

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
ИНСТИТУТ ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ ИМ. Л.Д. ЛАНДАУ
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

На правах рукописи

ПАРФЕНЬЕВ ВЛАДИМИР МИХАЙЛОВИЧ

**Нелинейные явления в плазмоне и
гидродинамике: теория спазера и генерация
завихренности поверхностными волнами**

01.04.02 – теоретическая физика

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

Научный руководитель

член-корр. РАН, д. ф.-м. н.

Лебедев Владимир Валентинович

Черноголовка – 2016

Оглавление

Введение	4
Глава 1. Сдвиг частоты генерации в спазере	11
1.1. Принципы работы спазера	11
1.2. Уравнения Блоха	13
1.3. Собственная мода и порог генерации	17
1.4. Интенсивность излучения спазера	19
1.5. Деформация собственной моды	23
1.6. Выводы	26
Глава 2. Тепловые и прочностные явления в плазмонике	27
2.1. Нагрев в стационарном режиме	28
2.2. Нагрев в импульсном режиме	33
2.3. Пондеромоторные силы	36
2.4. Выводы	38
Глава 3. Квантовая теория спазера	40
3.1. Физическая модель и методы	42
3.2. Макроскопические уравнения и порог генерации	45
3.3. Квантовые флуктуации ниже порога генерации	46
3.4. Квантовые флуктуации выше порога генерации	48
3.5. Численные параметры и обсуждение	53
3.6. Выводы	58
Глава 4. Генерация завихренности поверхностными волнами	59
4.1. Влияние вязкости в линейном приближении	60
4.2. Нелинейная генерация вертикальной завихренности	63
4.3. Узкополосная накачка	65

4.4. Анализ экспериментальных данных	68
4.5. Стоксов дрейф	72
4.6. Выводы	74
Глава 5. Завихренность на поверхности смектических пленок	76
5.1. Движение пленки в вакууме	77
5.2. Влияние окружающего воздуха	81
5.3. Обсуждение результатов	85
5.4. Выводы	88
Заключение	90
Публикации по теме диссертации	94
Список литературы	95
Приложение А. Четырехуровневая модель активных молекул	103
Приложение Б. Уравнение движения в P-представлении . . .	105
Приложение В. Поле скорости в линейном приближении . . .	108
Приложение Г. Завихренность для пленки в вакууме	110

Введение

Многие явления в окружающем нас мире носят нелинейный характер и описываются нелинейными уравнениями. Ряд методов теоретической физики позволяет решать такие уравнения и проникать в суть этих явлений. Часто одни и те же методы позволяют добиться успеха в задачах, которые возникают в совершенно разных областях науки. Данная диссертация посвящена анализу некоторых нелинейных явлений, которые возникают в задачах электродинамики металл-диэлектрических систем и гидродинамики поверхностных волн.

Актуальность темы исследования. В последнее время много внимания уделяется изучению поверхностных плазмонов в композитных наносистемах — поверхностных модах, которые возбуждаются на границе раздела металл-диэлектрик [1]. Такие моды позволяют локализовать оптическую энергию на наномасштабе, что позволяет использовать их в практических целях: поверхностно-усиленная рамановская спектроскопия [2], создание сверхчувствительных сенсоров и детекторов [3], диагностика и терапия раковых заболеваний [4], разработка плазмонных интерконнектов [5] и оптических компьютеров [6] и многое другое. Ключевой составляющей многих из этих технологий является активное устройство, своеобразный аналог лазера, в котором роль фотонов в резонансной полости выполняют поверхностные плазмоны [7]. За таким устройством закрепилось название спазер (от англ. 'spaser' — surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation) или нанолазер, первые экспериментальные образцы которого были созданы в 2009 году [8, 9].

Роль резонатора в таких устройствах выполняет металлическая наночастица. Вследствие омических потерь добротность такого резонатора невелика, $Q \sim 15$, для устройств, которые обеспечивают локализацию моды в трех измерениях [8]. Ожидается, что столь низкое значение добротности может привести к существенным отличиям в работе спазера по сравнению с

обычным лазером, в котором добротность резонатора составляет $Q \sim 10^5$. Представляет интерес построить теорию функционирования нанолазера, существенно нелинейной системы, выявить особенности его поведения и провести сравнение с обычным лазером. В ходе исследования следует принять во внимание тепловые явления в системе. Высокие омические потери могут приводить к повышению температуры металлической наночастицы, что, в свою очередь, еще больше увеличивает омические потери и, таким образом, формирует положительную обратную связь. Это нелинейное явление может влиять на работу устройства и требует отдельного рассмотрения.

Вторая часть диссертации посвящена нелинейному явлению генерации вихревого движения в горизонтальной плоскости поверхностными волнами. Данное явление было обнаружено и исследовано экспериментально [10, 11], однако сам механизм генерации вихрей долгое время оставался загадкой. Подобный механизм может иметь отношение к движению поверхности океана, к распространению планктона и загрязняющих веществ вблизи его поверхности, а также к проблеме эффективного перемешивания [12, 13]. Представляет интерес разобраться с вышеупомянутым нелинейным механизмом генерации вихрей и определить степень его фундаментальности (какую роль он играет в динамике похожих систем).

Цели диссертационной работы. Данная работа ставит перед собой две главных цели: изучить особенности функционирования плазмонного нанолазера (по сравнению с обычным лазером) и описать нелинейный механизм генерации вертикальной завихренности поверхностными волнами. Для достижения поставленных целей были предприняты следующие шаги:

1. Построена полуклассическая теория спазера. В рамках модели исследован сдвиг частоты генерации лазера за счет деформации структуры лазирующей моды.
2. Исследованы тепловые явления в системах с плазмонным резонансом.

Найдены ограничения, накладываемые на систему в связи с тепловыми явлениями и за счет действия пондеромоторных сил.

3. Построена квантовая теория спазера в приближении низкодобротного резонатора. Исследован механизм сужения спектральной линии выше порога генерации, а также статистические свойства излучения.
4. Построена количественная теория генерации горизонтальных вихрей поверхностными волнами и проведено сравнение с экспериментом.
5. Предсказано явление генерации вертикальной завихренности в свободно подвешенных смектических пленках и построено его количественное описание.

Научная новизна и методы исследования. Все результаты, которые выносятся на защиту, являются оригинальными. Достоверность гарантируется получением результатов из первых принципов с использованием методов, хорошо зарекомендовавших себя при решении аналогичных задач, а также сравнением с экспериментальными данными (если имеется такая возможность) и теоретическими работами других исследовательских групп. Полуклассическая теория спазера была построена на основе уравнений Максвелла-Блоха, эффекты деформации лазирующей моды учитывались в рамках теории возмущений по параметру обратной добротности $1/Q$. Тепловые явления были проанализированы на основе уравнения теплопроводности, пондеромоторные силы принимались во внимание в рамках фундаментальных уравнений электродинамики. Квантовая теория спазера была построена аналогично квантовой теории обычного лазера с использованием формализма матрицы плотности. Для описания нелинейного механизма генерации вихрей поверхностными волнами решалось уравнение Навье-Стокса. Решение было получено в рамках теории возмущений с двумя малыми параметрами: небольшая амплитуда поверхностных волн и слабость их затухания (вследствие

небольшой вязкости жидкости). Теория для свободно подвешенных смектических пленок (в вакууме и воздухе) была построена в рамках аналогичных предположений, но с привлечением дополнительного уравнения для описания динамики смектика.

Теоретическая и практическая значимость. Результаты, изложенные в диссертации, позволяют глубже понять механизмы работы спазера, что необходимо для успешного применения данного устройства в практических приложениях. Анализ тепловых явлений в плазмонных наносистемах представляет не только фундаментальный интерес, но также полезен при проектировании экспериментов в данной области. Нелинейное явление генерации завихренности поверхностными волнами — одновременно новое и фундаментальное. Результаты этой части диссертации могут использоваться для анализа движения поверхности океана и для проектирования соленоидальных течений заданной формы на поверхности жидкости, что может найти свое применение, например, в задачах эффективного перемешивания. Также теория нелинейной генерации завихренности позволяет глубже понять явление турбулентности, возбуждаемой поверхностными волнами [10, 11], и разработать количественную основу для его описания.

Положения, выносимые на защиту. К защите представляются следующие оригинальные результаты:

1. Открыто явление сдвига частоты генерации плазмонного нанолазера в зависимости от интенсивности его излучения. Этот сдвиг связан с деформацией структуры лазирующей моды, которая обусловлена пространственным 'выгоранием' активной среды (spatial hole burning). Представлена аналитическая схема, которая позволяет количественно анализировать данное явление.
2. Исследована зависимость температуры металлической наногранулы от числа квантов возбужденных в ней плазмонных колебаний. Показано,

что в стационарном режиме существует критическое число квантов, при котором температура системы неограниченно возрастает (если пренебречь тепловым излучением гранулы). На практике это означает, что металлическая частица расплавится при приближении числа квантов к критическому значению. Эффект обусловлен положительной обратной связью: нагрев происходит вследствие омических потерь, которые возрастают при увеличении температуры системы. Получено аналитическое выражение для критического числа плазмонов. В импульсном режиме возбуждения системы данное ограничение на число квантов удается преодолеть. В этом случае получена оценка для числа квантов, при котором начинается деформация наногранулы пондеромоторными силами.

