

Нелинейная оптика поверхности и наноструктур (Нелинейная оптика II)

Лекции 1-2.

Нелинейно-оптический отклик металлической поверхности. Генерация ВГ ограниченным электронным газом. Гидродинамическая теория.

§1. Гидродинамические уравнения. Модель “желе”.

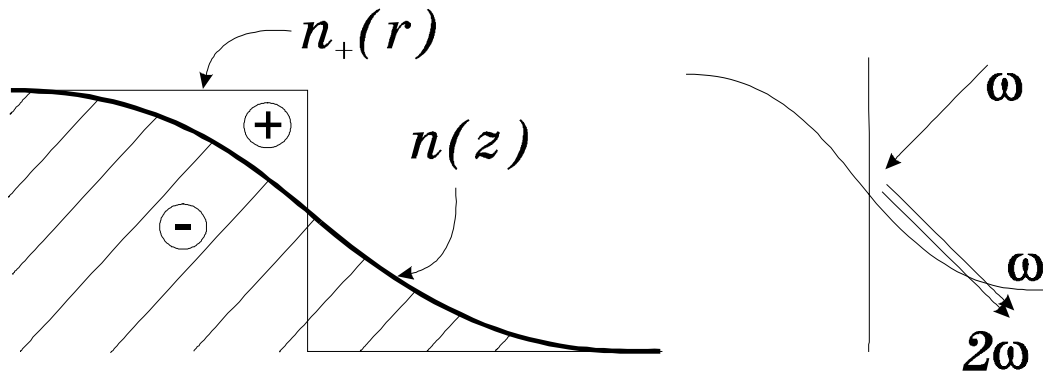


Рис. 1.1

Полная плотность заряда и тока:

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \rho_+(\mathbf{r}) + \rho_-(\mathbf{r}, t), \quad \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = -en(\mathbf{r}, t)\mathbf{v}(\mathbf{r}, t), \quad (1.1)$$

$$\rho_+(\mathbf{r}) = en_+(\mathbf{r}), \quad \rho_-(\mathbf{r}, t) = -en(\mathbf{r}, t), \quad (1.2)$$

где $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ - поле скоростей.

(1) удовлетворяют уравнению непрерывности

$$\nabla \mathbf{j} + \rho = 0, \quad (1.3)$$

а функция $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ удовлетворяет уравнению движения Эйлера для электронной жидкости

$$m\mathbf{n} \left[\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \vec{\nabla}) \mathbf{v} \right] = -en\mathbf{E} - \frac{en}{c} [\mathbf{v} \cdot \mathbf{B}] - \vec{\nabla} p, \quad (1.4)$$

где m - масса электрона, $p(\mathbf{r}, t)$ - "квантовое давление".

Согласно теореме Томаса-Ферми:

$$p(\mathbf{r}, t) = \xi [n(\mathbf{r}, t)]^{5/3}, \quad \text{где} \quad (1.5)$$

$$\xi = (3\pi^2)^{2/3} \frac{\hbar^2}{5m}. \quad (1.6)$$

Поля \mathbf{E} и \mathbf{B} удовлетворяют уравнениям Максвелла:

$$\nabla \mathbf{E} = -4\pi \nabla P, \quad \nabla \mathbf{B} = 0 \quad (1.7)$$

$$c[\nabla \mathbf{B}] - \mathbf{E} = 4\pi \mathbf{P}, \quad c[\mathbf{v} \cdot \mathbf{E}] + \mathbf{B} = 0'$$

где поляризация $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ вводится уравнениями

$$\mathbf{j} = \dot{\mathbf{P}}, \quad \rho = -\vec{\nabla} \cdot \mathbf{P}. \quad (1.8)$$

Ищем решение для поляризации, чтобы подставить его в волновое уравнение.

Для вычисления отклика электронов с точностью до членов второго порядка по временному возмущению разложим все поля стандартным образом:

$$\begin{aligned} n(\mathbf{r}, t) &= n_0(\mathbf{r}) + n_1(\mathbf{r}, t) + n_2(\mathbf{r}, t) + \dots, \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) + \mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t) + \mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t) + \dots, \\ \mathbf{v}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{v}_1(\mathbf{r}, t) + \mathbf{v}_2(\mathbf{r}, t) + \dots, \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{B}_1(\mathbf{r}, t) + \mathbf{B}_2(\mathbf{r}, t) + \dots, \end{aligned} \quad (1.9)$$

Уравнение первого порядка из (1.4, 1.7, 1.8) - это уравнение Томаса-Ферми для равновесной плотности $n_0(\mathbf{r})$ при использовании (1.5, 1.6).

