\text{mix}}(\lambda)$ активной гетерогенной среды; точки, где $\kappa_{\text{mix}}(\lambda) = 0$, соответствуют полной прозрачности среды

Рис. 16. Гигантское усиление в гетерогенной среде: $\epsilon''_{\text{mix}}(\lambda) < 0$ и $|\epsilon''_{\text{mix}}(\lambda)| \gg 1$

Для достижения режимов прозрачности или гигантского усиления в активной гетерогенной среде в рассмотренном примере требуется обеспечить величину параметра усиления $G \approx G_{\text{tr}} = 0,135$, что соответствует длине усиления в активной матрице без наночастиц $\approx 0,2$ мкм. Соответствующее усиление в несколько раз больше, чем максимальное усиление, достигнутое к настоящему времени в полупроводниковых лазерах. Вместе с тем оценки показывают, что требуемое усиление может быть уменьшено в несколько раз путем подбора оптимальных материалов наночастиц и матрицы при варьировании геометрической формы наночастиц, использования наночастиц из различных материалов, помещенных в одну матрицу, наночастиц-композитов (т. е. с покрытием из другого материала), упорядочивания расположения наночастиц в матрице и многими другими способами.

В заключение отметим две основные особенности гетерогенной среды, которые приводят к высокому показателю преломления и гигантскому усилению. Во-первых, влияние локального поля, которое учитывалось в рамках соотношения Клаузиуса–Моссотти (17). В работе [27] локальное поле в гетерогенной среде из серебряных наночастиц в стеклянной матрице учитывалось по формуле Максвелла–Гарнета (34), что привело к результатам, качественно аналогичным найденным в [26]. Во-вторых, требуется выполнение условия $\epsilon'_b < 0$, что имеет место для металлических наночастиц. Последнее условие может быть выполнено для наночастиц, состоящих из небольшого числа резонансных атомов или для «составной» наночастицы, состоящей из металлического наношара и резонансного атома, помещенного на малом (много-

меньше длины волны излучения) расстоянии от нее. В последнем случае наношар играет роль резонатора, повышая добротность излучателя-атома.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В обзоре основное внимание было уделено оптическим свойствам гетерогенных и резонансных атомарных сред в условиях, когда поляризация среды, наведенная электромагнитным полем, линейно зависит от амплитуды последнего. Линейные свойства полностью описываются показателем преломления n и коэффициентом поглощения κ сред, и задача, таким образом, сводится к контролю за n и κ .

Оценки показывают, что большие показатели преломления вряд ли могут быть реализованы в средах конечноуровневых атомов. Проанализирована возможность получения высокого и контролируемого показателя преломления в среде трехуровневых А-атомов и показано, что серьезным препятствием является самоширение. Предложена оценка самоширения как рассеяния на флуктуациях плотности резонансных атомов. Таким образом, основной проблемой является создание среды из частиц, линейная поляризуемость которых существенно больше, чем линейная поляризуемость резонансных двух- или несколькоуровневых атомов. В таких средах возможны большие и контролируемые величины n и κ .

Одной из подходящих сред оказывается гетерогенная среда из прозрачной матрицы и помещенных в нее металлических наночастиц, размеры которых много меньше длины волны электромагнитного излучения. Движение свободных электронов в наночастице ограничено ее размерами, поэтому ширина плазмонного резонанса зависит от размеров частицы. Поскольку наночастица содержит большое число свободных электронов, ее поляризуемость вблизи плазмонного резонанса может оказаться выше, чем у отдельного резонансного атома. Помимо металлических наночастиц возможно использование других, например полупроводниковых, наночастиц с шириной запрещенной зоны вблизи частоты приложенного поля. Поглощение в гетерогенных средах может быть скомпенсировано за счет добавления туда активных атомов. По оценкам для полной компенсации поглощения требуется усиление порядка максимально достижимого в настоящее время в полупроводниковых лазерных средах. Требуемые коэффициенты усиления могут быть уменьшены при оптимальном выборе материала наночастиц и матрицы. Существует область параметров, при которых рэлеевским рассеянием в гетерогенных средах можно пренебречь, но показатель преломления и коэффициент поглощения оказываются весьма большими.

