УДК 539.194

СВЯЗЬ ТЕНЗОРОВ МИКРО- И МАКРОПОЛЯРИЗУЕМОСТИ НЕЛИНЕЙНЫХ АНИЗОТРОПНЫХ ДИСПЕРСИОННЫХ СРЕД

О. Г. Боков и *Л. Ш. Шехтер*

Метод сторонних токов и квантовые функции Грина электромагнитного поля используются для отыскания связи между тензорами линейной и нелинейной поляризуемости молекул и тензорами соответствующих поляризуемостей анизотропных сред с пространственной и временной дисперсией.

Введение

Экспериментальное изучение поляризационных свойств молекул основывается на измерении величин, характеризующих поляризуемость среды в целом, и учете межмолекулярных взаимодействий (ММВ). Классическим примером связи между поляризуемостью молекул α и диэлектрической проницаемостью ε среды является известная формула Клаузиуса—Мосотти

$$\frac{4}{3}\pi N\alpha = \frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2}, \tag{1}$$

где N — концентрация молекул.

Соотношение (1) выполняется для изотропных сред, находящихся в постоянном электрическом поле, и в приближении малости ориентационной поляризации молекул среды. Возможная анизотропия и пространственно-временная дисперсия среды должны усложнить соотношение (1). Отыскание подобных соотношений связи тензоров микро- и макрополяризуемостей является важной задачей микроскопической теории нелинейных сред, особенно в связи с развитием лазерной техники. Световая волна высокой интенсивности вызывает нелинейную поляризацию среды, которая определяется в конечном счете нелинейной поляризуемостью молекул и ММВ. Весьма удобным методом получения соотношений связи тензоров микро- и макрополяризуемости оказывается метод сторонних токов, развитый Дзялошинским и Питаевским [1] для линейной поляризации среды и обобщенный в работах [2-4] на нелинейные случаи.

Характерной чертой метода сторонних токов является использование квантовых функций Грина электромагнитного поля. Через функции Грина удается выразить тензоры линейной и нелинейной поляризуемости диэлектрических сред, причем учет анизотропии и пространственно-временной дисперсии среды производится автоматически.

С другой стороны, как показано в работе авторов и Юдовича [5], учет влияния ММВ на поляризационные свойства среды позволяет выразить через те же функции Грина тензоры линейной и нелинейной поляризуемости молекул. Таким образом, как будет показано в настоящей работе, метод сторонних токов позволяет связать между собой тензоры поляризуемостей среды и молекул.

В п. 1 будет получено обобщение формулы Клаузиуса—Мосотти на случай анизотропных дисперсионных сред, а в п. 2 мы рассмотрим связь тензоров нелинейной поляризуемости молекул и среды.

1. Тензоры линейной поляризуемости

В работе [5] методом сторонних токов и с учетом влияния межмолекулярных взаимодействий на поляризационные свойства среды типа плотных газов и кубических кристаллов была найдена связь между тензором α_{ij} линейной поляризуемости молекул среды и запаздывающими функциями Грина D^R_{ij} электромагнитного поля в среде

$$\Gamma_{ij}(\mathbf{k},\ \omega)\, A^{-1}_{jl}(\mathbf{k},\ \omega) = -\frac{(2\pi)^3}{2} D^R_{il}(\mathbf{k},\ \omega). \tag{2}$$

Здесь

$$\Gamma_{ij}(\mathbf{k},\ \omega) = \delta_{ij} - \frac{4}{3}\pi N \alpha_{ij}(\mathbf{k},\ \omega), \tag{3}$$

$$A_{ij}(\mathbf{k},\ \omega) = \left(k^2 - \frac{\omega^2}{c^2}\right)\delta_{ij} - k_i k_j - \frac{4}{3}\pi N\left[\left(k^2 + 2\frac{\omega^2}{c^2}\right)\delta_{im} - k_i k_m\right]\alpha_{mj}(\mathbf{k},\ \omega), \tag{4}$$

$\mathbf{k}$, ω — импульс и частота волны в среде.