Уравнение первого порядка:

$$\ddot{\mathbf{P}}_1(\mathbf{r}, t) - \hat{L}(\mathbf{r})\mathbf{P}_1(\mathbf{r}, t) = \frac{e^2 n_0(\mathbf{r})}{m} \mathbf{E}_1(\mathbf{r}, t), \quad (1.10)$$

$$\text{где } \hat{L} = -\frac{5}{9m} \xi n_0^{-1/3} (\vec{\nabla} n_0) \vec{\nabla} + \frac{5}{3m} \xi n_0^{2/3} \vec{\nabla} \vec{\nabla}. \quad (1.11)$$

Уравнение второго порядка:

$$\ddot{\mathbf{P}}_2(\mathbf{r}, t) - \hat{L}(\mathbf{r})\mathbf{P}_2(\mathbf{r}, t) = \frac{e^2 n_0(\mathbf{r})}{m} \mathbf{E}_2(\mathbf{r}, t) + \mathbf{S}_f + \mathbf{S}_p, \quad (1.12)$$

где источники второго порядка (на 2ω)

$$\mathbf{S}_f(\mathbf{r}, t) = \underbrace{en_0(\mathbf{v}_1 \vec{\nabla}) \mathbf{v}_1 - e\mathbf{v}_1 \dot{n}_1}_{\text{конвективные слагаемые}} + \underbrace{\frac{e^2}{m} n_1 \mathbf{E}_1 + \frac{e^2 n_0}{mc} [\mathbf{v}_1 \cdot \mathbf{B}_1]}_{\text{силы Лоренца}}, \quad (1.13)$$

$$\mathbf{S}_p(\mathbf{r}, t) = \frac{5e}{9m} \xi \vec{\nabla} (n_1^2 n_0^{-1/3}) \quad (1.14)$$

- новый член второго порядка от квантового давления

Разумеется, и члены в (1.13) неявно зависят от ξ через зависимость линейных полей от ξ .

§2. Теория ГВГ в приближении свободных электронов.

Найдем вид гидродинамического уравнения при $\xi=0$. Поля первого порядка и ВГ запишем в виде

$$f_1(\mathbf{r}, t) = f_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t) + \text{к.с.} = 2 \operatorname{Re}[f_1(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t)], \quad (1.15)$$

$$f_2(\mathbf{r}, t) = f_2(\mathbf{r}) \exp(-i\Omega t) + \text{к.с.} = 2 \operatorname{Re}[f_2(\mathbf{r}) \exp(-i\Omega t)], \quad (1.16)$$

где $\Omega=2\omega$.

Уравнение (10) сведется к

$$\mathbf{P}_1(\mathbf{r}) = -\frac{en_0(z)}{m\omega^2} \mathbf{E}_1(\mathbf{r}). \quad (1.17)$$

Определяя, как обычно,

$$\mathbf{D}_1(\mathbf{r}) \equiv \mathbf{E}_1(\mathbf{r}) + 4\pi\mathbf{P}_1(\mathbf{r}) \equiv \xi(\mathbf{r}, \omega)\mathbf{E}_1(\mathbf{r}), \quad (1.18)$$

имеем

$$\xi(\mathbf{r}, \omega) = 1 - \frac{4\pi e^2 n_0(z)}{m\omega^2}. \quad (1.19)$$

Из (19) видно, что если $n_0(z)$ - гладкая функция (плавно меняется от объемного значения до нуля в вакууме), то из непрерывности нормальной компоненты $D_1(\mathbf{r})$ следует расходимость $E_1(\mathbf{r})$ в плоскости, где $\xi(\mathbf{r}, \omega)=0$.

Таким образом, модель свободных электронов физически корректна только тогда, когда $n_0(z)$ меняется от объемного значения n_0 до нуля, образуя ступеньку на поверхности.