Большое значение для появления особых оптических свойств гетерогенных сред имеет эффект локального поля. Приведена библиография работ,

посвященных его исследованию, обсуждалась физическая сущность явления и различные его теоретические модели, локальное поле в различных средах, в том числе кластерных и средах с фрактальной структурой, тонких пленках и средах резонансных двухуровневых атомов, нелинейно-оптические и другие явления в присутствии локального поля, влияние локального поля на работу оптических устройств. Проанализирована система с контролируемым аналогом локального поля, включающая внешний резонатор с усиливающей средой и использующая рэлеевское рассеяние.

Ряд явлений, связанных с локальным полем и оставшихся за рамками настоящего обзора, требуют специального обсуждения, например, нелинейные эффекты. Нелинейные восприимчивости композитных сред могут увеличиваться на много порядков за счет локального поля, что можно использовать для различных приложений, например, для контроля дисперсии в оптических волноводах и повышения пропускающей способности оптических линий связи. Интересными оптическими свойствами могут обладать гетерогенные среды с упорядоченным расположением наночастиц.

Отдельного обзора заслуживают квантово-оптические свойства гетерогенных сред и квантовые эффекты, связанные с локальным полем. Диполь-дипольное взаимодействие между атомами, лежащее в основе эффекта локального поля, чрезвычайно важно для создания логических элементов квантового компьютера. Возможно, что особенно интересным окажется использование высоковозбужденных ридберговских состояний атомов, диполь-дипольное взаимодействие между которыми очень велико (~ 100 МГц), в то время как ширина линии из-за спонтанного излучения значительно меньше (~ 10 кГц). Это позволит создать элементарную квантовую логическую ячейку (типа управляемого «CNOT») из двух или нескольких атомов, находящихся в дипольных оптических ловушках на расстоянии $\sim 3\text{--}6$ мкм с быстродействием ~ 10 мкс. Возможно, что одной из схем организации квантового компьютера станет квантовая гетерогенная среда из упорядоченных «капель» из нескольких атомов, находящихся в состоянии бозе-конденсата, когда флуктуации плотности атомов практически равны нулю. Взаимодействие между атомами будет осуществляться через локальное поле, которое будет «включаться» при возбуждении атомов в ридберговские состояния внешним импульсом электромагнитного излучения типа 2π -импульса. Процесс квантовых вычислений можно представить следующим образом. Сначала исходная информация записывается тем или иным способом в нижние долгоживущие состояния (например, состояния сверхтонкой структуры) атомов. Затем внешнее поле возбуждает атомы в ридберговские состояния, и взаимодействие между этими состояниями через локальное поле осуществляет логические операции квантовых вычислений. Наконец, атомы тем же импульсом поля возвращаются обратно в новые нижние долгоживущие состояния, из которых считывается результат квантовых вычислений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Moerner W. E. Optical Spectroscopy of Individual Molecules Trapped in Solids / Ed. by American Institute of Physics. 1995; Moerner W. E. // Science. 1994. V.265. P.46.
