ИЗВЕСТИЯ РАН. СЕРИЯ ФИЗИЧЕСКАЯ, 2024, том 88, № 12, с. 1858–1865

УДК 535.14

НЕЛИНЕЙНЫЕ ЭФФЕКТЫ В АНСАМБЛЕ АНГАРМОНИЧЕСКИХ ОСЦИЛЛЯТОРОВ

А. М. Башаров*

Федеральное государственное бюджетное учреждение «Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», Москва, Россия

**E-mail: basharov@gmail.com*

Поступила в редакцию 15.07.2024
После доработки 19.08.2024
Принята к публикации 30.08.2024

В рамках полуклассической теории излучения три типа резонанса классической когерентной электромагнитной волны одной несущей частоты с квантовым ангармоническим осциллятором рассмотрены на основе алгебраической теории возмущений. Получены соответствующие эффективные операторы дипольного момента ангармонического осциллятора, позволяющие рассчитывать поляризацию возбуждаемой среды в рассмотренных условиях резонанса, и установлены различные возможности для формирования нелинейных эффектов.

Ключевые слова: ангармонический осциллятор, резонансное взаимодействие, алгебраическая теория возмущений, оператор эффективного дипольного момента, генерация второй гармоники

DOI: 10.31857/S0367676524120036, **EDN:** EXUPVV

ВВЕДЕНИЕ

Под термином «ангармонический осциллятор» скрывается широкий спектр как фундаментальных, так и прикладных задач физики, квантовой химии и ряда других наук, которые до сих пор находятся в фокусе внимания исследователей. Отметим лишь недавние работы [1—6]. Например, в [6] рассмотрен многофотонный резонанс на основе анализа фазового портрета задачи. Мы сосредоточимся на резонансном взаимодействии классической когерентной волны с квантовым ангармоническим осциллятором в модели одномерного осциллятора с нелинейностью третьего и четвертого порядков.

Обычно, при рассмотрении взаимодействия классической когерентной волны с ангармоническими осцилляторами, используют классическую модель ангармонического осциллятора. Тогда в нерезонансном случае рассматривают нелинейную поляризацию среды на удвоенной и утроенной частоте классической когерентной волны и говорят о генерации соответствующих гармоник [7—10].

В случае квантового описания ангармонического осциллятора рассматривают такое резонансное взаимодействия когерентной волны и осциллятора, при котором в осцилляторе при поглощении одного кванта из когерентной волны рождается только одно возбуждение. При этом задачу сводят к двухуровневой системе.

Заметим, что при резонансном воздействии когерентной волны в среде наводится поляризация, которая является суммой резонансной и нерезонансной компонент. Резонансная поляризация обусловлена динамикой резонансных уровней. В нерезонансной поляризации отражается вклад нерезонансных энергетических уровней.

В данной статье показано, что при резонансном взаимодействии когерентной волны с ангармоническим осциллятором существуют еще два типа резонанса, в которых отклик и динамика резонансной среды и резонансная поляризация среды существенно отличаются как от типичной резонансной ситуации с одноквантовым возбуждением ангармонического осциллятора, так и одноквантового резонанса с двухуровневой системой.

Говоря о резонансе, имеется в виду ситуация, когда внешнее возбуждающее поле в виде электромагнитной волны одной несущей частоты ω_{cl}, воздействует на ансамбль одинаковых невзаимодействующих между собой ангармонических осцилляторов, а частота $\Omega_{n,k}$ некоторого перехода $E_n \to E_k$ между энергетическими уровнями осциллятора, из которых хотя бы один является заселенным, близка к ω_{cl}: $\omega_{cl} \approx \Omega_{n,k}$.

При резонансных воздействиях импульсов когерентных волн на ансамбль одинаковых квантовых частиц при определенных условиях [11,12] формируются нелинейные когерентные эффекты в виде фотонного эхо, оптической нутации и другие. Простейший их анализ состоит в рассмотрении взаимодействия когерентной волны с одной квантовой частицей в предположении неоднородного уширения спектральной линии резонансного перехода. При нахождении параметров эффективной двухуровневой системы, которая возникает в резонансных условиях [11,12], расчет основных нелинейных эффектов является стандартным, поэтому основной упор в статье делается на анализ резонансного взаимодействия когерентной волны с изолированным ангармоническим осциллятором.

Одна из рассмотренных в статье резонансных ситуаций характеризуется рождением двух возбуждений в ангармоническом осцилляторе при условии $\omega_{cl} \approx \Omega_{k+2,k}$. О таком резонансе будем говорить как о резонансе с поглощением одного фотона/кванта резонансной волны и двухкратном возбуждении ангармонического осциллятора. Рассмотрен простейший и актуальный случай $\omega_{cl} \approx \Omega_{2,0}$. Тогда резонансная поляризация среды возникает как на частоте накачки, так и на удвоенной частоте, что позволяет говорить о генерации второй гармоники в условиях данного резонанса.

Другая рассмотренная ситуация — рождение трех возбуждений в ангармоническом осцилляторе при поглощении одного кванта когерентной волны. Здесь резонансная поляризация среды в поле резонансной когерентной волны возникает на резонансной частоте во втором порядке по параметрам взаимодействия и определяется как когерентностью ангармонического осциллятора (недиагональными элементами матрицы плотности), так и его населенностью резонансных уровней (диагональными элементами матрицы плотности). Это отличает данный резонанс от резонанса в двухуровневой системе с определенной четностью резонансных состояний. При этом эффективный гамильтониан ангармонического осциллятора в точности эквивалентен эффективному гамильтониану чисто двухуровневых квантовых систем.