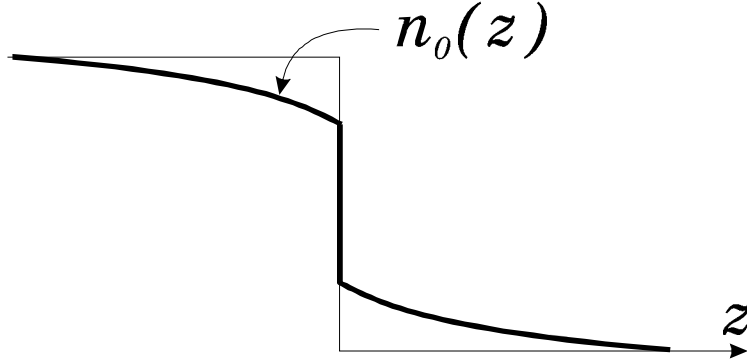


Рис. 1.2

Вернемся к уравнению (1.12) при $\xi=0$ для вектора нелинейной поляризации $P_2(\mathbf{r}, t)$ на частоте 2ω .

Используя результат от первого порядка (1.17) и соотношения из (1.1), (1.8) и (1.17), получим

$$\mathbf{v}_1 = -\frac{ie}{m\omega} \mathbf{E}_1. \quad (1.20)$$

Имеем

$$\mathbf{P}_2(\mathbf{r}) = -\frac{e^2 n_0(z)}{m\Omega^2} \mathbf{E}_2(\mathbf{r}) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}), \quad (1.21)$$

$$\text{где } \mathbf{P}_{NL} = \frac{ie^3 n_0}{4m^2 \omega^3 c} [\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{B}_1] + \frac{e^3 n_0}{4m^2 \omega^4} (\mathbf{E}_1 \vec{\nabla}) \mathbf{E}_1 - \frac{e^2 n_1}{2m\omega^2} \mathbf{E}_1. \quad (1.22)$$

Если пренебречь членом $(\mathbf{E}_1 \vec{\nabla}) \mathbf{E}_1$ (который в объеме для плоской поперечной волны равен нулю) и использовать соотношения из (1.7) и (1.8)

$$n_1 = e^{-1} \vec{\nabla} \mathbf{P}_1 \quad (1.23)$$

$$\text{и } \vec{\nabla} \mathbf{P}_1 = -\frac{1}{4\pi} \vec{\nabla} \mathbf{E}_1, \quad (1.24)$$

имеем

$$\mathbf{P}_{NL} = \alpha [\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{B}_1] + \beta \mathbf{E}_1 (\vec{\nabla} \mathbf{E}_1), \quad (1.25)$$

$$\text{где } \alpha = \frac{ie^3 n_0(z)}{4\pi\omega^3 c}, \quad \beta = \frac{e}{8\pi m\omega^2}. \quad (1.26)$$

Условно (поскольку реально связанных зарядов нет) можно считать, что первое слагаемое в (1.25) представляет магнитно-дипольное взаимодействие, а второе - электро-дипольное.

Для геометрии отраженной ВГ член $(\vec{E}_1 \vec{\nabla}) \vec{E}_1 \equiv 0$. (Подчеркнем, что это справедливо для плоской поперечной волны в объеме, однако в более сложной геометрии - например, для пространственно-модулированных пучков - этот член отличен от нуля).

Сохраняя этот член и используя (1.8), получаем вместо (1.25)

$$\mathbf{P}_{\text{NL}} = \gamma \vec{\nabla}(\vec{E}_1 \vec{E}_1) + \beta \vec{E}_1 (\vec{\nabla} \vec{E}_1), \quad (1.27)$$

$$\text{где } \gamma = \frac{e^3 n_0(z)}{8m^2 \omega^4}. \quad (1.28)$$

Отступление

С помощью выражений (1.17) и (1.24) выражение (1.27) приводится к виду:

$$\mathbf{P}_{\text{NL}} = \gamma(z) \vec{\nabla}(\vec{E}_1 \vec{E}_1) + \frac{4\pi e^2 n_0(z)}{m\omega^2} \beta \vec{E}_1 (\vec{\nabla} \vec{E}_1) + \frac{4\pi e^2}{m\omega^2} \beta \vec{E}_1 (\vec{E}_1 \vec{\nabla} n_0). \quad (1.29)$$

Из (1.29) следует, что градиентный член с $\vec{\nabla} n_0$ присутствует и при квантовом давлении $\xi=0$ (т.е. и в пренебрежении квантовыми эффектами).

§ 3. Анализ сечения ВГ в модели свободных электронов.

В объеме дивергенция электрического поля равна нулю, и только первый член в выражении (1.27) дает вклад в нелинейную поляризацию. Вблизи поверхности важны оба члена в выражении (1.27).

Сначала рассмотрим \mathbf{P}_{NL}'' (компонента, параллельная поверхности).