2. Gruska J. Quantum Computing. London: McGraw-Hill, 1999;
Steane A. M. // Rep. Prog. Phys. 1998. V.61. P.117.
3. Braginsky V. B., Khalili F. Y. Quantum Measurement. Cambridge, 1992;
Poizat J.-Ph., Roch J.-F., Grangier P. // Ann. Phys. Fr. 1994. V.19. P.265.
4. Protsenko I. E., Lugiato L. A., Fabre C. Spectral Analysis of the Degenerate Optical Parametric Oscillator as Noiseless Amplifier // Phys. Rev. A. 1994. V.50. P.1627–1645;
Protsenko I. E., Lugiato L. A. Noiseless Amplification in the Optical Transistor // Optics Commun. 1994. V.109. P.304–311.
5. Peres A. Quantum Theory: Concepts and Methods. Dordrecht: Kluwer Academic Press, 1993.
6. Аллен Л., Эберли Дж. Оптический резонанс и двухуровневые атомы. М., 1978. С.113;
McCall S., Hahn E. L. // Phys. Rev. Lett. 1967. V.18. P.908; Phys. Rev. 1969. V.183. P.457.
7. Яриев А. Квантовая электроника и нелинейная оптика. М., 1973. С.367.
8. Lorentz H. A. // Wiedem. Ann. 1880. V.9. P.641; Lorenz L. // Wiedem. Ann. 1881. V.11. P.70.
9. Bottcher C. J. Theory of Electric Polarization. Amsterdam: Elsevier, 1973.
10. Maxwell-Garnett J. C. // Philos. Trans. R. Soc. 1904. V.203. P.385; Maxwell-Garnett J. C. // Philos. Trans. R. Soc. 1906. V.205. P.327.
11. Физическая энциклопедия. М., 1990. Т.2. С.373.
12. Field M. S., Javan A. // Phys. Rev. 1969. V.10. P.521.
13. Bednar C. J. et al. Atomic Coherence and Doppler Broadening Effects in: Laser Induced Line Narrowing, EIT and Ultra Slow Group Velocity Experiments // Proc. of Symposium «Quantum Electronics and Physics for the 21st Century», New-York, May 12–20, 1999.
14. Scully M. O. // Phys. Rev. Lett. 1991. V.67. P.1855.
15. Scully M. O., Zubairy M. S. Quantum Optics. Cambridge, 1997.
16. Scully M. O., Zhu S.-Y. // Optics Commun. 1992. V.87. P.134; Fleischhauer M. et al. // Phys. Rev. A. 1992. V.46. P.1468; Harris S. E., Field J. E., Kasapi A. // Phys. Rev. A. 1992. V.R29. P.46; Scully M. O., Zubairy M. S. Quantum Optics. Cambridge, 1997.
17. Zibrov A. S. et al. // Phys. Rev. Lett. 1996. V.76. P.3935.
18. Arimondo E. // Progress in Optics. 1996. V.35. P.257.
19. Физическая энциклопедия. М., 1994. Т.4. С.51; Gallium Arsenide, Fabrication and Properties / Ed. by F.D. Kesamanly et al. М.: Nauka, 1973.
20. Javan A. // Phys. Rev. 1956. V.107. P.1579; Popov T., Popov A., Rautian S. // JETP Lett. 1970. V.30. P.466.
21. Björk G., Karlsson A., Yamamoto Y. // Phys. Rev. A. 1994. V.50. P.1675; Lugiato L. A., Protsenko I. E., Travagnin M. Semiconductor Laser without Inversion // Submitted to «Phys. Rev. A». 2001.
22. Гиббс Х. Оптическая бистабильность. Управление светом с помощью света. М.: Мир, 1988.
23. Смирнов Б. М. Кластерная плазма // УФН. 2000. Т.170. С.495–534.
24. Займидорога О. А., Проценко И. Е., Самойлов В. Н. Суперкогерентные кластерные среды // Направлено в «Laser Physics». 2001.