В обоих случаях двухквантового и трехквантового возбуждений осциллятора одним фотоном имеет место эффект резонансного выпрямления частот — возникновение поляризации на нулевой частоте.

В традиционном случае резонанса с одноквантовым возбуждением осциллятора резонансной генераций гармоник и эффекта выпрямления частот в рассматриваемом приближении нет.

Для получения поляризации среды одинаковых ангармонических осцилляторов в поле резонансной когерентной классической электромагнитной волны использованы полуклассический подход и алгебраическая теория возмущений, развитые в работах [11,12]. Заметим, что в современных работах, например [4,13] и ссылки там, сходный подход называют канонической теорией возмущений Ван Флека. В работе [14] указано на различие подходов, основанных на унитарной симметрии квантовой теории. Здесь же еще раз подчеркнем, что основной отличительной чертой алгебраической теории возмущений является требование отсутствия в эффективном гамильтониане в картине Дирака слагаемых, быстро меняющихся во времени. В классическом случае это алгебраический вариант [15] метода усреднения Крылова—Боголюбова—Митропольского (в оптических приложениях см. [16]).

После общих вопросов полуклассической теории излучения квантовых систем с учетом унитарной симметрии последовательно обсуждаем поляризацию среды в трех типичных случаях резонанса когерентной волны с анагармоническим осциллятором. Отметим, что вычисление поляризации среды в контексте использования унитарного преобразования в предыдущих работах, как правило, не проводится. Полученные результаты обсуждаем в связи с реализацией некоторых нелинейных излучательных эффектов.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Резонансное взаимодействие когерентной классической волны несущей частоты ω_{cl} и напряженности электрического поля E_{cl}

$$E_{cl} = \mathscr{E}_{cl} \exp(-i\omega_{cl}t - i\Phi) + \mathscr{E}_{cl}^* \exp(i\omega_{cl}t + i\Phi) \quad (1)$$

с ангармоническим квантовым осциллятором, описываемым гамильтонианом

$$H_{osc} = \hbar\Omega_c[c^+c + \alpha(c+c^+)^3 + \beta(c+c^+)^4], \quad (2)$$

рассматриваем в электродипольном приближении, используя оператор взаимодействия вида:

$$V_{int} = g(\mathscr{E}_{cl} \exp(-i\omega_{cl}t - i\Phi) + \\ + \mathscr{E}_{cl}^* \exp(i\omega_{cl}t + i\Phi))(c + c^+).$$

Введены следующие обозначения и величины. Медленно меняющаяся амплитуда классической волны $\mathscr{E}_{cl}$. Волну (1) будем называть также волной накачки. Через Ω_c обозначена характерная частота ангармонического осциллятора, операторы рождения и уничтожения квантов обозначены как c^+ и c, коммутационные соотношения для которых $[c, c^+] = 1$, $[c, N] = c$, $[c^+, N] = -c^+$, $N = c^+c$. Ангармонизм рассматриваемого осциллятора определяется параметрами α и β. Параметр g учитывает геометрию, включает знак минус от электродипольного оператора взаимодействия $E_{cl}d_{osc}$, где оператор дипольного момента осциллятора $d_{osc} = -g(c + c^+)$.

Уравнение динамики осциллятора определяется уравнением для матрицы плотности ρ_{osc}

$$i\hbar\frac{d\rho_{osc}}{dt} = [H, \rho_{osc}], \; H = H_{osc} + V_{int}, \quad (3)$$

а поляризация среды P_{osc} из N_{osc} (в единице объема) одинаковых и невзаимодействующих между собой осцилляторов дается выражением

$$P_{osc} = N_{osc}\mathrm{Tr}(\rho_{osc}d_{osc}). \quad (4)$$

Эта поляризация определяет обратное влияние ансамбля осцилляторов как на проходящую классическую волну, так и определяет генерацию волны на частоте $\bar{\omega}$. Пусть напряженность электрического поля на частоте $\bar{\omega}$ определяется медленно меняющейся амплитудой $\bar{\mathscr{E}}$:

$$\bar{E} = \bar{\mathscr{E}} \exp(-i\bar{\omega}t - i\bar{\Phi}) + \bar{\mathscr{E}}^* \exp(i\bar{\omega}t + i\bar{\Phi}). \quad (5)$$

Если на частоте $\bar{\omega}$ существует слагаемое поляризации среды, представимое в виде

$$\bar{P} = \bar{\mathscr{P}} \exp(-i\bar{\omega}t - i\bar{\Phi}) + \bar{\mathscr{P}}^* \exp(i\bar{\omega}t + i\bar{\Phi}), \quad (6)$$

где $\bar{\mathscr{P}}$ — медленно меняющаяся амплитуда, то амплитуда $\bar{\mathscr{E}}$ электрического поля на частоте $\bar{\omega}$ удовлетворяет уравнению Максвелла (ось z — направление распространения волны частоты $\bar{\omega}$ и волнового вектора $\bar{k}$ в среде одинаковых осцилляторов при выполнении условий пространственного синхронизма [6,8,10,11])

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{\bar{c}}\frac{\partial}{\partial t}\right)\bar{\mathscr{E}} = i2\pi\bar{k}\bar{\mathscr{P}}. \quad (7)$$

В качестве частоты $\bar{\omega}$ может выступать как несущая частота накачки ω_{cl}, так и различные комбинационные частоты, на которых будет существовать ненулевая поляризация среды.