3. Построена квантовая теория спазера в предположении о низкодобротном резонаторе. Найдено аналитическое выражение для среднего числа квантов в резонаторе выше и ниже порога генерации. Проанализирована статистика излучения, найдены аналитические выражения для первой и второй корреляционных функций ($g^{(1)}(\tau)$ и $g^{(2)}(\tau)$). Показано, что в случае спазера механизм сужения спектральной линии может существенно отличаться от случая высокодобротного лазера. В данном случае среднее число квантов в резонаторе вблизи порога генерации (где происходит сужение спектральной линии) может быть меньше единицы (практически нет вынужденного излучения), а информация о когерентности системы сохраняется в состоянии активных атомов, которые релаксируют гораздо медленнее, чем происходит затухание плазмонных колебаний.
4. Исследовано нелинейное явление генерации вертикальной компоненты завихренности поверхностными волнами. Получено аналитическое выражение для вертикальной завихренности в терминах отклонения по-

верхности жидкости от положения равновесия. Обнаружено, что значение завихренности на поверхности жидкости не зависит от вязкости жидкости, хотя само явление обусловлено ненулевой вязкостью — новый пример вязкой аномалии в гидродинамике.

5. Исследовано вихревое движение в свободно подвешенных тонких смектических пленках, которые совершают колебания в поперечном направлении (изгибная мода). Получено аналитическое выражение для скорости вихревого движения в плоскости пленки в терминах отклонения поверхности пленки от равновесия. Были проанализированы пленки, находящиеся в вакууме и в воздухе. Показано, что окружающий воздух существенно влияет на изучаемое явление, в частности, он изменяет закон дисперсии поперечных колебаний, для которого было получено аналитическое выражение.

Апробация результатов. Основные результаты диссертации докладывались автором на следующих конференциях:

- Международная конференция "Landau Days 2015", Черногоровка, 2015 (устный доклад).
- Международная конференция "Days on Diffraction 2014", Санкт-Петербург, 2014 (устный доклад).
- "VI Всероссийский семинар по волоконным лазерам", Новосибирск, 2014 (устный доклад).
- Международная конференция "Days on Diffraction 2012", Санкт-Петербург, 2012 (устный доклад).

Материалы диссертации также представлялись на семинарах в ИТФ им. Л.Д. Ландау РАН, ИАиЭ СО РАН (г. Новосибирск) и Лос-Аламосской национальной исследовательской лаборатории (США).

Публикации. Материалы диссертации опубликованы в 8 печатных работах, из них 5 статей в рецензируемых журналах из списка ВАК и 3 статьи в сборниках трудов конференций.

Личный вклад автора. Все изложенные в диссертации результаты получены автором лично, либо при его непосредственном участии. Автором осуществлялась разработка теоретических методов исследования, выполнение численного моделирования, обсуждение результатов и подготовка публикаций.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав, каждая из которых соответствует оригинальному результату выносимому на защиту, заключения, списка публикаций автора по теме диссертации, списка литературы и четырех приложений. Общий объем диссертации 110 страниц, она включает в себя 16 рисунков. Библиография насчитывает 82 наименования.

Глава 1

Сдвиг частоты генерации в спазере

В данной главе рассматриваются принципы работы плазмонного нанолазера и строится полуклассическая теория его функционирования. Одним из первых такой анализ выполнил М. Штокман [14]. Подобный подход позволяет определить порог и частоту генерации нанолазера, но не дает никакой информации о ширине спектральной линии. В рамках теоретической модели, рассмотренной в работе [14], частота генерации спазера получается не зависящей от интенсивности накачки активной среды, более того, она всегда находится между частотой резонансного перехода в активных молекулах и частотой плазмонного резонанса системы. Эти утверждения не соответствуют экспериментальным данным из работ [8, 9].

Чтобы разрешить эти противоречия, нами была построена модель, которая учитывает деформацию лазирующей моды, вызываемую неоднородным истощением активной среды. Степень неоднородности зависит от интенсивности накачки. Показано, что такая деформация приводит к сдвигу частоты генерации спазера. Содержание главы основано на работах автора [15, 16].

1.1. Принципы работы спазера

Рассмотрим металлическую наногранулу размера a , помещенную в электромагнитное поле. Пусть глубина скин-слоя намного превышает размер гранулы, $l_s \gg a$. В этом случае электрическое поле проникает внутрь гранулы и вызывает смещение электронов, Рис. 1.1(а). На смещенные электроны действует кулоновская возвращающая сила. Величина этой силы совместно с эффективной массой электронов определяет частоту поверхностного плазмона ω_{sp} . При совпадении частоты ω_{sp} и частоты приложенного поля в системе

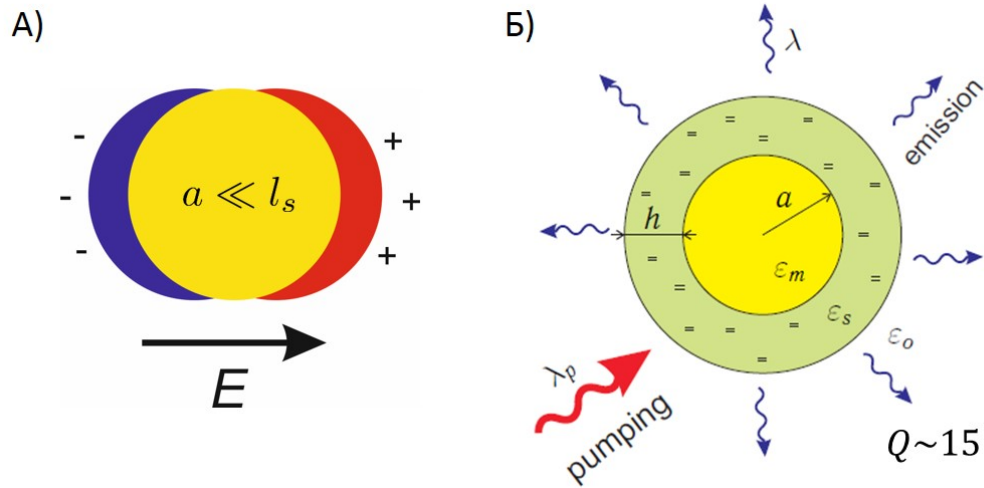


Рис. 1.1. (а) Плазмонный резонатор и (б) схематическое устройство спазера.

создаются условия для плазмонного резонанса [1], который приводит к усилению поля внутри и вблизи гранулы.

Полная энергия системы складывается из потенциальной энергии электронов в электрическом поле и их кинетической энергии. Взаимодействие с магнитным полем мало по параметру $v_F/c \ll 1$, где v_F — скорость Ферми электронов, а c — скорость света. Таким образом, магнитный вклад в полную энергию пренебрежимо мал (квазистатическое приближение). По этой же причине масштаб локализации энергии в системе является размер гранулы a , а не длина электромагнитной волны $\lambda \gg a$.

Металлическая наногранула играет роль резонатора для поверхностных плазмонов. Его добротность Q главным образом определяется омическими потерями. Для устройств, которые обеспечивают локализацию моды в трех измерениях, $Q \sim 15$, при двумерной локализации удается добиться значений $Q \sim 120$, см. работы [8, 17]. Для компенсации потерь гранулу окружают диэлектрической оболочкой со встроенными активными молекулами. За счет внешней накачки активная среда запасает в себе энергию, которую она затем может передавать плазмонным колебаниям, Рис. 1.1(б). Для эффективной передачи энергии необходимо, чтобы частота перехода в активных молекулах ω_{ul} была близка к частоте плазмонного резонанса ω_{sp} . Принцип работы

устройства аналогичен принципу работы лазера, только роль фотонов в резонаторе выполняют поверхностные плазмоны.

В дальнейшем мы будем рассматривать простейшую геометрию устройства, предложенную в экспериментальной работе [8], Рис. 1.1(б). Параметры системы подобраны таким образом, что плазмонный резонанс соответствует возбуждению дипольной моды. Потери, связанные с излучением, малы по сравнению с омическими потерями по параметру $(ka)^3/\epsilon''_m \ll 1$, где $k = \omega/c$ — волновой вектор генерируемого излучения, а ϵ''_m — мнимая часть диэлектрической проницаемости металла [1].

Отметим, что минимальный размер гранулы $a \sim v_F/\omega$. При меньших размерах существенным становится эффект рассеяния электронов на стенках гранулы, что приводит к дополнительным потерям. Таким образом, размер резонатора должен быть в диапазоне $v_F/\omega \ll a \ll l_s$. Для золотой частицы (низкие омические потери) и для частот в видимой области спектра (необходимо для практических приложений) это соответствует $1 \text{ nm} \ll a \ll 25 \text{ nm}$. Для размеров $a \sim 1 \text{ nm}$ также становится неприменимо макроскопическое описание свойств вещества [1, 18].

Основное достоинство спазера по сравнению с обычным лазером заключается в его субволновом размере. Долгое время считалось, что источник когерентного излучения должен иметь размер не меньше половины генерируемой длины волны — условие резонанса в оптической системе. Использование плазмонного резонатора позволило преодолеть этот предел и открыло дорогу новым технологиям [1].

1.2. Уравнения Блоха

Рассмотрим процесс накачки активной среды — создание инверсной населенности у активных молекул, структура уровней которых изображена на Рис. 1.2. Внешняя электромагнитная волна с частотой ω_p и интенсивностью

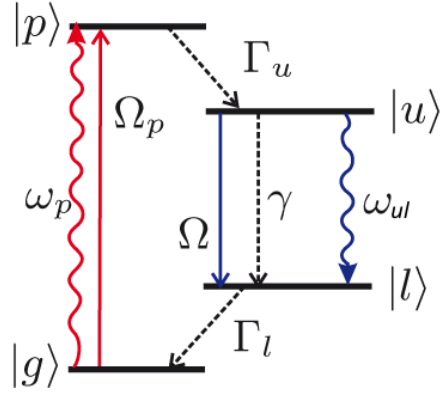


Рис. 1.2. Структура энергетических уровней активных молекул.