Поскольку \vec{E}_1'' непрерывна на границе раздела, и есть трансляционная симметрия вдоль поверхности, то первый член (от $\vec{\nabla}$) в нее вклада не дает (от градиента вклады по z). Отсюда

$$\mathbf{P}_{\text{NL}}'' \approx \beta \vec{E}_1'' \frac{\partial \vec{E}_1^z}{\partial z} \quad (1.30)$$

в пределе ступеньки в $n_0(z)$ из (30) следует δ -функция поляризации на поверхности. Таким образом, на поверхности имеется эффективный токовый экран, излучающий на частоте 2ω . Если проследить вывод (1.30) в обратном направлении, то ясно, что \mathbf{P}_{NL}'' возникает в результате накопления заряда на поверхности, который проявляется в резком изменении \vec{E}_1^z .

Величину поверхностного тока от P_{NL}'' можно получить в рамках теории свободных электронов, т.к. (1.30) интегрируется.

Сложнее обстоит дело с P_{NL}^z . Из (1.27)

$$P_{NL}^z = \gamma(z) \frac{\partial}{\partial z} [(E_1^z)^2] + \beta E_1^z \frac{\partial E_1^z}{\partial z}. \quad (1.31)$$

Это выражение для P_{NL}^z неоднозначно, т.к. и $\gamma(z)$, и $E_1^z(z)$ имеют разрыв на поверхности.

P_{NL}^z частично обусловлена быстрым изменением E_1^z и частично тем, что отклик электрона на поверхности не обладает симметрией инверсии. Поэтому P_{NL}^z сложнее P_{NL}'' .

Даже когда (1.31) можно проинтегрировать по z , остается неясным, где поместить токовый экран (над или под поверхностью).

РЕЗЮМЕ (весьма неутешительное):

Теория свободных электронов даже для полей первого порядка дает разумный ответ, только при предположении, что равновесная плотность электронов $n_0(z)$ имеет скачок на границе в виде ступеньки. Конечно это весьма искусственное предположение, что в целом вызывает подозрение к правильности такого подхода и такой модели. О ВГ однозначных выводов сделать тем более нельзя.

Гидродинамическая теория генерации ВГ.

Можно, в принципе, записать полную систему микроскопических уравнений (1.9 - 1.14) для всех точек среды, включая объем металла. Однако в глубине металла членами, содержащими \hat{L} в уравнениях (1.10) и (1.12), можно пренебречь, т.к. они приводят к поправкам порядка $\frac{\lambda_F}{\lambda} \ll 1$, где λ - свет в вакууме, λ_F - фермиевская длина волны электрона.

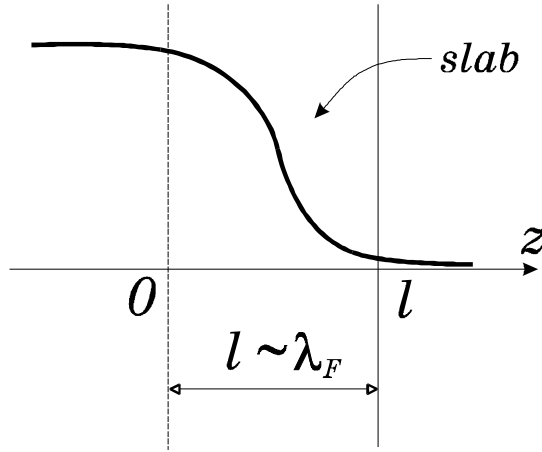


Рис. 1.3

При $0 < z < l$ членом с \hat{L} пренебречь нельзя, однако можно упростить подход, рассматривая концепцию токового экрана.

При $l \ll \lambda$ "кромку" (slab) с токами на 2ω можно рассматривать как излучающий экран, интересуясь только интегралами от плотности тока в "кромке" и не интересуясь деталями распределения токов в "кромке" полубесконечного металла.

Для полей второго порядка в объеме был получен результат, совпадающий с приближением свободных электронов.

$$\mathbf{P}_2(\mathbf{r}) = \chi(\Omega)\mathbf{E}_2(\mathbf{r}) + \frac{e^3 n_0}{8m^2 \omega^4} \vec{\nabla}(\mathbf{E}_1(\mathbf{r})\mathbf{E}_1(\mathbf{r})), \quad (1.32)$$

где $\Omega = 2\omega$,

$$\chi(\omega) = -\frac{e^2 n_0}{m\omega^2} \quad (1.33)$$

$$\varepsilon(\omega) = 1 + 4\pi\chi(\omega) = 1 - \frac{4\pi e^2 n_0}{m\omega^2} \equiv 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2},$$

где n_0 - объемная равновесная плотность электронов.