Если $\bar{\omega}$ вблизи нуля, то для расчета отклика среды ангармонических осцилляторов используется однонаправленное приближение и уравнение Максвелла представляет собой уравнение для напряженности электрического поля в виде [17]:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v}\frac{\partial}{\partial t}\right)E = -\frac{2\pi}{v}\frac{\partial P}{\partial t}.$$

Дальнейшие вычисления удобно проводить в картине Дирака. В качестве нулевого гамильтониана удобно использовать диагональный оператор [18]

$$H_{\text{osc-Diag}} = \hbar\Omega_c N + V_1,\ V_1 = \hbar\Omega_c 6\beta(N + N^2).$$

Тогда операторами взаимодействия служат V_{int}, V_2 и V_3:

$$H_{\text{osc}} = H_{\text{osc-Diag}} + H_{\text{osc-Non-D}},\ H_{\text{osc-Non-D}} = V_2 + V_3,$$

$$V_2 = \hbar\alpha\Omega_c((3cN + c^3) + H.c.),$$

$$V_3 = \hbar\beta\Omega_c((c^4 - 2c^2 + 4c^2N) + H.c.).$$

Переход к картине Дирака дается формулами ($i = int$,2,3):

$$\rho_{\text{osc}}(t) = \exp(iH_{\text{Diag}}t/\hbar)\rho_{\text{osc}}\exp(-iH_{\text{Diag}}t/\hbar),$$

$$V_i(t) = \exp(iH_{\text{Diag}}t/\hbar)V_i\exp(-iH_{\text{Diag}}t/\hbar).$$

Принадлежность операторов картине Дирака отмечаем явным написанием временного аргумента (t).

Уравнение динамики ангармонического осциллятора приобретает вид

$$i\hbar\frac{d\rho_{\text{osc}}(t)}{dt} = [V(t), \rho_{\text{osc}}(t)],$$

$$V(t) = V_{\text{int}}(t) + V_2(t) + V_3(t). \quad (8)$$

УНИТАРНОЕ ПРЕОБРАЗОВАНИЕ И ВЫЧИСЛЕНИЕ ПОЛЯРИЗАЦИИ

Чтобы описать резонансное взаимодействие и определить поляризацию ансамбля ангармонических осцилляторов, перейдем от матрицы плотности $\rho_{\text{osc}}(t)$ к преобразованной матрице [11,12]

$$\tilde{\rho}_{\text{osc}}(t) = e^{-iS(t)}\rho_{\text{osc}}(t)e^{iS(t)},\ S(t) = S(t)^+. \quad (8)$$

Чтобы при таком преобразовании не изменились наблюдаемые значения и их вероятности, необходимо также преобразовать гамильтониан $V(t)$ [11,12]:

$$\tilde{V}(t) = e^{-iS(t)}V(t)e^{iS(t)} - i\hbar\, e^{-iS(t)}\frac{d}{dt}e^{iS(t)}.$$

Тогда в уравнении (8) все величины заменятся на преобразованные («тильдованные»).

Алгебраическая теория возмущений строится на основе формулы Бейкера–Кемпбелла–Хаусдорфа [11,12] и разложений преобразованного гамильтониана $\tilde{V}(t)$ и генератора преобразования $S(t)$ в ряд по характерным константам задачи.

$$\tilde{V}(t) = V^{(1,0,0)}(t) + V^{(0,1,0)}(t) + V^{(0,0,1)}(t) + V^{(1,1.0)}(t) + \\ + V^{(1,0,1)}(t) + V^{(0,1,1)}(t) + V^{(2,0,0)}(t) + \ldots \quad (9)$$

$$S(t) = S^{(1,0,0)}(t) + S^{(0,1,0)}(t) + \\ + S^{(0,0,1)}(t) + S^{(2,0,0)}(t) + \ldots, \quad (10)$$

Место в верхней тройке индексов (i, j, k) и значение индекса указывает на порядок разложения по взаимодействию V_{int}, V_2 или V_3. Сумму конечного числа слагаемых (9) называем эффективным гамильтонианом в картине Дирака $V^{\text{Eff}}(t)$. При необходимости, нетрудно получаемые эффективные гамильтонианы переписать для картины Шредингера.

Имеем стандартные формулы алгебраической теории возмущений [11,12,14]:

$$V^{(1,0,0)}(t) = \hbar\frac{dS^{(1,0,0)}(t)}{dt} + V_{\text{int}}(t),$$

$$V^{(0,1,0)}(t) = \hbar\frac{dS^{(0,1,0)}(t)}{dt} + V_2(t),$$

$$V^{(0,0,1)}(t) = \hbar\frac{dS^{(0,0,1)}(t)}{dt} + V_3(t),$$

$$V^{(2,0,0)}(t) = i\hbar\frac{d}{dt}S^{(2,0,0)}(t) - \frac{i}{2}[S^{(1,0,0)}(t), V_{\text{int}}(t)],\ \ldots$$

в которых к величинам $V^{(i,j,k)}$ относим все медленно меняющиеся во времени слагаемые по сравнению с $\exp(\pm\omega_{cl}t)$, $\exp(\pm\Omega_c t)$, а величины S вбирают в себя все быстроменяющиеся во времени слагаемые. Включение поля считаем адиабатическим [11,12]. Результат представляем в виде

$$\begin{gathered} V^{(1,0,0)}(t)=V_{\rm int}(t)',\ V^{(0,1,0)}(t)=V_2(t)', \\ V^{(0,0,1)}(t)=V_3(t)',\ V^{(2,0,0)}(t)=-\frac{i}{2}[S^{(1,0,0)}(t),V_{\rm int}(t)]', \\ V^{(1,1,0)}(t)= \\ =-\frac{i}{2}[S^{(1,0,0)}(t),V_2(t)]'-\frac{i}{2}[S^{(0,1,0)}(t),V_{\rm int}(t)]', \\ V^{(1,0,1)}(t)=-\frac{i}{2}[S^{(1,0,0)}(t),V_3(t)]'-\frac{i}{2}[S^{(0,0,1)}(t),V_{\rm int}(t)]'... \end{gathered} \tag{11}$$

Знак «штрих» у выражения говорит о том, что в выражении оставлены только медленно меняющиеся во времени слагаемые. Два штриха указывают на учет только быстроменяющихся во времени слагаемых. В этой нотации $S^{(\rm i,j,k)}(t)=S^{(\rm i,j,k)}(t)''$.