С другой стороны, метод сторонних токов позволяет выразить функцию Грина D^R_{ij} через диэлектрическую проницаемость среды $\varepsilon_{ij}(\mathbf{k},\ \omega)$ [1]

$$D^R_{ij}(\mathbf{k},\ \omega) = -\frac{2}{(2\pi)^3}\Delta^{-1}_{ij}(\mathbf{k},\ \omega), \tag{5}$$

где

$$\Delta_{ij}(\mathbf{k},\ \omega) = k^2\delta_{ij} - k_i k_j - \frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon_{ij}(\mathbf{k},\ \omega). \tag{6}$$

Сравнивая выражения (2) и (5), мы получим в матричном виде общее соотношение связи между тензорами α_{ij} и ε_{ij}

$$\Gamma_{ij}(\mathbf{k},\ \omega)\, A^{-1}_{jl}(\mathbf{k},\ \omega) = \Delta^{-1}_{il}(\mathbf{k},\ \omega). \tag{7}$$

Выражение (7) есть, очевидно, обобщение формулы Клаузиуса—Мосотти (1) на случай произвольной анизотропной диэлектрической среды с пространственно-временной дисперсией. Наличие в (7) импульса k и частоты ω волны не позволяет выразить тензор α_{ij} поляризуемости молекул через диэлектрическую проницаемость среды ε_{ij} в виде дробно-линейного соотношения, как это сделано в (1). Однако используя выражения (3), (4), (6) и оставляя только члены второго порядка малости по α_{ij}, из соотношения (7) нетрудно получить выражение тензора ε_{ij} в виде разложения по степеням α_{ij}

$$\varepsilon_{ij}(\mathbf{k},\ \omega) = \delta_{ij} + 4\pi N\alpha_{ij}(\mathbf{k},\ \omega) + \frac{(4\pi N)^2}{3}\alpha_{il}(\mathbf{k},\ \omega)\,\alpha_{lj}(\mathbf{k},\ \omega). \tag{8}$$

Это выражение является аналогом формулы Клаузиуса—Мосотти, разложенной в ряд по степеням α с точностью до членов второго порядка.

2. Тензоры нелинейной поляризуемости

Нелинейная поляризация среды интенсивной световой волной в низшем порядке теории возмущений описывается тензором ε_{ijk} поляризуемости среды третьего ранга. Одновременно световая волна вызывает нелинейную поляризацию отдельных молекул, которая описывается тензором α_{ijk}. Оба этих тензора, как показано в работах [2-5], могут быть выражены методом сторонних токов через трехвременные запаздывающие функции Грина электромагнитного поля в среде D^R_{ijk}. Таким образом, и в нелинейном случае, исключая функции Грина, мы можем получить соотношения связи между тензорами α_{ijk} и ε_{ijk}.

Согласно результатам работы [5], имеем

$$\varepsilon_{ij_1j_2}(k_1,\ k_2) = \frac{3i\,(2\pi)^5}{8N}\,\frac{c\,(\omega_1+\omega_2)}{\omega_1\omega_2}\,T^{-1}_{im}(k_1+k_2)\,D^R_{ml_1l_2}(k_1,\ k_2)\,A_{l_1j_1}(k_1)\,A_{l_2j_2}(k_2). \tag{9}$$

Здесь $k_{1,2}$ означают $(\mathbf{k}_{1,2};\ \omega_{1,2})$; матрицы $A_{ij}(k)$ определены в (4), а матрица T_{ij} имеет следующий вид:

$$T_{ij}(\mathbf{k},\ \omega)=\delta_{ij}-\Gamma_{im}(\mathbf{k},\ \omega)\,A^{-1}_{mr}(\mathbf{k},\ \omega)\,\Omega_{rj}(\mathbf{k},\ \omega), \tag{10}$$

где

$$\Omega_{ij}(\mathbf{k},\ \omega)=\left(k^2+2\frac{\omega^2}{c^2}\right)\delta_{ij}-k_ik_j, \tag{11}$$

а матрица $\Gamma_{ij}(\mathbf{k},\ \omega)$ определена в (3).