25. Schmidt O. et al. // Phys. Rev. A. 1996. V.53, P.R27; Шмидт О. и др. // Наука и жизнь. 2000. №2. С.42.
26. Ораевский А. Н., Проценко И. Е. Высокий показатель преломления и другие оптические свойства гетерогенных сред // Письма в ЖЭТФ. 2000. Т.72. С.641–646.
27. Ораевский А. Н., Проценко И. Е. // Квантовая электроника. 2001. Март.
28. Cao V. et al. // Phys. Rev. Lett. 1999. V.82. P.2278.
29. Convertino A. et al. Organic Multilayers as Distributed Bragg Reflectors // Appl. Phys. Lett. 1999. V.75. P.322; Infrared Distributed Bragg Reflections Based on Amorphous SiC/SiO₂ Heterosystem // Appl. Phys. Lett. 1997. V.70, No.21. P.2799; ibid. 1997. V.71, No.6. P.732.
30. Михель К. Основы теории микроскопа: Пер. с нем. М., 1955; Физическая энциклопедия. М., 1992. Т.3. С.141.
31. Michael M. et al. Ultraslow Group Velocity and Enhanced Nonlinear Optical Effects in a Coherently Driven Hot Atomic Gas // Phys. Rev. Lett. 1999. V.82. P.5229–5232.
32. Ben-Aryeh Y., Bowden C. M., Englund J. C. // Phys. Rev. A. 1986. V.34. P.3917.
33. Benedict M. G. et al. // Phys. Rev. A. 1991. V.43. P.3845.
34. Persson C., Lindefelt U., Sernelius B. E. Band Gap Narrowing in *n*-Type and *p*-Type 3C-, 2H-, 4H-, 6H-SiC, and Si // J. of Appl. Phys. 1999. V.86. P.4419–4427.
35. Dowling J. P., Bowden C. M. // Phys. Rev. Lett. 1993. V.70. P.1421.
36. Leegwater J. A., Mukamel S. // Phys. Rev. A. 1994. V.49. P.146.
37. Sautenkov V. A. et al. // Phys. Rev. Lett. 1996. V.77. P.3327.
38. Ораевский А. Н., Проценко И. Е. // Квантовая электроника. 2000. Т.30. С.809–814; Ораевский А. Н., Protsenko I. E., Botero A. On the Problem of Increasing and Controlling Refractive Index by Amplification of Scattered Light // Laser Physics. 2000. V.10. P.1–8.
39. Nie S., Emory S. R. // Science. 1997. V.275. P.1102; Зуев В. С., Францессон А. В. Интенсификация локального поля вблизи наностерженьков и наноострий // Будет опубликовано. 2001; Hamman H. F., Gallagher A., Nesbitt D. J. // Appl. Phys. Lett. 2000. V.76. P.1953; Mohamed M. B. et al. // Chem. Phys. Lett. 2000. V.317. P.517.
40. Веселаго О. В. // УФН. 1967. Т.52. С.517.
41. Smith D. R. et al. Composite Medium with Simultaneously Negative Permeability and Permittivity // Phys. Rev. Lett. 2000. V.84. P.4184–4187.
42. Yablonovitch E., Leung K. M. // Physica B. 1991. V.175. P.81.
43. Dowling J. P., Bowden C. M. Anomalous Index of Refraction in Photonic Bandgap Materials // J. of Mod. Opt. 1994. V.41. P.345.
44. Taylor J. R. et al. Optical Solitons Theory and Experiment // Optical Engineering. 1996. V.35. P.2437–2439.
45. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982.
46. Whitley R. M., Stroud C. R., Jr. // Phys. Rev. A. 1976. V.14. P.1498.
47. Harris S. E., Field J. E., Iamamoğlu A. // Phys. Rev. Lett. 1990. V.64. P.1107; Boller K.-J., Iamamoğlu A., Harris S. E. // Phys. Rev. Lett. 1991. V.66. P.2593.
48. Halperin W. P. Quantum Size Effects in Metal Particles // Rev. Mod. Phys. 1986. V.58. P.533–606.
49. Protsenko I. E. Local Field and Self-Broadening // 29th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, Snowbird, Utah, USA, Jan. 3–6, 1999.

50. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Теория поля. М., 1982. С.253.
51. *Casimir H. B., Polder D.* // Phys. Rev. 1948. V.73. P.360.
52. *Protsenko I. E., Samoilov V. N., Zaimidoroga O. A.* Second-Order Dispersion Forces. I. Equations of Motion // J. of Russian Laser Research. 2001. V.22. P.23–36.
53. *Brevik I., Marachevsky V. N., Milton K. A.* // Phys. Rev. Lett. 1999. V.82. P.3948.
54. *Lifshitz E. M.* // Sov. Phys. JETP. 1956. V.2. P.17.
55. *Sautenkov V. A., Gamidov R. G., Weis A.* Observation of Narrow Resonances Inside Homogeneously Self-Broadened Lines in Pump-Probe Reflection Experiments // Phys. Rev. A. 1997. V.55. P.3137–3142.
56. *Lord Rayleigh* // Philos. Mag. 1915. V.29. P.274.
57. *Boussin C. et al.* // J. Quant. Spectr. Radiat. 1998. V.60. P.501; *Boussin C. et al.* // J. Mol. Spectr. 1998. V.191. P.381; *Devi V. M. et al.* // J. Quant. Spectr. Radiat. 1998. V.60. P.815.
58. *Maki J. J. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1991. V.67. P.972; *Sautenkov V. A. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1996. V.77. P.3327.
59. *Baldacchini G. et al.* // J. Chem. Phys. 1982. V.76. P.5271; *Mandini J. Y. et al.* // Can. J. Phys. 1982. V.60. P.94; *Walsh C. A. et al.* // Phys. Lett. 1986. V.134. P.268; *Cattani M.* // J. Quant. Spectr. Radiat. 1989. V.42. P.83; *Spano F. C., Warren W. S.* // J. Chem. Phys. 1989. V.90. P.6034; *Leegwater J. A., Fried L., Mukamel S.* // Z. Phys. D. 1993. V.26. P.126.
60. *Guo J. et al.* // Optics Commun. 1994. V.110. P.732.
61. *Shalaev V. M., Poliakov E. Y., Markel V. A.* Small-Particle Composites. II. Nonlinear Optical Properties // Phys. Rev. B. 1996. V.53. P.2437–2449.
62. *Butenko A. V., Shalaev V. M., Stockman M. I.* Giant Impurity Nonlinearities in Optics of Fractal Clusters // Sov. Phys. JETP. 1988. V.67. P.60–69.
63. *Kim W. et al.* Fractals in Microcavities: Giant Coupled, Multiplicative Enhancement of Optical Responses // Phys. Rev. Lett. 1999. V.82. P.4811–4814.
64. *Markel V. A., Muratov L. S., Stockman M. I.* Optical Properties of Fractals: Theory and Numerical Simulation // Sov. Phys. JETP. 1990. V.71. P.455–464.
65. *Stockman M. I. et al.* Giant Fluctuations of Local Optical Fields in Fractal Clusters // Phys. Rev. Lett. 1994. V.72. P.2486–2489.
66. *Cruz L., Fonseca L. F., Gomez M.* T-Matrix Approach for the Calculation of Local Fields in the Neighborhood of Small Clusters in the Electrodynamic Regime // Phys. Rev. B. 1989. V.40. P.7491–7500.
67. *Lozovskii V. Z.* Local Field Equations in Electrodynamics of Systems of Small Particles // Opt. and Spectr. 1999. V.86. P.96–101.
68. *Messinger B. J. et al.* Local Fields at the Surface of Noble-Metal Microspheres // Phys. Rev. B. 1981. V.24. P.649–657.
69. *David D. et al.* Cancellation of Photoinduced Absorption in Metal Nanoparticle Composites Through a Counterintuitive Consequence of Local Field Effects // JOSA B. 1997. V.14. P.1625–1631.
70. *Yu K. W., Hui P. M., Stroud D.* Effective Dielectric Response of Nonlinear Composites // Phys. Rev. B. 1993. V.47. P.14150–14156.
71. *Stockman M. I.* Femtosecond Optical Responses of Disordered Clusters, Composites, and Rough Surfaces: «The Ninth Wave» Effect // Phys. Rev. Lett. 2000. V.84. P.1011–1014.