При унитарном преобразовании (8) поляризация, как наблюдаемая величина, не меняется, однако ее выражение через преобразованную матрицу плотности становится следующим:

$$\begin{gathered} P_{\rm osc}=N_{\rm osc}Tr(\tilde\rho_{\rm osc}(t)D_{\rm osc}(t)), \\ D_{\rm osc}(t)=e^{-iS(t)}d_{\rm osc}(t)e^{iS(t)}\approx \\ \approx d_{\rm osc}(t)-i[S^{(1)}(t),d_{\rm osc}(t)], \\ S^{(1)}(t)=S^{(1,0,0)}(t)+S^{(0,1,0)}(t)+S^{(0,0,1)}(t)\,. \end{gathered} \tag{12}$$

Через $D_{\rm osc}(t)$ обозначен эффективный дипольный момент ангармонического осциллятора (2) в поле резонансной когерентной классической волны (1). Будем использовать представление $D_{\rm osc}(t)\approx d_{\rm osc}(t)+D^{(1,0,0)}_{\rm osc}(t)+D^{(0,1,0)}_{\rm osc}(t)+D^{(0,0,1)}_{\rm osc}(t)$.

Далее будут рассмотрены следующие случаи резонанса при поглощении одного кванта волны (1): $\omega_{\rm cl}\approx\Omega_{\rm res}$, где $\Omega_{\rm res}$ — частота резонансного перехода:

$$\Omega_{\rm res}=\Omega_{\rm n+1,\,n},\ n\geqslant 0,\ \Omega_{\rm res}=\Omega_{2,0},\ \Omega_{\rm res}=\Omega_{3,0}, \tag{13}$$

$$\Omega_{\rm n,k}=\frac{E_{\rm n,k}}{\hbar},\ E_{\rm n,k}=E_{\rm k},\ E_{\rm n}=\hbar\Omega_{\rm c}[n+6\beta(n+n^2)].$$

Будем кратко говорить о резонансах с одноквантовым, двухквантовым и трехквантовом возбуждении ангармонического осциллятора (при поглощении одного фотона/кванта из когерентного поля накачки).

Энергетические уровни ангармонического осциллятора энергии $E_{\rm n}$ будем обозначать как $|E_{\rm n}>=|\,n>$ и будем использовать проекционные операторы в представлении операторов.

Если использовать разбиение эрмитового оператора $\mathscr{O}$ на составляющие $\mathscr{O}=\widehat{\mathscr{O}}+H.c.$, где в качестве $\mathscr{O}$ будут операторы $S^{(\rm i,j,k)}(t)$, $V_{\rm int}(t)$, $V_2(t)$, $V_3(t)$, $V^{(\rm i,j,k)}(t)$, $d_{osc}(t)$ $d_{\rm osc}(t)$, $D^{(\rm i,j,k)}_{\rm osc}(t)$, то нетрудно получить

$$\widehat{S}^{(1,0,0)}(t)=-\frac{g}{i\hbar}\sum_n{}''s_{\rm n-1,n}(t)\sqrt{n}e^{i\Omega_{\rm n-1,n}t}\,|\,E_{\rm n-1}><E_{\rm n}\,|,$$

$$\widehat{S}^{(0,1,0)}(t)=-\frac{\alpha\Omega_{\rm c}}{i}\Big(\sum_{n=1}^{\infty}h_{\rm n-1,n}e^{i\Omega_{\rm n-1,n}t}\,|\,E_{\rm n-1}><E_{\rm n}\,|+ +\sum_{n=3}^{\infty}h_{\rm n-3,n}e^{i\Omega_{\rm n-3,n}t}\,|\,E_{\rm n-3}><E_{\rm n}\,|\Big),$$

$$\widehat{S}^{(0,0,1)}(t)=-\frac{\beta\Omega_c}{i}\Big(\sum_{n=1}^{\infty}h_{\rm n-4,n}e^{i\Omega_{\rm n-4,n}t}\,|\,E_{\rm n-4}><E_{\rm n}\,|+ +\sum_{n=3}^{\infty}h_{\rm n-2,n}e^{i\Omega_{\rm n-2,n}t}\,|\,E_{\rm n-2}><E_{\rm n}\,|\Big),$$

$$\widehat{d}_{\rm osc}(t)=-g\sum_{n=1}^{\infty}\sqrt{n}e^{-i\Omega_{\rm n,n-1}t}\,|\,E_{\rm n-1}><E_{\rm n}\,|,$$

$$s_{\rm n-1,n}(t)=\frac{\mathscr{E}_{\rm cl}\exp(-i\omega_{\rm cl}t-i\Phi)}{-\omega_{\rm cl}+\Omega_{\rm n-1,n}}+\frac{\mathscr{E}_{\rm cl}^{\,*}\exp(i\omega_{\rm cl}t+i\Phi)}{\omega_{\rm cl}+\Omega_{\rm n-1,n}},$$