В области кромки ("slab" на Рис. 1.4) уравнения сложнее, однако нам важна величина интеграла от плотности тока в этой области - мы можем пренебречь эффектами запаздывания и детали пространственного распределения излучающей поляризации нам не важны.

Итак, важен интеграл от $\mathbf{j}_2(z) = \frac{d\mathbf{P}_2}{dt}$:

$$-i\Omega \mathbf{Q} \exp(i\mathbf{k}_\parallel \mathbf{r}) = -i\Omega \int_0^l \mathbf{P}_2(z) \exp(i\mathbf{k}_\parallel \mathbf{r}) dz \quad (1.34)$$

Этот интеграл излучает как эффективный токовый экран, поскольку $\frac{l}{\lambda} \ll 1$.

$\mathbf{k}_\parallel (k_x, k_x, 0)$ - волновой вектор линейных полей в плоскости

$$\mathbf{K}_\parallel = 2\mathbf{k}_\parallel$$

и в уравнениях (1.32) и (1.34) мы для полей используем выражения типа:

$$\mathbf{f}_1(\mathbf{r}) = f_1(z) \exp(i\mathbf{k}_\parallel \mathbf{r}) \text{ и } \mathbf{f}_2(\mathbf{r}) = f_2(z) \exp(i\mathbf{K}_\parallel \mathbf{r}) \quad (1.35)$$

Для p-поляризованного света накачки имеем:

$$\mathbf{E}_1(z) = \tilde{z} E_1^z(z) + \tilde{k}_\parallel E_1^k(z), \quad (1.36)$$

где $\tilde{k}_{II} = \frac{k_{II}}{|k_{II}|}$, и для нелинейного тока (1.34) можно получить:

$$Q^k = \frac{e}{2m\omega^2} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{4\pi} \right] E_1^k(z=0^-) E_1^z(z=0^-). \quad (1.37)$$

Выражение (1.37) совпадает с (1.30), которое получено в приближении свободных электронов, т.к. в обоих приближениях суммарный поверхностный заряд, проявляющийся в разности нормальных компонент поля накачки \mathbf{E}_1 внутри и вне металла, одинаков.

Для нормальной компоненты можно было бы решать уравнение для $P_2^z(z)$, но можно упростить себе жизнь и ввести как феноменологический параметр для кромки новую "эффективную плазменную частоту" для токов ВГ в кромке ω_0 и тогда через неё выразить нормальную компоненту нелинейного тока:

$$Q^z = - \frac{e}{2m(\omega_0^2 - \Omega^2)} \left[\frac{\varepsilon(\omega) - 1}{4\pi} \right] \left[\frac{\varepsilon(\omega) + 3}{2} \right] \left\{ E_1^z(z=0^-) \right\}^2. \quad (1.38)$$

Величина Q^z содержит информацию об особенностях движения электронов по нормали к поверхности в кромке, которую не содержит приближение свободных электронов.

Феноменологический подход Рудника - Штерна

Рудник и Штерн записали тангенциальную и нормальную компоненты нелинейного тока в кромке в феноменологическом виде, введя феноменологические параметры b и a :

$$Q^k = \frac{e^3 \bar{n}_0 b}{2m^2 \omega^4} E_1^k(z=0^-) E_1^z(z=0^-) \quad (1.39)$$

$$Q^z = \frac{e \omega_p^2 a}{2m^2 \omega^4} \left[E_1^z(z=0^-) \right]^2,$$

где считали a и b величинами по модулю порядка 1.

Эта феноменология совпадает с предыдущим феноменологическим подходом с введением эффективной плазменной частоты, если выполняются следующие соотношения:

$$b = -1 \text{ и } a = -2 \frac{(\omega_p^2 - \Omega^2)}{(\omega_0^2 - \Omega^2)}. \quad (1.40)$$

Т.е. в нерезонансном случае, когда $\omega_0 \approx \omega_p$ и $\Omega \ll \omega_p$, рудник-штерновские параметры a и b по модулю порядка 1.

С другой стороны, при $\omega_0 = \Omega = 2\omega$ рудник-штерновский параметр a , ответственный за нормальную компоненту нелинейного тока, которая и

определяет, в первую очередь, интенсивность генерации р-поляризованной ВГ, может значительно возрастать в резонансе: $|a| \gg 1$.