72. Stockman M. I., Kurlayev K. B. Linear and Nonlinear Optical Susceptibilities of Maxwell-Garnett Composites: Dipolar Spectral Theory // Phys. Rev. B. 1999. V.60. P.17071–17083.
73. Kovalev A. S., Popov A. M., Pyatigorskaya O. B. Influence of the Local Field on Initiation of Optical Breakdown in Metal Microstructures // Sov. Phys. — Techn. Phys. 1983. V.28, Issue 5. P.603.
74. Cheng H., Torquato S. Electric-Field Fluctuations in Random Dielectric Composites // Phys. Rev. B. 1997. V.56. P.8060–8068.
75. Neuendorf R., Quinten M., Kreibig U. Optical Bistability of Small Heterogeneous Clusters // J. of Chem. Phys. 1996. V.104. P.6348–6354.
76. Li X. et al. Long-Range, Collision-Induced Hyperpolarizabilities of Atoms or Centrosymmetric Linear Molecules: Theory and Numerical Results for Pairs Containing H or He // J. of Chem. Phys. 1996. V.105. P.10954–10968.
77. Kuditcher A. et al. Intrinsic Bistability of Luminescence and Stimulated Emission in Yb- and Tm-Doped Glass // Phys. Rev. Lett. 2000. V.84. P.1898–1901.
78. Louie S. G., Chelikowsky J. R., Cohen M. L. Local-Field Effects in the Optical Spectrum of Silicon // Phys. Rev. Lett. 1975. V.34. P.155–158.
79. Knapp C. et al. Atoms in Fullerene Traps as Probes for Local Fields // AIP Conf. Proc. 1999. V.486. P.101–105.
80. Goldner R. et al. Polarizabilities and Local Field Estimates for Ten Oxides from Refractive-Index Measurements on Doped Films // Appl. Opt. 1981. V.20. P.2275–2279.
81. Maki J. J. et al. Linear and Nonlinear Optical Measurements of the Lorentz Local Field // Phys. Rev. Lett. 1991. V.67. P.972–975.
82. Rikken G. L. J. A., Kessener Y. A. R. R. Local Field Effects and Electric and Magnetic Dipole Transitions in Dielectrics // Phys. Rev. Lett. 1995. V.74. P.880–883.
83. Agarwal G. S. Electromagnetic Scattering, Local Field Enhancements, and Long-Range Surface Plasmons in Layered Structures with Roughness // Phys. Rev. B. 1985. V.31. P.3534–3539.
84. Zaitsev A. I., Ryzhov I. V. Inversionless Superradiance of a Thin Layer of Three-Level Atoms: Coherent Raman Transition between Sublevels of the Lower Doublet // Opt. and Spectr. 2000. V.89. P.601–611.
85. Zaitsev A. I. et al. Inversionless Superradiance of a Thin Layer of Three-Level Atoms: Effect of the Local Field // Opt. and Spectr. 1999. V.87. P.755–763.
86. Zaitsev A. I. et al. Inversionless Superradiance in a Thin Layer of Three-Level Atoms: Inducing the Coherence by a Low-Frequency External Field // Opt. and Spectr. 1999. V.87. P.956–962.
87. Manka A. S., Dowling J. P., Bowden C. M. Piezophotonic Switching due to Local Field Effects in a Coherently Prepared Medium of Three-Level Atoms // Phys. Rev. Lett. 1994. V.73. P.1789–1792.
88. Wang N., Chernyak V., Mukamel S. Cooperative Ultrafast Nonlinear Optical Response of Molecular Nanostructures // J. of Chem. Phys. 1994. V.100. P.2465–2480.
89. Malyshev V. A., Cenejero E. Optical Switching and Self-Oscillations in a Reflection Caused by a Local Field // Opt. and Spectr. 1997. V.82. P.582–586.
90. Barnett S. M., Huttner B., Loudon R. Spontaneous Emission in Absorbing Dielectric Media // Phys. Rev. Lett. 1992. V.68. P.3698–3701.
91. Juzelinas G. Spontaneous Emission in Absorbing Dielectrics: A Microscopic Approach // Phys. Rev. A. 1997. V.55. P.R4015–R4018.