$$h_{\rm n-1,n}=\frac{3n^{3/2}}{\Omega_{\rm n-1,n}},$$

$$h_{\rm n-3,n}=\frac{\sqrt{n(n-1)(n-2)}}{\Omega_{\rm n-3,n}},$$

$$h_{\rm n-4,n}=\frac{\sqrt{n(n-1)(n-2)(n-3)}}{\Omega_{\rm n-4,n}},$$

$$h_{\rm n-2,n}=\frac{(4n-2)\sqrt{n(n-1)}}{\Omega_{\rm n-2,n}}.$$

Эти формулы необходимы для получения эффективного оператора дипольного момента и эффективного гамильтониана. Подчеркнем, что разбиение $\mathscr{O}=\widehat{\mathscr{O}}+H.c.$ неоднозначно и этим пользуемся в дальнейшем для перегруппировки слагаемых. Получаются громоздкие общие формулы, которые представим так:

$$\widehat{D}^{(1,0,0)}(t)=-\frac{g^2}{\hbar}\sum_n(s_{\rm n-1,n}(t)+s_{\rm n,n+1}(t))\sqrt{n(n+1)})e^{-i\Omega_{\rm n+1,n-1}t}\,|\,E_{\rm n-1}><n+1|+ +\frac{g^2}{\hbar}\Big(\sum_n(s_{\rm n-1,n}(t)^*n-(n+1)s_{\rm n,n+1}(t)^*)\,|\,E_{\rm n}><n|,$$

$$\widehat{D}^{(0,1,0)}(t) = -\alpha\Omega_c g\sum_{n=1}^{\infty}\left(\frac{h_{m,m+1}}{\Omega_{m,m+1}}\sqrt{m+2} - \sqrt{m+1}\,\frac{h_{m+1,m+2}}{\Omega_{m+1,m+2}}\right)e^{-i\Omega_{m+2,m}t}\,|\,E_m><E_{m+2}\,|-$$

$$-\alpha\Omega_c g\sum_{n=3}^{\infty}\left(\frac{h_{n-1,n+2}}{\Omega_{n-1,n+2}}\sqrt{n+3} - \sqrt{n}\,\frac{h_{n,n+3}}{\Omega_{n,n+3}}\right)e^{-i\Omega_{n+3,n-1}t}\,|\,E_{n-1}><E_{n+3}\,|+$$

$$-\alpha\Omega_c g\sum_{n=1}^{\infty}\left(\sqrt{n+1}\,\frac{h_{n,n+1}}{\Omega_{n,n+1}} - \frac{h_{n-1,n}}{\Omega_{n-1,n}}\sqrt{n}\right)|\,E_n><E_n\,|-$$

$$-\alpha\Omega_c g\sum_{n=1}^{\infty}\left(\sqrt{n+3}\,\frac{h_{n,n+3}}{\Omega_{n,n+3}} - \frac{h_{n-1,n+2}}{\Omega_{n-1,n+2}}\sqrt{n}\right)e^{-i\Omega_{n+2,n}t}\,|\,E_n><E_{n+2}\,|,$$

$$\widehat{D}^{(0,0,1)}(t) = -\beta\Omega_c g\sum_{n=3}^{\infty}\left(\frac{h_{n-3,n-1}}{\Omega_{n-3,n-1}}\sqrt{n} - \sqrt{n-2}\,\frac{h_{n-2,n}}{\Omega_{n-2,n}}\right)e^{i\Omega_{n-3,n}t}\,|\,E_{n-3}><E_n\,|-$$

$$-\beta\Omega_c g\sum_{n=1}^{\infty}\left(\sqrt{n+1}\,\frac{h_{n-3,n+1}}{\Omega_{n-3,n+1}} - \frac{h_{n-4,n}}{\Omega_{n-4,n}}\sqrt{n-3}\right)e^{i\Omega_{n-3,n}t}\,|\,E_{n-3}><E_n\,|-$$

$$-\beta\Omega_c g\sum_{n=1}^{\infty}\left(\sqrt{n+1}\,\frac{h_{n-1,n+1}}{\Omega_{n-1,n+1}} - \frac{h_{n-2,n}}{\Omega_{n-2,n}}\sqrt{n-1}\right)e^{i\Omega_{n-1,n}t}\,|\,E_{n-1}><E_n\,|.$$

Эффективный гамильтониан в первом порядке по полю получается в простом и общем виде как для всех рассматриваемых случаев резонанса [11,12,18], так и для всех объектов типа «атомно-фотонных» и «фотонных» кластеров» [19]:

$$V^{\mathrm{Eff}}(t) =$$
$$= g^{\mathrm{Eff}}\mathscr{E}(t)\exp[-i(\omega_{cl} - \Omega_{res} + i\Phi)t]X_+ + H.c., \quad (14)$$

где X_+ и X_- — повышающий и понижающий операторы в ангармоническом осцилляторе, которые в терминах проекционных операторов выглядят так

$$X_+ = |e><g|,\; X_- = |g><e|,\; X_+ = X_-^+.$$

Через $|e>$ и $|g>$ обозначены вектора состояний верхнего и нижнего резонансных уровней ангармонического осциллятора, частота перехода между которыми равна Ω_{res} (13).

Эффективный параметр g^{Eff} резонансного взаимодействия равен

$$g^{\mathrm{Eff}} = g\sqrt{n},\; \Omega_{res} = \Omega_{n,n-1},\; n \geqslant 1;$$
$$g^{\mathrm{Eff}} = -(4+\sqrt{2})g\alpha,\; \Omega_{res} = \Omega_{2,0};\; g^{\mathrm{Eff}} = -8\sqrt{6}g\beta,$$
$$\Omega_{res} = \Omega_{3,0}.$$

Следует отметить, что резонанс $\Omega_{res} = \Omega_{2,0}$ является простейшим представителем резонансов с $\Omega_{res} = \Omega_{2k+n,n}$, $n \geqslant 0$, $k \geqslant 1$. Эффективный оператор взаимодействия с внешним когерентным полем (14) здесь определяется только слагаемым V_2 в ангармонической добавке к диагональной части гамильтониана. Резонанс $\Omega_{res} = \Omega_{3,0}$ является простейшим представителем резонансов с $\Omega_{res} = \Omega_{2k+1+n,n}$, $n \geqslant 0$, $k \geqslant 1$. Здесь роль играет только слагаемое V_3.