I_p возбуждает активные молекулы, вызывая переход $|g\rangle \rightarrow |p\rangle$. Активные молекулы быстро и безызлучательно переходят из $|p\rangle \rightarrow |u\rangle$ и из $|l\rangle \rightarrow |g\rangle$ за счет возбуждения фононов или других внутренних степеней свободы. Инверсная населенность создается между уровнями $|u\rangle$ и $|l\rangle$, частота этого перехода ω_{ul} предполагается близкой к частоте генерации спазера ω .

Для начала будем описывать активные молекулы как двухуровневые системы [19], оставив во внимании только уровни $|u\rangle$ и $|l\rangle$. В этом случае накачка вводится феноменологически. Впоследствии мы свяжем параметры накачки с параметрами расширенной четырехуровневой модели активных молекул. Молекулы взаимодействуют с излучением спазера, их матрица плотности и гамильтониан системы могут быть представлены в виде:

$$\hat{\rho} = \frac{1}{2} + \begin{pmatrix} N/2 & \rho_{ul} \\ \rho_{ul}^* & -N/2 \end{pmatrix}, \quad \hat{H} = \begin{pmatrix} \hbar\omega_u & -\mathbf{d}\mathbf{E} \\ -\mathbf{d}^*\mathbf{E} & \hbar\omega_l \end{pmatrix}. \quad (1.1)$$

Величина N (изменяется от -1 до 1) называется населенностью и определяет вероятность найти молекулу в возбужденном состоянии, \mathbf{d} — дипольный момент молекулы, ρ_{ul} — недиагональный элемент матрицы плотности, который определяет поляризацию молекулы, $\langle \mathbf{d} \rangle = \text{Tr}(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}) = \mathbf{d}\rho_{ul}^* + \mathbf{d}^*\rho_{ul}$. Звездочкой обозначена операция комплексного сопряжения.

Динамика величин N и ρ_{ul} подчиняется уравнению фон Неймана $i\hbar\partial_t\hat{\rho} = [\hat{H}, \hat{\rho}]$, в которое необходимо добавить феноменологические слагаемые, опи-

сывающие процессы накачки и дефазировки [19]:

$$\partial_t N = \frac{2i}{\hbar} (\mathbf{d}\mathbf{E}\rho_{ul}^* - \mathbf{d}^*\mathbf{E}\rho_{ul}) - \frac{N - N_s}{\tau}, \quad (1.2)$$

$$\partial_t \rho_{ul} = -i\omega_{ul}\rho_{ul} - \frac{i}{\hbar} N \mathbf{d}\mathbf{E} - \Gamma \rho_{ul}. \quad (1.3)$$

В отсутствии плазмонных колебаний величина населенности релаксирует к равновесному значению N_s за характерное время τ . Константа Γ описывает скорость потери когерентности молекул за счет их взаимодействия с окружением (например, с фононами).

Поскольку мы находимся вблизи резонанса, $\Delta = \omega - \omega_{ul} \ll \omega$, то разумно перейти во вращающуюся с частотой ω систему отсчета, $\rho_{ul} = \rho e^{-i\omega t}$. Пренебрегая слагаемыми, осциллирующими с частотой $\sim 2\omega$ (приближение вращающейся волны), мы приходим к уравнениям

$$\partial_t N = -2\text{Im}[\Omega\rho^*] - (N - N_s)/\tau, \quad (1.4)$$

$$\partial_t \rho = -\Gamma_\Delta \rho - iN\Omega/2. \quad (1.5)$$

Здесь $\Gamma_\Delta = \Gamma - i\Delta$, $\Omega = \mathbf{d}\mathbf{E}'/\hbar$ — частота осцилляций Раби, \mathbf{E}' — комплексная амплитуда электрического поля. Известно, что учет быстро осциллирующих поправок приводит к сдвигу частоты резонанса между молекулами и внешним полем (сдвиг Блоха-Сигерта [19]), который по порядку величины составляет Ω^2/ω . Этот эффект значительно слабее сдвига частоты, который мы будем обсуждать далее в этой главе, поэтому приближение вращающейся волны полностью оправдано.

В дальнейшем нас будет интересовать стационарный режим работы плазмонного нанолазера. Приравнивая правые части уравнений (1.4)-(1.5) к нулю, находим стационарное решение

$$N = \frac{N_s}{1 + \tau\Gamma|\Omega|^2/|\Gamma_\Delta|^2}, \quad \rho = \frac{-iN_s\Omega\Gamma_\Delta^*/2}{|\Gamma_\Delta|^2 + \tau\Gamma|\Omega|^2}. \quad (1.6)$$

Феноменологические параметры накачки N_s и τ можно связать с физическими характеристиками накачивающей волны и параметрами расширенной четырехуровневой модели активных молекул, см. Рис. 1.2. В данной модели мы

имеем дело с двумя подсистемами $|g\rangle, |p\rangle$ (сектор накачки) и $|l\rangle, |u\rangle$ (сектор излучения), которые связаны друг с другом быстрыми безызлучательными переходами $|p\rangle \rightarrow |u\rangle$ и $|l\rangle \rightarrow |g\rangle$. Кроме того, мы для простоты предполагаем, что частота накачивающей волны ω_p в точности совпадает с расстоянием между уровнями $|g\rangle$ и $|p\rangle$. В этом случае справедливы следующие соотношения (детали вывода находятся в приложении A):

$$N_s = \frac{1}{1 + 2\gamma\Gamma_p/\Omega_p^2}, \quad \tau = \frac{N_s\Gamma_p}{\Omega_p^2}, \quad (1.7)$$

где γ — скорость спонтанного излучения активных молекул, Ω_p — частота осцилляций Раби в секторе накачки, Γ_p — скорость дефазировки в секторе накачки. Отметим, что мы также предполагаем $\gamma, \Omega_p \ll \Gamma, \Gamma_p$, что соответствует быстрой дефазировке и достаточно слабой накачке системы. Последнее предположение оправдано, поскольку в экспериментальной работе [8] не наблюдается явления насыщения накачки.

Поляризация активных молекул изменяет диэлектрическую проницаемость внешней оболочки спазера, которую можно представить в виде $\hat{\epsilon}_s = \epsilon_s^0 + \hat{\epsilon}_s^a$. Первое слагаемое соответствует диэлектрической проницаемости оболочки в отсутствие активных молекул, второе — учитывает поправку, связанную с этими молекулами. Для поправки справедливо выражение

$$\mathbf{P}_a = \hat{\epsilon}_s^a \mathbf{E} / (4\pi) = n \langle \mathbf{d}^* \rho_{ul} + \mathbf{d} \rho_{ul}^* \rangle_{\mathbf{d}}, \quad (1.8)$$

где n — концентрация активных молекул в оболочке. Здесь и далее мы предполагаем, что в малом объеме (где поле можно считать однородным) находится большое число активных молекул с произвольно ориентированным дипольным моментом. Усреднение по направлению дипольного момента обозначено символом $\langle \dots \rangle_{\mathbf{d}}$. Строго говоря, существует корреляция между дипольными моментами в секторе накачки (определяет Ω_p) и секторе излучения, поэтому усреднение нужно выполнять аккуратно. Мы же в дальнейшем будем считать, что усреднения можно провести независимо. Это упрощение существен-

но облегчает дальнейший анализ и позволяет определить основные характеристики спазера. Кроме того, для простоты вычислений мы будем пренебрегать рассеянием накачивающей волны на исследуемом объекте, т.е. мы будем считать, что накачка всех активных молекул одинакова. Тогда, с помощью стационарного решения (1.6), получаем

$$\mathbf{P}_a = \frac{nN_s(\Delta - i\Gamma)}{2} \left\langle \frac{\Omega \mathbf{d}^*}{|\Gamma_\Delta|^2 + \tau\Gamma|\Omega|^2} \right\rangle_{\mathbf{d}} e^{-i\omega t} + c.c. \quad (1.9)$$

Поляризация активных молекул является нелинейной функцией амплитуды поля плазмонных колебаний (или параметра Ω). Эта нелинейность определяет механизм установления амплитуды излучения спазера: увеличение интенсивности излучения приводит к уменьшению поляризации, а значит и к уменьшению потока энергии от активной среды к плазмонным колебаниям. В случае слабых полей (вблизи порога генерации, когда можно пренебречь нелинейностью) усреднение по направлению дипольного момента может быть выполнено аналитически, и для поправки к диэлектрической проницаемости мы получаем

$$\hat{\epsilon}_s^a = \frac{2\pi}{3\hbar} \frac{nN_s |d|^2}{(\Delta + i\Gamma)}. \quad (1.10)$$

Мнимая часть этого выражения отрицательна. Это соответствует ситуации, когда активная среда передает запасенную энергию плазмонам.