-
92. Crenshaw M. E., Bowden C. M. Effects of Local Fields on Spontaneous Emission in Dielectric Media // Phys. Rev. Lett. 2000. V.85. P.1851–1854.
 93. Crenshaw M. E., Bowden C. M. Lorentz Local-Field Effects on Spontaneous Emission in Dielectric Media // Phys. Rev. A. 2001. V.63. P.13801.
 94. Jyotsna I. V., Agarwal G. S. Dynamics of Coherent Population Trapping States in Dense Systems // Phys. Rev. A. 1996. V.53. P.1690–1696.
 95. Sanchez F., Brunel M., Martel G. Local Field Correction to the Second Laser Threshold // Phys. Rev. A. 2000. V.61. P.3817.
 96. Arkhipkin V. G., Popov A. K., Aleksandrovski A. S. Laser Bleaching Modified by a Local Field // JETP Lett. 1994. V.59. P.398–402.
 97. Jhonsson L., Levine Z. H., Wilkins J. W. Large Local-Field Corrections in Optical Rotatory Power of Quartz and Selenium // Phys. Rev. Lett. 1996. V.76. P.1372–1375.
 98. Blok V. R. The Role of the Local Field of Absorbing Particles in the Anomalous Increase in the Raman-Scattering Cross Section of Adsorbed Molecules // Sov. Phys. Doklady. 1981. V.26. P.1143–1144.
 99. Briggs J., Schwartz L. Electromagnetic Wave Propagation in an Inhomogeneous Medium: A Perturbative Approach // Phys. Rev. A. 1977. V.16. P.1199–1208.
 100. Burnham A. K., Alms G. R., Flygare W. H. The Local Electric Field. I. The Effect on Isotropic and Anisotropic Rayleigh Scattering // J. of Chem. Phys. V.62. 1975. P.3289–3297.
 101. Shaganov I. I. Manifestation of Local Field Effects in the Properties of Optical Materials and Coatings // Sov. J. of Opt. Techn. 1992. V.59. P.1–11.
 102. Schnatterly S. E., Tarrio C. Local Fields in Solids: Microscopic Aspects for Dielectrics // Rev. of Mod. Phys. 1992. V.64. P.619–622.
 103. Vugmester B. E., Stefanovich V. A. On the Thermodynamics of Disordered Dipole Systems // Sov. Phys. JETP. 1990. V.70. P.1053–1060.
 104. Kobelev V. P., Selin Yu. I., Shaimardanov A. M. Application of Superposition Principle to Fields in Dielectric Medium // Sov. Phys. Techn. Phys. 1981. V.26. P.1432–1433.
 105. Briggs J. Effective Electric Field in an Inhomogeneous Medium // Phys. Rev. A. 1978. V.18. P.1577–1590.
 106. Barrera R. G., Mello P. A. Statistical Interpretation of the Local Field Inside Dielectrics // Amer. J. of Phys. 1982. V.50. P.165–169.
 107. Chen Z., Sheng P. Local Fields in Random Dielectrics: Distribution Characteristics and the Effects of Microstructure // Phys. Rev. B. 1991. V.43. P.5735–5746.
 108. Sheng P., Chen Z. Local Field Distribution in Random Dielectric Media // Phys. Rev. Lett. 1988. V.60. P.227–230.
 109. Barth M., Orland H. Local Field Probability Distribution in Random Media // Phys. Rev. E. 1997. V.56. P.2835–2840.
 110. Inoue M. Enhancement of Local Field by a Two-Dimensional Array of Dielectric Spheres Placed on a Substrate // Phys. Rev. B. 1987. V.36. P.2852–2862.
 111. Ghiner A. V., Surdutovich G. I. Discreteness and Local Fields in Weakly Rarefied Media // Phys. Rev. E. 1997. V.56. P.6123–6141.
 112. Keller O., Liu A. Local-Field Calculation of the Optical Diamagnetic Response of a Metallic Quantum Well // Phys. Rev. B. 1994. V.49. P.2072–2085.
 113. Schnatterly E., Tarrio C. Local Fields in Solids: Microscopic Aspects for Dielectrics // Rev. Mod. Phys. 1992. V.64. P.619.