В резонансных условиях в поле волны накачки идут переходы только между резонансными состояниями. Поэтому удобно разбить поляризацию среды на сумму двух слагаемых — резонансную и нерезонансную

$$P^{osc} = P^{res} + P^{nonres}.$$

Для определения резонансной поляризации от эффективного оператора дипольного момента $D_{osc}(t)$ достаточно знать только матричные элементы этого оператора $D_{osc}(t)_{ee}$, $D_{osc}(t)_{gg}$ и $D_{osc}(t)_{eg}$.

$$P^{res} = \tilde\rho_{ee}(t)D_{osc}(t)_{ee} + \tilde\rho_{gg}(t)D_{osc}(t)_{gg} + \tilde\rho_{eg}(t)D_{osc}(t)_{ge} + \tilde\rho_{ge}(t)D_{osc}(t)_{eg}. \quad (15)$$

Нерезонансная поляризация P^{nonres} определяется линейной $\chi^{(1)}$ и нелинейными $\chi^{(2)}$ и $\chi^{(3)}$ восприимчивостями [7—12]. Если необходимо, ее можно учесть феноменологически.

ПОЛЯРИЗАЦИЯ АНГАРМОНИЧЕСКИХ ОСЦИЛЛЯТОРОВ В ПОЛЕ РЕЗОНАНСНОЙ НАКАЧКИ

Случай однократного возбуждения ангармонического осциллятора $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{n,n-1}$. Матричные элементы эффективного дипольного момента определяются значениями:

$$\widehat{d}_{osc}(t)_{n-1,n} = -g\sqrt{n}e^{-i\Omega_{n,n-1}t},$$

$$\widehat{D}_{nn}^{(1,0,0)}(t) = -\mathscr{E}_{cl}\exp(-i\omega_{cl}t - i\Phi)\Pi_n(\omega_{cl}), \quad (16)$$

$$\widehat{D}_{nn}^{(0,1,0)}(t) = -\alpha\Omega_c g\left(\sqrt{n+1}\,\frac{h_{n,n+1}}{\Omega_{n,n+1}} - \frac{h_{n-1,n}}{\Omega_{n-1,n}}\sqrt{n}\right), \quad (17)$$

$$\widehat{D}^{(0,0,1)}(t)_{n-1,n} = $$
$$= -\beta\Omega_c g\left(\sqrt{n+1}\,\frac{h_{n-1,n+1}}{\Omega_{n-1,n+1}} - \frac{h_{n-2,n}}{\Omega_{n-2,n}}\sqrt{n-1}\right)e^{i\Omega_{n-1,n}t}.$$

Здесь использован стандартный параметр теории резонанса [12]:

$$\Pi_n(\omega) = \frac{g^2}{\hbar}\left(\begin{array}{l}\dfrac{n}{\Omega_{n.n-1}+\omega} + \dfrac{n}{\Omega_{n.n-1}-\omega} + \\ + \dfrac{n+1}{\Omega_{n,n+1}+\omega} + \dfrac{n+1}{\Omega_{n,n+1}-\omega}\end{array}\right).$$

Структура матричных элементов в целом отвечает матричным элементам эффективного оператора дипольного момента при одноквантовом резонансе с оптически разрешенным переходом в двухуровневой системе [12]. Применение алгебраической тории возмущений и представленные результаты позволяют в дальнейшем переписать когерентные переходные процессы типа оптической нутации и фотонного эхо на основе формул монографии [12] для ангармонического осциллятора в условиях $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{n,n-1}$.

Другой простой случай резонанса с поглощением одного кванта резонансной волны — резонанс с трехкратным возбуждением ангармонического осциллятора $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{3,0}$. Здесь также имеем аналогию с резонансной поляризацией двухуровневой квантовой системы (ср. с [12]). Для $\widehat{D}^{(1,0,0)}{}_{nn}(t)$ и $\widehat{D}^{(0,1,0)}{}_{nn}(t)$ имеем формулы (16) и (17), а оставшийся матричный элемент такой

$$\widehat{D}^{(0,0,1)}{}_{03}(t) = -\beta\Omega_c g\left(\frac{2h_{0,4}}{\Omega_{0,4}} + \frac{\sqrt{3}h_{0,2}}{\Omega_{0,2}} - \frac{h_{1,3}}{\Omega_{1,3}}\right)e^{-i\Omega_{3,0}t}.$$

В отличие от теории резонанса в двухуровневых системах в резонансных состояниях возникает постоянный дипольный момент, определяемый матричным элементом $2\widehat{D}^{(0,1,0)}{}_{nn}(t)$ (коэффициент 2 учитывает эрмитово сопряженное слагаемое). Оставшаяся часть поляризации возникает на частоте накачки:

$$P_{osc} = N_{osc}(\tilde{\rho}_{osc}(t)_{eg}\,\widehat{D}^{(0,0,1)}(t)_{ge} + $$
$$+\tilde{\rho}_{osc}(t)_{ee}\,\widehat{D}^{(1,0,0)}(t)_{ee} + \tilde{\rho}_{osc}(t)_{gg}\,\widehat{D}^{(1,0,0)}(t))_{gg} + H.c.$$

и равноправно зависит от когерентности и от населенностей резонансных уровней. В двухуровневой системе и в случае резонанса $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{n,n-1}$ эти зависимости имеют разный порядок.