1.3. Собственная мода и порог генерации

В предыдущем разделе мы выяснили, как активные молекулы меняют диэлектрическую проницаемость внешней оболочки спазера. Теперь мы можем решить уравнения Максвелла для рассматриваемой системы и определить структуру лазирующей моды. Как отмечалось ранее в разделе 1.1, в нашем случае справедливо квазистатическое приближение. Действительно, электрическое поле существенно изменяется на масштабах порядка размера

системы a , поэтому в уравнении $\text{rot } \mathbf{E} = -(1/c)\partial_t \mathbf{B}$ правая часть мала по параметру $ka \ll 1$. Пренебрегая ей, мы получаем, что электрическое поле \mathbf{E} потенциально, т.е. его можно представить в виде градиента от некоторого потенциала, $\mathbf{E} = \nabla\Phi$. Поскольку в нашей системе отсутствуют внешние заряды, то потенциал поля должен удовлетворять уравнению

$$\text{div}(\hat{\varepsilon}(\mathbf{r}) \text{grad } \Phi) = 0. \quad (1.11)$$

Вблизи порога генерации спазера, зависимость оператора $\hat{\varepsilon}(\mathbf{r})$ от координаты \mathbf{r} носит тривиальный характер. Поэтому уравнение (1.11) сводится к уравнению Лапласа, $\nabla^2\Phi = 0$, которое необходимо дополнить условием непрерывности величин Φ и $\varepsilon\partial_n\Phi$ на границах раздела, где \mathbf{n} — единичный вектор нормали к этим границам. Для геометрии, изображенной на Рис. 1.1(б), решение этой задачи, конечное в центре наночастицы и стремящееся к нулю на бесконечности, имеет вид:

$$\Phi = \begin{cases} r^l Y_{lm}, & r \leq a, \\ Ar^l Y_{lm} + Br^{-(l+1)} Y_{lm}, & a < r \leq a + h, \\ Cr^{-(l+1)} Y_{lm}, & r > a + h. \end{cases} \quad (1.12)$$

Неизвестные константы определяются из граничных условий. Предполагая, что в резонансе с активными молекулами находится дипольная мода ($l = 1$), находим, что решение существует тогда и только тогда, когда

$$\frac{(\varepsilon_m + 2\varepsilon_s)(\varepsilon_s + 2\varepsilon_o)}{(\varepsilon_s - \varepsilon_m)(\varepsilon_s - \varepsilon_o)} = 2 \left(1 + \frac{h}{a}\right)^{-3}, \quad (1.13)$$

причем,

$$A = \frac{\varepsilon_m + 2\varepsilon_s}{3\varepsilon_s}, \quad B = \frac{a^3(\varepsilon_s - \varepsilon_m)}{3\varepsilon_s}, \quad C = A(a + h)^3 + B. \quad (1.14)$$

Существование нетривиального решения означает генерацию в системе. Соотношение (1.13) комплексное, поэтому оно содержит в себе два уравнения. Используя соотношение (1.10) и зная дисперсию диэлектрических проницаемостей остальных веществ, мы можем определить из него частоту ω_{th}

излучения спазера в пороге генерации и необходимую интенсивность накачки, выраженную в виде минимально необходимой равновесной населенности $N_{s,th}$. В пределе высокой добротности моды Q , когда мнимые части диэлектрических проницаемостей намного меньше действительных, мнимая часть соотношения (1.13) ответственна за энергетический баланс, а действительная часть определяет условие резонанса.

Отметим, что исследуемая дипольная мода является трехкратно вырожденной, $m = 0, \pm 1$. В реальных приложениях это вырождение снимается за счет неидеальности изготовления сферических гранул и/или за счет поляризации накачивающей волны. В дальнейшем мы считаем металлическую гранулу одномодовым резонатором, оставляя вопрос вырождения моды за рамками исследования.

1.4. Интенсивность излучения спазера

Перейдем к изучению надпорогового режима. Структура дипольной моды нетривиальным образом зависит от координаты \mathbf{r} , поэтому, вследствие нелинейного механизма, поляризация активных молекул (1.9), а вместе с ней и оператор $\hat{\varepsilon}(\mathbf{r})$ будут также нетривиально зависеть от координаты \mathbf{r} . В этом случае будем решать уравнение (1.11), используя теорию возмущений. Вклад в уравнение от поляризации активных молекул $\hat{\varepsilon}_s^a$ будем считать малым. Формально, малым параметром теории возмущений будет обратная добротность $1/Q \ll 1$. Это означает, что и поправка $\hat{\varepsilon}_s^a$, и мнимая часть диэлектрической проницаемости металла ε_m'' малы соответственно по сравнению с диэлектрической проницаемостью оболочки в отсутствие активных атомов ε_s^0 и действительной частью диэлектрической проницаемости металла ε_m' .

Введем в рассмотрение частоту ω_{sp} и потенциал поля Φ^0 поверхностного плазмона. Частота ω_{sp} по определению удовлетворяет уравнению (1.13) в отсутствие накачки и омических потерь, т.е. при $\hat{\varepsilon}_s^a = 0$, $\varepsilon_m'' = 0$. При этих

условиях все диэлектрические проницаемости и коэффициенты (1.14), определяющие пространственное устройство поля, действительны. Введем также оператор $\hat{H}^0 = \text{div} \varepsilon^{(0)} \text{grad}$, где $\varepsilon_m^{(0)} = \varepsilon'_m(\omega_{sp})$, $\varepsilon_s^{(0)} = \varepsilon_s^0$, $\varepsilon_o^{(0)} = \varepsilon_o$. Согласно уравнению (1.11), потенциал поля поверхностного плазмона удовлетворяет соотношению $\hat{H}^0|\Phi^0\rangle = 0$. Введем также обозначение

$$\langle \Phi | \hat{H} | \Psi \rangle = \int dV \Phi^* \hat{H} \Psi. \quad (1.15)$$

Легко показать, что введенный оператор \hat{H}^0 — действительный и самосопряженный. Эти свойства позволяют нам использовать технику теории возмущений, разработанную в формализме квантовой механики, для анализа надпороговой ситуации.

Используя введенные выше обозначения, уравнение (1.11) выше порога генерации можно записать в виде $\hat{H}|\Phi\rangle = 0$, где $\hat{H} = \hat{H}^0 + \delta\hat{H}$ и

$$\delta\hat{H}|\Phi\rangle = \text{div}[\varepsilon_m(\omega) - \varepsilon'_m(\omega_{sp})]\text{grad}\Phi + \text{div}(4\pi\mathbf{P}_a). \quad (1.16)$$

Поляризация активных молекул \mathbf{P}_a определяется полученным ранее выражением (1.9). Теперь рассмотрим соотношение $\langle \Phi | \hat{H} | \Phi \rangle = 0$. Выделяя в нем мнимую и действительную части, приходим к уравнениям:

$$f(u)V_{shell} \frac{2\pi n N_s |E_c|^2 |d|^2}{|\Gamma_\Delta|^2} = \frac{\varepsilon_m''(\omega)}{\Gamma} \int_{core} |E|^2 dV, \quad (1.17)$$

$$\int_{core} |E|^2 dV \left[\varepsilon'_m(\omega) - \varepsilon'_m(\omega_{sp}) + \frac{\Delta}{\Gamma} \varepsilon_m''(\omega) \right] = \langle \Phi | \hat{H}^0 | \Phi \rangle. \quad (1.18)$$

Здесь E_c — поле в центре наночастицы, $u = \tau\Gamma|E_c|^2|d|^2/|\Gamma_\Delta|^2$ — безразмерный параметр, V_{shell} — объем диэлектрической оболочки, и интегралы берутся по объему металлической гранулы. Функция

$$f(u) = \frac{1}{V_{shell}} \int dV \left\langle \frac{|\hat{\Omega}|^2}{1 + u|\hat{\Omega}|^2} \right\rangle_d, \quad (1.19)$$

где $\hat{\Omega}$ — безразмерная частота Раби, зависит не только от параметра u , но также и от пространственной структуры моды Φ . Первое уравнение (1.17)

представляет собой баланс энергий. Из него можно определить установившуюся амплитуду поля выше порога генерации. Второе уравнение (1.18) определяет частоту генерации системы. Отметим, что эти уравнения точные. Также важно понимать, что структура моды Φ , которая входит в уравнение (1.18), связана с частотой генерации ω , для которой это уравнение выполняется.

Будем решать эти уравнения по теории возмущений. В первом порядке по параметру $1/Q$, величина $\langle \Phi | \hat{H}^0 | \Phi \rangle = 0$, и поэтому из (1.18) находим

$$\Delta_{th}^{(1)} = \frac{\omega_{sp} - \omega_{ul}}{1 + \varepsilon_m'' / (\Gamma \partial \varepsilon_m' / \partial \omega)}. \quad (1.20)$$

Это соотношение определяет частоту генерации $\omega_{th}^{(1)}$. Индекс "1" символизирует 1-й порядок теории возмущений. Обратим внимание, что частота генерации остается неизменной, поскольку с заданной точностью можно пренебрегать изменением пространственной структуры моды. Отметим, что частота генерации $\omega_{th}^{(1)}$ лежит между частотой поверхностного плазмона ω_{sp} и частотой резонансного перехода в активных атомах ω_{ul} , что согласуется с результатами работ [14, 20].

Соотношение (1.17) позволяет определить установившуюся амплитуду поля, его пространственная структура с заданной точностью совпадает с Φ^0 . Результаты представлены на Рис. 1.3. Различные кривые соответствуют различным концентрациям активных молекул, т.е. различным интенсивностям накачки в пороге генерации. Качественно результаты совпадают с экспериментом [8] и теорией [14]. Обратим внимание, что безразмерные интенсивности $I = |E_c|^2 |\mathbf{d}|^2 / 2\gamma\Gamma\hbar^2$ и $I_p = |\Omega_p|^2 / 2\gamma\Gamma_p$, отложенные по осям графика на Рис. 1.3, не соответствуют измеряемым в экспериментах интенсивностям излучения спазера и накачивающей волны, но они пропорциональны им. В наших обозначениях отношение I/I_p имеет порядок $(\Omega/\Omega_p)^2$, что может быть как больше, так и меньше единицы. Также отметим, что на Рис. 1.3 нет следов насыщения накачки, что находится в соответствии со сделанными ранее предположениями.