114. *Kuklinski J. R., Mukamel S.* Generalized Semiconductor Bloch Equations: Local Fields and Transient Gratings // Phys. Rev. B. 1991. V.44. P.11253.
115. *Gavrilenko V. I., Bechstedt F.* Optical Functions of Semiconductors Beyond Density-Functional Theory and Random-Phase Approximation // Phys. Rev. B. 1997. V.55. P.4343–4352.
116. *Wang J. C.* Local Fields Near a Point-Charge Defect in Cubic Ionic Crystals // Phys. Rev. B. 1980. V.22. P.2725.
117. *Claro F.* Local Fields in Ionic Crystals // Phys. Rev. B. 1982. V.25. P.2483–2489.
118. *Lines M. E.* Local Field Effects in Ionic Conductors // Phys. Rev. B. 1979. V.19. P.1183.
119. *Gefman I. N. et al.* Local Electric Field in Crystals // Sov. Phys. JETP. 1978. V.47. P.84–88.
120. *Vavrukh M. V.* Generalization of the Local Field Concept in the Theory of Fermi Liquids // Low Temp. Phys. 1996. V.22. P.767–775.
121. *Bardakci K.* Local Field Theory for Solitons II // Phys. Rev. D. 1979. V.19. P.2357.
122. *Wallace S. J. et al.* Multiple Scattering Theory and Local Field Effects // Phys. Rev. C. 1981. V.24. P.799–801.
123. *Sabirov R. Kh.* Theory of the Exchange Narrowing of the Magnetic Resonance Line // Sov. Phys. Sol. St. 1976. V.18. P.1880–1882.
124. *Nigmatullin R. R., Sabirov R. Kh.* Shift and Width of a Resonance Line at Low Temperatures // Sov. Phys. Sol. St. 1977. V.19. P.928–930.
125. *Zauska-Kotur M. A.* Interacting Small-Particle Systems: Modified Local-Mean-Field Model // Phys. Rev. B. 1996. V.54. P.1064–1071.
126. *Gorobchenko V. D.* New Approach to the Theory of the Dielectric Constant of a System of Interacting Electrons // Sov. Phys. JETP. 1979. V.50. P.603–607.
127. *Hong J., Park J., Howard Lee M.* Dynamic Local Field, Sum Rules, and Dynamic Structure Factor of a Classical Plasma with a Logarithmic Potential in Two Dimensions at $n = 2$ // Phys. Rev. B. 1989. V.40. P.1528–1537.
128. *Tao Z. C., Kalman G.* Dynamical Mean-Field Theory for Coulomb Systems: A Novel Approach // Phys. Rev. A. 1991. V.43. P.973–975.
129. *Bimberg D. et al.* // IEEE J. Selected Topics in Quantum Electron. 1997. V.3. P.196.
130. *Богатов А. П., Бурмистров И. С.* // Квантовая электроника. 1999. Т.27. С.223.
131. *Boyd G. T. et al.* // Phys. Rev. B. 1984. V.30. P.519.
132. *Григорьев И. С., Мелихова Е. З.* Справочник физических величин. М., 1991. С.767.