Такой аналог двухуровневой квантовой системы также позволяет реализовать часть нелинейно-оптических эффектов, описанных в [12]. Примером может служить оптическая нутация и нутационное эхо. Несмотря на указанные отличия в поляризации среды на резонансной частоте, оптическая нутация и нутационное эхо будут возникать на той же частоте, что и в случае двухуровневых систем. Неоднородное уширение, необходимое для формирования сигналов типа фотонного эхо, можно реализовать, допустив в ансамбле ангармонических осцилляторов наличие осцилляторов со слегка сдвинутыми как частотами Ω_c , так и с измененными параметрами нелинейности β.

Случай двухкратного возбуждения ангармонического осциллятора $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{2,0}$ отличен от предыдущих в следующем. Диагональные матричные эффективного дипольного момента такие же, что и в предыдущих случаях резонанса (формулы (16) и (17)). Недиагональный матричный элемент имеет существенные отличия и состоит из двух частей:

$$\widehat{D}_{osc0.2}(t) = \widehat{D}^{(1,0,0)}(t)_{0,2} + \widehat{D}^{(0,1,0)}(t)_{0,2},$$

$$\widehat{D}^{(1,0,0)}(t)_{0,2} = -\frac{\sqrt{2}g^2}{\hbar}e^{-i\Omega_{2,0}t}\Bigg(\mathscr{E}_{cl}\exp(-i\omega_{cl}t - i\Phi)\times$$
$$\times\left(\frac{1}{-\omega_{cl}+\Omega_{0,1}} + \frac{1}{-\omega_{cl}+\Omega_{1,2}}\right) + \mathscr{E}_{cl}^{\,*}\exp(i\omega_{cl}t + i\Phi)\times$$
$$\times\left(\frac{1}{\omega_{cl}+\Omega_{0,1}} + \frac{1}{\omega_{cl}+\Omega_{1,2}}\right)\Bigg) = \widehat{D}^{gen}(t)_{0,2} + \widehat{D}^{perm}(t)_{0,2},$$

$$\widehat{D}^{(0,1,0)}(t)_{0,2} = -\alpha\Omega_c g\left(\frac{\sqrt{3}h_{0,3}}{\Omega_{0,3}} + \frac{\sqrt{2}h_{0,1}}{\Omega_{0,1}} - \frac{h_{1,2}}{\Omega_{1,2}}\right)e^{-i\Omega_{2,0}t}.$$

Слагаемое $\widehat{D}^{(0,1,0)}(t)_{0,2}$ отвечает за традиционную составляющую резонансной поляризации.

Слагаемое

$$\widehat{D}^{gen}(t)_{0,2} = -\frac{\sqrt{2}g^2}{\hbar}e^{-i\Omega_{2,0}t}\mathscr{E}_{cl}\exp(-i\omega_{cl}t - i\Phi)\times$$
$$\times\left(\frac{1}{-\omega_{cl}+\Omega_{0,1}} + \frac{1}{-\omega_{cl}+\Omega_{1,2}}\right)$$

определяет поляризацию резонансной среды на частоте второй гармоники $\omega_{cl} + \Omega_{2,0} \approx 2\Omega_{2,0}$. Наконец,

$$\widehat{D}^{perm}(t)_{0,2} = -\frac{\sqrt{2}g^2}{\hbar}e^{-i\Omega_{2,0}t}\mathscr{E}_{cl}^{\,*}\exp(i\omega_{cl}t + i\Phi)\times$$
$$\times\left(\frac{1}{\omega_{cl}+\Omega_{0,1}} + \frac{1}{\omega_{cl}+\Omega_{1,2}}\right)$$

определяет вклад когерентности ангармонических осцилляторов в наведенную низкочастотную (на нулевой частоте $\Omega_{2,0} - \omega_{cl} \approx 0$) постоянную поляризацию.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотренные случаи резонанса отличаются между собой. Резонансные поляризации на резонансной частоте в случае одноквантового возбуждения $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{n,n-1}$ и трехквантового возбуждения $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{3,0}$ похожи на резонансную поляризацию среды двухуровневых квантовых частиц с оптически разрешенным квантовым переходом [12]. При этом резонансной генерации гармоник в рассматриваемом приближении нет. Отличие здесь возникает в возникновении малого постоянного эффективного дипольного момента $\widehat{D}^{(0,1,0)}{}_{nn}(t)$. Это, в свою очередь приводит к генерации низкочастотного излучения на частоте Раби, как и в двухуровневых системах с постоянным дипольным моментом [19]. В отсутствие внешнего поля величина $\widehat{D}^{(0,1,0)}{}_{nn}(t)$ говорит о наличии малого постоянного дипольного момента у ангармонического осциллятора.

Резонанс с двухквантовым возбуждением осциллятора $\omega_{cl} \approx \Omega_{res} = \Omega_{2,0}$ отличается от отмеченных выше случаев резонансной генерацией второй гармоники. В протяженной среде, однако, для формирования излучения на частоте второй гармоники необходимо выполнение условия пространственного синхронизма.

Отметим установленную роль когерентности и населенности резонансных уровней в формировании резонансной поляризации. В случае одноквантового возбуждения осциллятора лидирующее слагаемое определяется когерентностью, поэтому вкладом от динамики населенностей здесь можно пренебречь. При двухквантовом и трехквантовом возбуждении вклады когерентности и населенностей одного порядка. Тем не менее, указанное обстоятельство не мешает формированию нелинейных эффектов типа фотонного эхо, поскольку и в населенности, и в когерентности в поле резонансной волны присутствует эффект, который принято называть «обращением времени» [20]. Кроме того, влияние резонансной населенности существенно при наличии резонансного поля, тогда как определяемая когерентностью поляризация не связана с наличием поля и позволяет обсуждать эффекты типа оптической индукции.