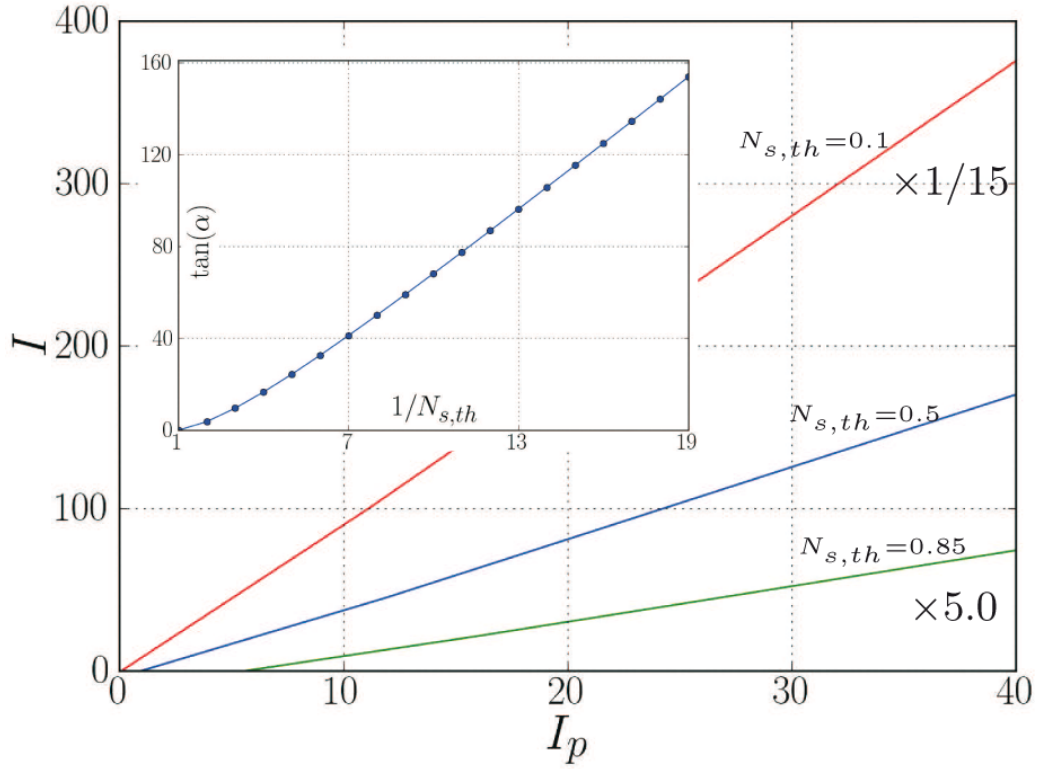


Рис. 1.3. Основной график — зависимость безразмерной интенсивности вынужденного излучения ($I = |E_c|^2 |\mathbf{d}|^2 / 2\gamma\Gamma\hbar^2$) от безразмерной интенсивности накачивающей волны ($I_p = |\Omega_p|^2 / 2\gamma\Gamma_p$). Вставка — тангенс угла наклона основного графика в зависимости от обратной равновесной инверсной населенности в пороге генерации.

Выбор параметра для оси абсцисс на врезке Рис. 1.3 обусловлен решением уравнения (1.17) в случае предела нулевой размерности, когда лазерующая мода однородна в области, содержащей активные молекулы, и их дипольные моменты сонаправлены с электрическим полем. В этом случае усреднения выполняются аналитически, и можно получить результат $I = (\Gamma^2 / |\Gamma_\Delta|^2) (1/N_{s,th} - 1) (I_p - I_{p,th})$.

Здесь и далее численное моделирование проводилось для золотой наногранулы радиусом $a = 7$ nm, толщина диэлектрической оболочки $h = 15$ nm. Диэлектрическая проницаемость оболочки в отсутствии активных молекул $\varepsilon_s^0 = 2.586$, диэлектрическая проницаемость внешнего пространства $\varepsilon_o = 1.77$ в соответствии с экспериментом [8]. Дисперсия диэлектрической проницаемости для золота взята из работы [21]. Параметры активной среды $\hbar\Gamma = 0.25$ eV, $\omega_{ul} = 5.71 \times 10^{14}$ Hz (соответствующая длина волны $\lambda_{ul} = 525$ nm). Для этих

параметров с помощью формул (1.13) и (1.20) можно установить, что частота поверхностного плазмона $\omega_{sp} = 5.73 \times 10^{14}$ Hz (соответствует длине волны $\lambda_{sp} = 523$ nm) и что длина волны генерируемого излучения $\lambda_{th}^{(1)} = 524$ nm.

1.5. Деформация собственной моды

Рассмотрим следующий порядок теории возмущений. В этом порядке $\langle \Phi | \hat{H}^0 | \Phi \rangle = \langle \delta\Phi | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle$. Тогда из соотношения (1.18) следует:

$$V_{core} |E_c^0|^2 \left(\frac{\partial \varepsilon'_m}{\partial \omega} + \frac{\varepsilon''_m}{\Gamma} + \frac{\Delta_{th}}{\Gamma} \frac{\partial \varepsilon''_m}{\partial \omega} \right)_{\omega=\omega_{th}^{(1)}} \delta\Delta = \langle \delta\Phi | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle. \quad (1.21)$$

Отметим, что в пороге генерации $\delta\Delta \neq 0$, поскольку раньше мы нашли её с точностью $O(1/Q)$. Теперь нам надо найти $\delta\Phi$ в главном порядке по возмущению.

Для этого будем решать уравнение $(\hat{H}^0 + \delta\hat{H})|\Phi\rangle = 0$. Нам нужно найти $\delta\hat{H}$ с точностью $O(1/Q)$. Тогда структуру моды в нелинейном механизме поляризации активной среды можно брать как у Φ^0 , поскольку сама поляризация уже содержит малость $O(1/Q)$. В итоге $\delta\hat{H}$ принимает вид

$$\delta\hat{H}^m = \text{div } \delta\varepsilon_m \text{ grad}, \quad \delta\hat{H}^a |\Phi\rangle = 4\pi \mathbf{P}_a, \quad (1.22)$$

где $\delta\varepsilon_m = (\partial \varepsilon'_m / \partial \omega)(\omega - \omega_{sp}) + i\varepsilon''_m(\omega)$. С нужной степенью точности в последнем выражении можно положить $\omega = \omega_{th}^{(1)}$. Вся сложность состоит в том, что $\hat{\varepsilon}_s^a = \hat{\varepsilon}_s^a(r, \theta)$, где $\delta\hat{H}^a |\Phi^0\rangle = \hat{\varepsilon}_s^a E_0$. Угол θ выбран так, что $\Phi^0 = \Phi_1^0(r) Y_{1,0}$.

Представим $\Phi = \Phi^0 + \delta\Phi$, $\delta\Phi = \sum_{l=1}^{\infty} \delta\Phi_l(r) Y_{l,0}$. В сумме отсутствует гармоника $l = 0$ в силу того, что мы предполагаем электронейтральность рассматриваемой системы. Мы также не суммируем по гармоникам с $m \neq 0$, так как предполагаем, что исходная мода $l = 1, m = 0$, и в силу своей аксиальной симметрии, она способна возбуждать лишь другие аксиально симметричные моды. Тогда,

$$\hat{H}^0 |\delta\Phi\rangle = -\delta\hat{H} |\Phi^0\rangle. \quad (1.23)$$

Спроектируем полученное соотношение на $Y_{l,0}$, подразумевая интегрирование только по углам:

$$\langle Y_{l,0} | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle = -\langle Y_{l,0} | \delta\hat{H} | \Phi^0 \rangle. \quad (1.24)$$

Расписывая дивергенцию и градиент в сферических координатах, находим:

$$\begin{aligned} \langle Y_{l,0} | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle &= \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(\varepsilon^{(0)} r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{l(l+1)}{r^2} \varepsilon^{(0)} \right] \delta\Phi_l = \hat{H}_0^l(r) \delta\Phi_l, \\ \langle Y_{l,0} | \delta\hat{H} | \Phi^0 \rangle &= \left[\frac{\delta_{l1}}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(\delta\varepsilon_m r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{2\delta\varepsilon_m \delta_{l1}}{r^2} + \delta\hat{H}_l^a \right] \Phi_1^0(r) = \hat{H}_l^a(r) \Phi_1^0(r), \\ \delta\hat{H}_l^a &= \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \langle Y_{l,0} | \hat{\varepsilon}_s^a | Y_{1,0} \rangle r^2 \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \langle Y_{l,0} | \nabla^{\perp\alpha} \hat{\varepsilon}_s^a \nabla_{\alpha}^{\perp} | Y_{1,0} \rangle. \end{aligned}$$

Оператор $\hat{H}_0^l(r)$ в $l > 1$ секторе невырожден. Поэтому существует функция Грина: $\hat{H}_0^l(r) G_l(r, r') = \delta(r - r')$. В случае $l = 1$ к частному решению уравнения (1.24) можно добавить произвольное число Φ^0 . Однако эта неоднозначность не вносит никакой неопределенности, поскольку $\hat{H}^0 | \Phi^0 \rangle = 0$, и вклад этих слагаемых в величину $\langle \delta\Phi | \hat{H}^0 | \delta\Phi \rangle$ нулевой. Символически для этой ситуации введем аналог функции Грина, который обозначим $G_1(r, r')$. Теперь мы можем вычислить поправку к полю:

$$\delta\Phi_l(r) = - \int d^3 r' G_l(r, r') \hat{H}_l^a(r') \Phi_1^0(r'). \quad (1.25)$$