Трехвременная запаздывающая функция Грина $D^R_{ml_1l_2}$ в обозначениях работы [4] имеет вид

$$D^R_{ml_1l_2}(k_1,\ k_2)=\left(\frac{2}{ic\,(2\pi)^3}\right)^2\frac{\omega_1\omega_2\,(\omega_1+\omega_2)}{ic}\times$$

$$\times\,\Delta^{-1}_{mn}(k_1+k_2)\,\varepsilon_{np_1p_2}(k_1,\ k_2)\,\Delta^{-1}_{p_1l_1}(k_1)\,\Delta^{-1}_{p_2l_2}(k_2), \tag{12}$$

где матрица $\Delta_{ij}(\mathbf{k},\ \omega)$ определена в (6).

Сравнивая (9) и (12), мы получим связь между тензорами поляризуемости молекул α_{ij} и α_{ijk} и тензорами поляризуемости среды ε_{ij} и ε_{ijk} в следующем виде:

$$T_{ij}(k_1+k_2)\,\alpha_{jl_1l_2}(k_1,\ k_2)\,A^{-1}_{l_1n_1}(k_1)\,A^{-1}_{l_2n_2}(k_2)=-\frac{3}{4}\,\frac{(\omega_1+\omega_2)^2}{\pi Nc^2}\times$$

$$\times\,\Delta^{-1}_{ip}(k_1+k_2)\,\varepsilon_{pr_1r_2}(k_1,\ k_2)\,\Delta^{-1}_{r_1n_1}(k_1)\,\Delta^{-1}_{r_2n_2}(k_2). \tag{13}$$

Тензоры микрополяризуемости α_{ij} и α_{ijk} входят в левую часть этого соотношения, а тензоры макрополяризуемости среды ε_{ij} и ε_{ijk} входят в правую часть. Как видно из (13), определение тензора α_{ijk} нелинейной поляризуемости молекул по экспериментально измеренным проницаемостям среды ε_{ij} и ε_{ijk} в общем случае анизотропной дисперсионной среды является не простым делом, так как необходимо учитывать импульсы и частоты волн, распространяющихся в среде, и довольно сложную зависимость от них соотношения (13).

В заключение отметим, что в частном случае изотропной среды, не имеющей пространственной дисперсии ($\mathbf{k}_1=\mathbf{k}_2=0$), полученное соотношение (13) приобретает более простой вид и переходит в формулу связи между нелинейной поляризуемостью молекул $\alpha^{\text{нел.}}$ и нелинейной диэлектрической проницаемостью среды $\varepsilon^{\text{нел.}}$, приведенную в книге Бломбергена [6],

$$\alpha^{\text{нел.}}(\omega_1,\ \omega_2)=\frac{9}{4\pi N}\,\frac{\varepsilon^{\text{нел.}}(\omega_1,\ \omega_2)}{[\varepsilon(\omega_1)+2]\,[\varepsilon(\omega_2)+2]\,[\varepsilon(\omega_1+\omega_2)+2]}. \tag{14}$$

Здесь $\varepsilon(\omega)$ — линейная диэлектрическая проницаемость среды.

Из выражений (7) и (13) видно, что число линейных уравнений в принципе совпадает с числом компонент определяемых тензоров соответственно α_{ij} и α_{ijk}. При наличии симметрии последних число независимых параметров уменьшается, что упрощает их нахождение.

Литература

[1] И. Е. Дзялошинский, Л. П. Питаевский. ЖЭТФ, *36*, 1797, 1959.
[2] В. В. Обуховский, В. Л. Стрижевский. ЖЭТФ, *50*, 135, 1966.
[3] В. Н. Агранович, Л. Н. Овандер, Б. С. Тошич. ЖЭТФ, *50*, 1332, 1966.
[4] О. Г. Боков, Л. Ш. Шехтер. Теоретическая и математическая физика, *1*, 281, 1969.
[5] О. Г. Боков, Л. Ш. Шехтер, М. В. Юдович. Опт. и спектр., *28*, 228, 1970.
[6] Н. Бломберген. Нелинейная оптика, М., 1966.

Поступило в Редакцию 3 апреля 1970 г.