Наконец, подчеркнем, что хотя рассмотренные резонансные взаимодействия находятся в традиционной области ультракоротких импульсов, когда у импульса есть медленно меняющаяся огибающая, а длительность импульсов меньше характерных времен релаксации, общая картина резонансных процессов представляется достаточно сложной. Когда мы говорим о паре резонансных уровней, тогда возможно формирование нелинейных эффектов типа традиционных эхо [12]. Если возбуждающие эффект эхо импульсы когерентного поля будут резонансными смежным переходам, то возможен целый спектр новых явлений эхо типа трехуровневых эхо [12]. В последнее время исследуют воздействие предельно коротких импульсов, например, [21,22], когда их спектр накрывает несколько переходов в квантовом осцилляторе и возможны различные каналы генерации гармоник и формирование фотонных эхо в «нетрадиционные» моменты времени. Здесь представленный в статье подход даст хорошее приближение для спектра и актуальных квантовых переходов.

Автор выражает благодарность Калачеву А. А. и Сазонову С. В. за полезные обсуждения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Huang S., Hao H., Chen A.* // Appl. Sciences. 2020. V. 10. No. 16. Art. No. 5719.
2. *Ng K., Ghafoor I., Tse P.* // Opt. Lasers Engin. 2022. V. 157. Art. No. 107111.
3. *Алексашин М.К., Башаров А.М., Трубилко А.И.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2023. Т. 87. № 11. С. 1642; *Aleksashin M.K., Basharov A.M., Trubilko A.I.* //Bull. Russ. Acad. Sci. 2023. V. 87. No. 11. P. 1702.
4. *Efremova I.M., Millionshchikov D.V., Krasnoshchekova S.V.* // Russ. J. Phys. Chem. A. 2024. V. 98. No. 5. P. 78.
5. *Sarkar P., Bhattacharjee J.K.* // Phys. Rev. E. 2020. V. 102. Art. No. 052204.
6. *Anikin E.V., Maslova N.S., Gippius N.A., Sokolov I.M.* // Phys. Rev. A. 2021. V. 104. Art. No. 003100.
7. *Мандель Л., Вольф Э.* Оптическая когерентность и квантовая оптика. М.: Физматлит, 2000. 896 с.
8. *Скалли М.О., Зубайри М.С.* Квантовая оптика. М.: Физматлит, 2003. 512 с.
9. *Boyd R.W.* Nonlinear optics. N.Y.: Academic Press, 2003.
10. *Клышко Д.Н.* Физические основы квантовой электроники. М.: Наука, 1986.
11. *Башаров А.М.* Фотоника. Метод унитарного преобразования в нелинейной оптике. М.: МИФИ, 1990.
12. *Maimistov A.I., Basharov A.M.* Nonlinear optical waves. Dordrecht: Kluwer Academic, 1999.
13. *Краснощеков С.В., Добролюбов Е.О., Чан С.* // Опт. и спектроск. 2020. Т. 128. № 12. С. 1795; *Krasnoshchekov S.V., Dobrolyubov E.O., Chang X.* // Opt. Spectrosc. 2020. V. 128. No. 12. P. 1927.
14. *Башаров А.М.* // ЖЭТФ. 2020. Т. 158. № 5. С. 978; *Basharov A.M.* // JETP. 2020. V. 158. No. 5. P. 853.
15. *Богаевский В.Н., Повзнер А.Я.* Алгебраические методы в нелинейной теории возмущений. М.: Наука, 1987.
16. *Бутылкин В.С., Каплан А.Е., Хронопуло Ю.Г., Якубович Е.И.* Резонансные взаимодействия света с веществом. М.: Наука, 1977.
17. *Башаров А.М.* // Письма в ЖЭТФ 2016. Т. 103. № 1. С. 16; *Basharov A.M.* // JETP Lett. 2016. V. 103. No. 1. P. 15.
18. *Башаров А.М., Трубилко А.И.* // Опт. и спектроск. 2024. Т. 132. № 5. С. 524.
19. *Башаров А.М.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2024. Т. 88. № 6. С. 876; *Basharov A.M.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2024. V. 88. No. 6. P. 835.
20. *Аллен Л., Эберли Дж.* Оптический резонанс и двухуровневые атомы. М.: Мир, 1978.
21. *Розанов Н.Н.* // Опт. и спектроск. 2023. Т. 131. № 12. С. 1703.
22. *Сазонов С.В.* // Изв. РАН. Сер. физ. 2014. Т. 78. № 12. С. 1593; *Sazonov S.V.* // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2014. V. 78. No. 12. P. 1303.

Nonlinear effects in an ensemble of anharmonic oscillators

A. M. Basharov*

National Research Center "Kurchatov Institute", Moscow, 123182 Russia
**e-mail: basharov@gmail.com*

Within the framework of the semi-classical theory of radiation, three types of resonance of a classical coherent electromagnetic wave of the same carrier frequency with a quantum anharmonic oscillator are considered based on algebraic perturbation theory. The corresponding effective operators of the dipole moment of the anharmonic oscillator are obtained, which allow calculating the polarization of the excited medium under the considered resonance conditions, and various possibilities for the formation of nonlinear effects are established.

Keywords: anharmonic oscillator, resonant interaction, algebraic perturbation theory, effective dipole moment operator, second harmonic generation