И поэтому,

$$\begin{aligned} \langle \delta\Phi | \hat{H}_0 | \delta\Phi \rangle &= \sum_{l=1}^{\infty} \int d^3 r \langle \delta\Phi_l(r) | \hat{H}_0^l | \delta\Phi_l(r) \rangle = \\ &= \sum_{l=1}^{\infty} \int d^3 r \int d^3 r' G_l(r, r') \hat{H}_l^a(r') \Phi_1^0(r') \hat{H}_l^a(r) \Phi_1^0(r). \end{aligned} \quad (1.26)$$

Сдвиг частоты теперь можно найти воспользовавшись (1.21). Результаты представлены на Рис. 1.4. Отметим, что как мы говорили ранее, сдвиг частоты в пороге генерации отличен от нуля. Этот сдвиг получается одинаковым для всех кривых, он связан с более точным определением пороговой частоты генерации (второй порядок теории возмущений). Для наглядности

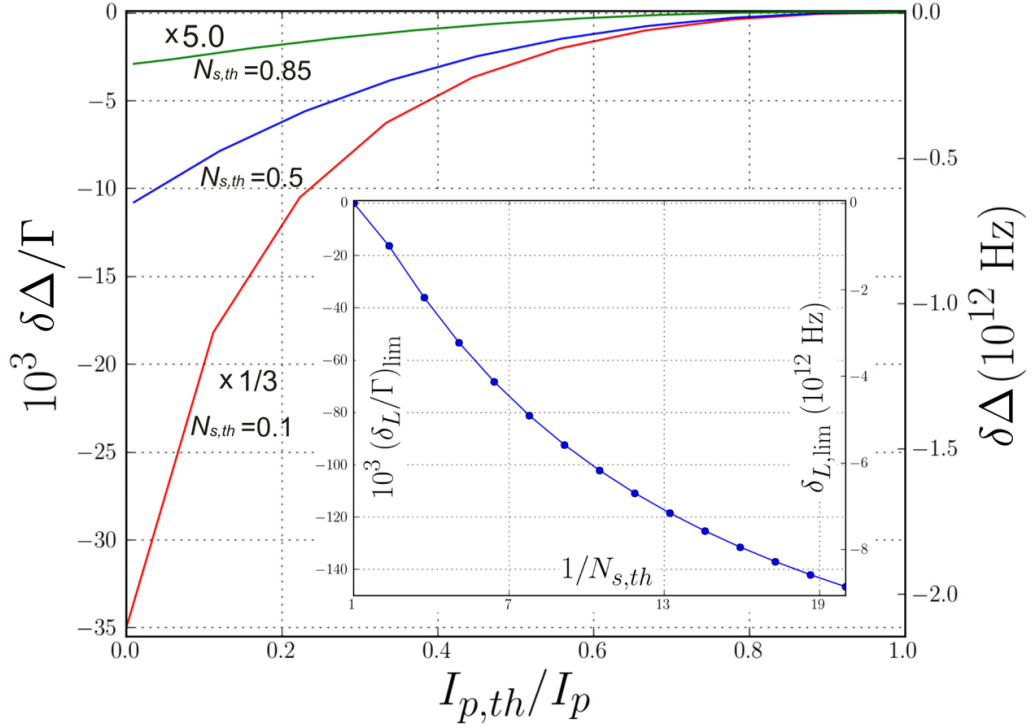


Рис. 1.4. Основной график — зависимость сдвига частоты генерации от обратной интенсивности накачки, нормированной на пороговое значение. Вставка — асимптотическое значение сдвига частоты (предел сильного превышения порога) в зависимости от обратной равновесной населенности в пороге генерации.

мы вычли это изменение всюду по оси ординат, тем самым оставив на графике только часть, обусловленную изменением пространственной структуры моды.

Изменение структуры моды происходит благодаря неоднородному изменению диэлектрической проницаемости оболочки. Такое изменение, в свою очередь, обусловлено истощением накачки. Средний по пространству уровень истощения накачки определяется отклонением инверсной заселенности N от равновесного значения N_s . Теоретическое рассмотрение в случае предела нулевой размерности приводит к заключению, что баланс энергий соблюдается в случае выполнения условия $N = N_{s,th}$ (хорошо известное явление в лазерной физике, называемое *inversion clamping* или *inversion pinning* [22]). Это соотношение определяет выбор параметра, отложенного по оси абсцисс на врезке Рис. 1.4.

1.6. Выводы

Работы [8, 9] косвенно подтверждают, что сдвиг частоты плазмонного нанолазера происходит, однако этот вопрос не был изучен экспериментально в должной мере. До выхода нашей статьи [15] оставался необъяснимым тот факт, что частота генерации спазера в работе [8] находилась не между частотой поверхностного плазмона ω_{sp} и частотой резонансного перехода в активных молекулах ω_{ul} , как того требует выражение (1.20), а за пределами указанного диапазона. Мы предлагаем следующее объяснение этого наблюдения: в пороге генерации частота спазера находится между двух указанных частот, а затем, с увеличением интенсивности накачки, происходит сдвиг частоты за счет изменения структуры лазирующей моды. Величина этого сдвига может оказаться настолько большой, что частота генерации сможет выйти за указанный интервал частот. Численное моделирование подтверждает, что такой сценарий реализуется для выбранных нами параметров.

Отметим, что величина сдвига частоты оказалась существенной вследствие невысокой добротности спазера $Q \sim 15$. Исследуемый эффект появляется во втором порядке теории возмущений по параметру $1/Q$, и для обычных лазеров, обладающих высокой добротностью $Q \sim 10^5$, величина подобного сдвига частоты значительно меньше. Несмотря на это, сам механизм известен и хорошо изучен, см., например, работы [23, 24].

Разработанный метод позволяет определять частоту генерации спазера в любой точке выше порога генерации. Амплитуда сдвига частоты может служить критерием, характеризующим изменение пространственной структуры поля спазера.

Глава 2

Тепловые и прочностные явления в плазмонике

Для описания свойств плазмонных нанолазеров широко применяются полуклассические подходы, в которых электрическое поле считается классическим, а активная среда рассматривается квантовым образом [14, 15, 20]. Из лазерной физики известно, что такое приближение оправдывает себя, когда количество возбужденных в резонаторе квантов велико [19, 22]. В данной главе мы анализируем ограничения, которые накладываются на максимально допустимое число плазмонов, возбужденных в металлической наногрануле.

В стационарном режиме эти ограничения обусловлены тепловыми явлениями. Вследствие невысокой добротности плазмонного резонатора, $Q \sim 15$, наногранула уже при возбуждении всего нескольких плазмонов нагревается вплоть до своей температуры плавления. Ситуация усугубляется положительной обратной связью: при нагреве наночастицы увеличиваются омические потери, и добротность резонатора, соответственно, ухудшается. В импульсном режиме возбуждения дела обстоят лучше, поскольку наночастица успевает охлаждаться в перерывах между импульсами. В этом случае ограничение на допустимое число квантов плазмонных колебаний связано с действием ponderomotorных сил. При возбуждении порядка нескольких сотен квантов эти силы оказываются настолько велики, что способны деформировать наногранулу. Содержание главы основано на работах автора [25, 26, 27].

2.1. Нагрев в стационарном режиме

Рассмотрим наногранулу, в которой плазмонные колебания возбуждаются внешним электромагнитным полем. Интенсивность внешнего поля предполагается постоянной, поэтому ситуация стационарна во времени. Будем рассматривать простейшую модель: сферическая наночастица радиусом a окружена массивной диэлектрической средой, и фундаментальная плазмонная мода с частотой ω постоянно населена n квантами (вследствие внешнего возбуждения). Для простоты будем пренебрегать возможным фототермическим эффектом в процессе внешнего возбуждения, и сконцентрируемся на процессе выделения тепла за счет распада плазмонов.

Поверхностные плазмоны имеют два возможных канала распада. Во-первых, плазмонная мода может терять энергию за счет излучения, т.е. испускания фотонов. Такие события никак не влияют на температуру рассматриваемой системы. Во-вторых, энергия плазмона также может идти на нагрев наночастицы вследствие омических потерь. Суммарная мощность потерь P определяется добротностью плазмонного резонатора Q . Мы можем представить суммарные потери в виде суммы потерь P_{rad} , связанных с излучением, и потерь P_{heat} , связанных с нагревом системы. Тогда

$$\frac{n\hbar\omega^2}{Q} = n\hbar\omega (\gamma_{heat} + \gamma_{rad}) = P_{heat} + P_{rad}, \quad (2.1)$$

где символом γ обозначены соответствующие скорости распадов. В большинстве практически интересных случаев P_{rad} определяется дипольным излучением, и поэтому отношение $\gamma_{rad}/\gamma_{heat} \sim (ka)^3/\varepsilon_m''$, здесь $k = \sqrt{\varepsilon_d}\omega/c$ — соответствующий волновой вектор, ε_d — диэлектрическая проницаемость окружающего пространства, заполненного диэлектриком, и ε_m'' — мнимая часть диэлектрической проницаемости металла, из которого изготовлена наногранула [1]. Для золота в оптическом диапазоне дипольное излучение вступает в игру, когда радиус наночастицы приближается к $a \sim 20$ нм. При меньших размерах $\gamma_{rad} \ll \gamma_{heat}$, и поэтому добротность резонатора определяется

омическими потерями, $Q \simeq \omega/\gamma_{heat}$. Отметим, что для мод более высокого порядка (так называемых темных мод) последняя оценка для добротности справедлива даже в более широком диапазоне размеров наногранул, поскольку такие моды безызлучательны, а отношение ω/γ_{heat} примерно одинаково для мод различного порядка [28].

Выделяющееся тепло отводится от наногранулы за счет фононов, часть из которых имеет длину свободного пробега меньше размера системы (диффузионный режим), а другая часть распространяется баллистическим образом. В дальнейшем мы будем считать процесс теплопроводности диффузионным. Такое приближение позволяет нам написать оценку сверху для потока тепла в рассматриваемой системе [29, 30]. В этом случае профиль температуры определяется коэффициентом теплопроводности χ окружающей среды и проводимостью Капицы h границы раздела между наночастицей и внешней средой [31]. Проводимость Капицы связана с рассеянием фононов на границе раздела двух сред, и данный механизм следует принимать во внимание в том числе и для наномасштабов [32].

Начнем анализ с простейшей модели, когда коэффициент теплопроводности χ предполагается не зависящим от температуры. С помощью стандартного закона Фурье,

$$\frac{n\hbar\omega\gamma_{heat}}{4\pi r^2} = -\chi \frac{dT}{dr}, \quad (2.2)$$

где $r > a$ — расстояние до центра наночастицы, находим, что разница температур между поверхностью наночастицы (T_{NP}) и бесконечностью (T_0) равна

$$T_{NP} - T_0 = \frac{n\hbar\omega\gamma_{heat}}{4\pi a^2 h_{np}}. \quad (2.3)$$

Здесь $1/h_{np} = a/\chi + 1/h$ и последнее слагаемое учитывает дополнительный скачок температур, связанный с проводимостью Капицы. Температура внутри металлической гранулы постоянна, поскольку коэффициент теплопроводности металла намного превышает коэффициент теплопроводности окружающего диэлектрика. Теперь, чтобы найти температуру наночастицы T_{NP} из

соотношения (2.3), мы должны принять во внимание температурную зависимость скорости распада плазмонов $\gamma_{heat}(T_{NP})$. Главным образом, эта зависимость обусловлена электрон-фононным рассеянием, и поэтому она может быть аппроксимирована линейной функцией

$$\hbar\gamma_{heat}(T_{NP}) = \alpha + \beta T_{NP}. \quad (2.4)$$

Рассматривая золото как наиболее изученный в плазмонике металл и используя данные из работ [33, 34, 35, 21], мы можем положить $\beta = 10^{-4}$ eV/K и $\alpha = 0.07$ eV для $\hbar\omega = 1.9$ eV. Линейная зависимость (2.4) справедлива от $\sim 50^\circ$ K вплоть до $\sim 1100^\circ$ K, когда золото начинает плавиться [35, 36].

Температура наночастицы в зависимости от числа квантов плазмонных колебаний в стационарном режиме изображена на Рис. 2.1. Красная линия соответствует простейшей модели, где мы пренебрегли сопротивлением Капицы $h \rightarrow \infty$ и положили $\chi = 1.4$ W/(mK), что соответствует кварцевому стеклу при нормальных условиях. Сверхлинейное поведение этой кривой — результат температурной зависимости $\gamma_{heat}(T_{NP})$ (2.4), которая обеспечивает положительную тепловую обратную связь. Подобное поведение также ожидается и для других металлов, хотя зависимость $\gamma_{heat}(T_{NP})$ может быть более сложной, как, например, это было установлено для серебра [37]. Подставляя зависимость (2.4) в выражение (2.3) находим, что температура становится бесконечной при некотором *критическом числе плазмонов*

$$n_{crit} = \frac{4\pi a^2 \hbar n_p}{\omega \beta}. \quad (2.5)$$

Это число дает оценку сверху для количества плазмонов, которые могут населять наночастицу в стационарном режиме.

Для реальных веществ коэффициент теплопроводности $\chi(T)$ зависит от температуры $T(r)$. Для примера проанализируем кварцевое стекло и кристаллический кварц. Эти вещества достаточно хорошо изучены, поэтому зависимости $\chi(T)$ могут быть восстановлены, например, из работ [38, 39]. Подставляя эти зависимости в уравнение (2.2) и интегрируя это уравнение, находим

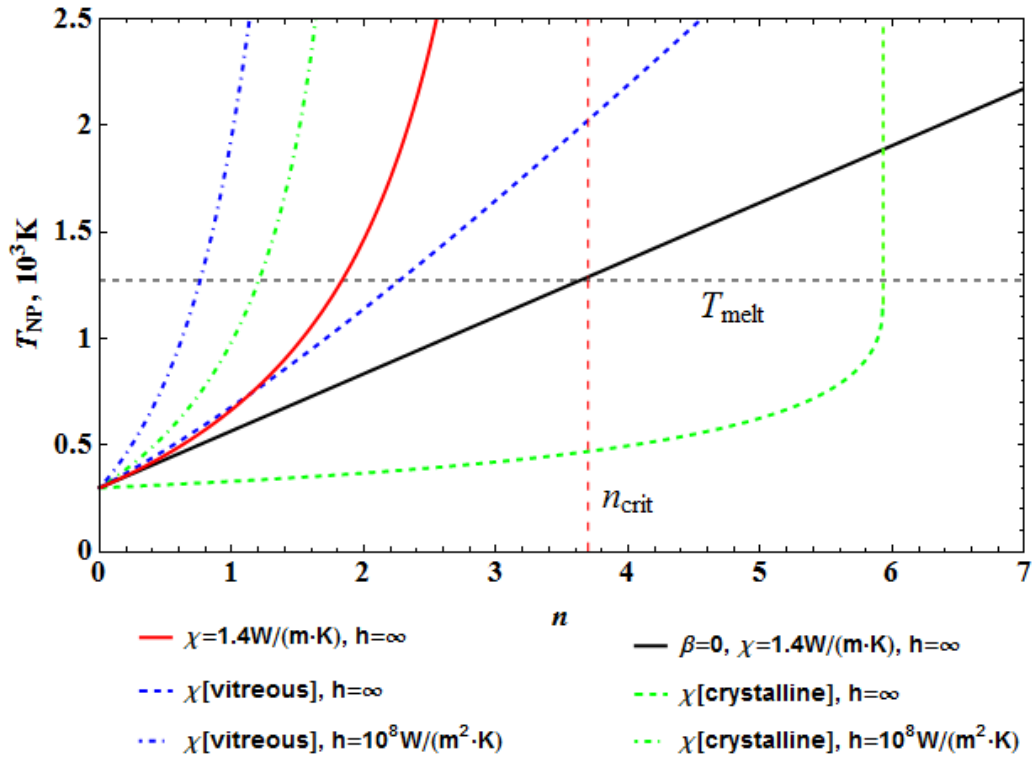


Рис. 2.1. Температура наночастицы в зависимости от числа плазмонов в стационарном режиме. Используемые параметры: $a = 10 \text{ nm}$, $\hbar\omega = 1.9 \text{ eV}$ и $T_0 = 300^\circ \text{ K}$. Температура плавления золота взята равной $T_{melt} \approx 1270^\circ \text{ K}$ [36].

численные решения, показанные пунктирными и штрих-пунктирными линиями на Рис. 2.1. Пунктирные линии соответствуют пределу нулевого сопротивления Капицы, $h = \infty$, а штрих-пунктирные — $h = 10^8 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$. Последнее значение взято из работы [31], поскольку прямые экспериментальные данные отсутствуют. Реальные зависимости, как ожидается, лежат между этими парами ”контрольных” линий, обозначенных одинаковым цветом.

Для кварцевого стекла коэффициент теплопроводности $\chi(T)$ увеличивается с ростом температуры [38], что приводит к ослаблению тепловой положительной обратной связи, в то время как для кристаллического кварца ситуация ровно противоположная [39], см. пунктирные линии на Рис. 2.1. В случае кристаллического кварца, температурная зависимость $\chi(T)$ может быть аппроксимирована как

$$\chi(T) = \chi_0 \frac{\Theta}{T}, \quad (2.6)$$

где χ_0 и Θ — некоторые постоянные. В этом случае уравнение теплопроводности может быть решено аналитически в предположении $h \rightarrow \infty$. Подставляя коэффициент теплопроводности (2.6) и выражение (2.4) в закон Фурье (2.2) и выполняя интегрирование, находим аналог соотношения (2.3)

$$\frac{n\omega}{4\pi a\chi_0\Theta} = \frac{\ln(T_{NP}/T_0)}{\alpha + \beta T_{NP}}. \quad (2.7)$$

Правая часть этого выражения ограничена сверху некоторым максимальным значением. Это означает, что данное уравнение формально не имеет решений при числе плазмонов n больше некоторого критического значения. Приравнявая производную от правой части к нулю, находим, что критическое число плазмонов дается прежним выражением (2.5), только значение коэффициента теплопроводности нужно брать при температуре T^* , которая находится из решения трансцендентного уравнения

$$1 + \frac{\alpha}{\beta T^*} = \ln \frac{T^*}{T_0}. \quad (2.8)$$

С физической точки зрения ситуация остается прежней: при достижении критического значения (2.5) температура системы стремится к бесконечности.

Отметим, что расходимость температуры системы в некоторой точке n_{crit} сохраняется для большинства расчетов, в которых зависимости $\chi(T)$ аппроксимируют свойства реальных веществ, хотя само значение n_{crit} может изменяться. Поэтому существование критического числа плазмонов (2.5) — это не артефакт нашей простейшей модели, а новое предсказание для экспериментальной проверки. С практической точки зрения, возможно, более важным является порог достижения системой некоторой фиксированной температуры, скажем, температуры плавления металлической наночастицы T_{melt} , при которой плазменная система может разрушиться. Как следует из Рис. 2.1, для разных условий это происходит в диапазоне числа плазмонов от $n_{melt} \sim 1$ до ~ 6 . Заметим, что n_{melt} можно достаточно успешно оценить самым наивным способом, положив $h \rightarrow \infty$ и взяв γ_{heat} при комнатной температуре, см. черную кривую на Рис. 2.1.

В рассуждениях выше мы полностью пренебрегали мощностью P_T теплового излучения системы. Чтобы оценить ее отметим, что в нашем случае закон Стефана-Больцмана не применим, поскольку глубина скин-слоя в нашей системе больше, чем размер наногранулы a , поэтому P_T производится главным образом дипольным излучением [40]. Дипольный момент гранулы, наведенный за счет тепловых флуктуаций, может быть найден из флуктуационно-диссипационной теоремы [41]. Его спектральная плотность

$$(d^2)_\omega = 2\hbar\alpha''(\omega) \left\{ \frac{1}{2} + \frac{1}{e^{\hbar\omega/T} - 1} \right\}, \quad (2.9)$$

где $\alpha''(\omega)$ — мнимая часть поляризуемости наночастицы. Здесь первое слагаемое не зависит от температуры и соответствует квантовым флуктуациям, которые не нужно принимать во внимание. Используя формулу для мощности дипольного излучения и учитывая три различных поляризации, находим

$$P_T = \frac{4\hbar}{\pi c^3} \int_0^\infty d\omega \frac{\omega^4 \alpha''(\omega)}{e^{\hbar\omega/T} - 1} \sim \frac{T^5}{\hbar^4 c^3} \alpha''(\omega_T), \quad (2.10)$$

где $\omega_T = T/\hbar$ — частота, соответствующая температуре. В принципе можно в явном виде написать выражение для поляризуемости сферической частицы, однако мы поступим еще проще. Вдали от положения резонанса, значение мнимой части восприимчивости $\alpha''(\omega_T)$ не превышает a^3 , поэтому окончательно получаем

$$P_T < T\omega_T \left(a \frac{\omega_T}{c} \right)^3. \quad (2.11)$$

Отсюда заключаем, что $P_T \ll P$, и поэтому тепловым излучением можно полностью пренебречь.

2.2. Нагрев в импульсном режиме

Из результатов предыдущего раздела видно, что в стационарном режиме плазменная наногранула достигает своей температуры плавления при воз-

буждении в ней всего нескольких плазмонов. Это ограничение можно преодолеть, если использовать импульсный режим возбуждения системы. Мы рассмотрим приближение, в котором населенность частицы плазмонами может быть аппроксимирована ступенчатой функцией длительностью τ_p . Такое рассмотрение применимо, если длительность импульса возбуждения намного превышает время релаксации плазмонных колебаний, $\tau_p \gg Q/\omega \sim 10$ fs. Отметим, что стационарное распределение, рассмотренное в предыдущем разделе, успевает установиться, если длительность импульса превышает характерное время тепловой диффузии на расстояние в несколько размеров частицы, $\tau_{ss} \sim C_{np}/(4\pi a^2 h_{np}) \sim 0.5$ ns, где $C_{np} \sim 60$ eV/K — теплоемкость золотой наночастицы радиуса $a = 10$ nm.

Рассмотрим случай коротких импульсов длительности $\tau_p \ll \tau_{ss}$. В процессе распада плазмонов их энергия сначала поглощается электронами внутри наночастицы, а затем, вследствие электрон-фонного взаимодействия, передается кристаллической решетке. Для золотых наночастиц характерное время этого взаимодействия может быть оценено как $\tau_{ep} \sim 3$ ps [42]. Мы будем рассматривать импульсы длительностью $\tau_p \ll \tau_{ep}$, поскольку именно такие импульсы позволяют заселить наночастицу максимальным числом плазмонов. На таких временных масштабах электронная подсистема не успевает провзаимодействовать с кристаллической решеткой металла и окружающей диэлектрической средой, поэтому они сохраняют свою первоначальную температуру T_0 .

Суммарная энергия, запасенная в электронной подсистеме к моменту окончания импульса, состоит из хаотического вклада от распавшихся плазмонов и когерентных плазмонных колебаний, $W = n\hbar\omega\tau_p\gamma_{heat}(T_0) + n\hbar\omega$. Эта энергия перераспределяется между электронами и кристаллической решеткой в течение следующих нескольких времен τ_{ep} . Например, в экспериментах время плавления золотых нанопроволочек насыщается на уровне ~ 30 ps с увеличением мощности лазерных импульсов [43].

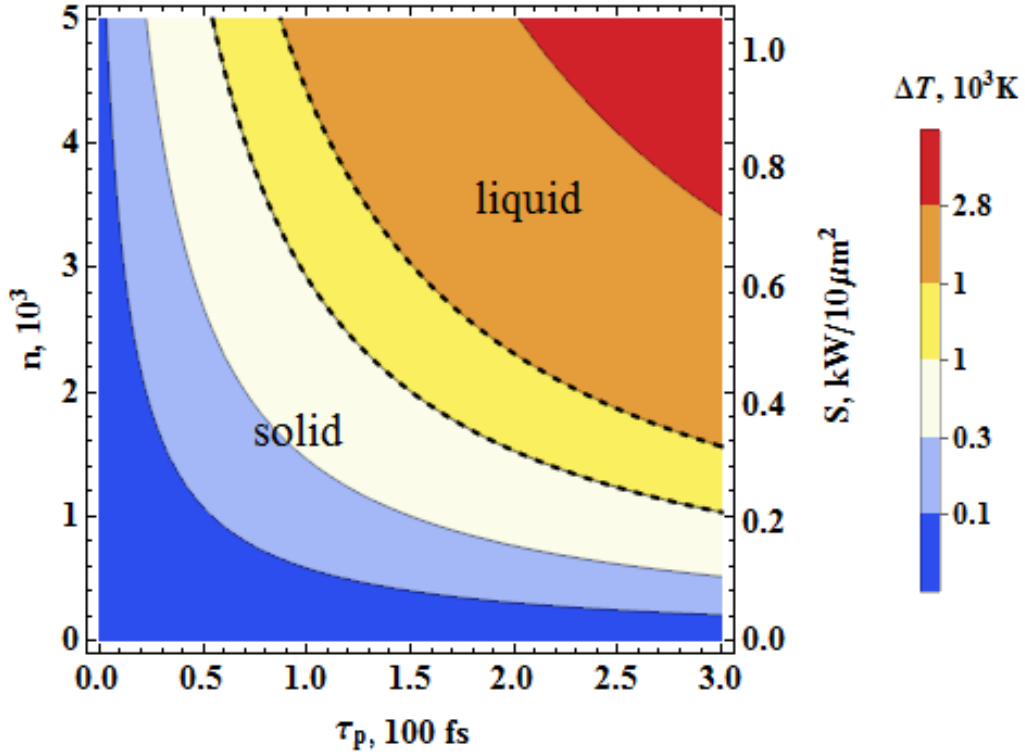


Рис. 2.2. Изменение температуры наночастицы для заданного числа плазмонов (интенсивность импульса) в зависимости от длительности импульса. Область между пунктирными линиями соответствует частичному плавлению наночастицы. Ось справа показывает соответствующую мощность лазерного луча, возбуждающего систему. Численные параметры такие же, как и для Рис. 2.1, тепловые константы для золота взяты из работы [36].

Условие того, что система останется в твердом состоянии после окончания импульса, записывается в виде

$$W \leq C_{np}(T_{melt} - T_0) [+M], \quad (2.12)$$

где слагаемое в квадратных скобках представляет собой полное количество тепла, требуемое для плавления системы. Оно должно быть включено в рассмотрение, если наночастица полностью расплавилась. Отметим, что возможное возбуждение мод более высокого порядка (темных мод), вследствие нелинейных явлений [44], не влияет на тепловую кинетику, поскольку, как обсуждалось ранее, время жизни этих мод $1/\gamma_{heat} \ll \tau_{ep}$ [28].

На Рис. 2.2 показано изменение температуры наночастицы на плоскости параметров $\tau_p - n$. Как следует из этого рисунка, возбуждение большого числа

плазмонов $\sim 10^3$ не запрещено в режиме возбуждения короткими импульсами, по крайней мере, вследствие тепловых явлений. Максимальная скорость повторения импульсов может быть оценена как обратное время установления в системе стационарного распределения температур $\tau_{ss}^{-1} \sim 1$ GHz.

2.3. Пондеромоторные силы

В системах с плазмонным резонансом энергия концентрируется на наномасштабе, поэтому амплитуда электрического поля внутри и вблизи наночастицы, населенной небольшим числом плазмонов, оказывается достаточно большой [1]. Сильное электрическое поле приводит к заметным пондеромоторным силам [45], которые, в свою очередь, могут механически деформировать наночастицу. Данный раздел посвящен анализу этого явления.

Чтобы оценить влияние пондеромоторных сил, рассмотрим наногранулу, помещенную в жидкую или газообразную среду, которая не препятствует деформации частицы. Если температура наночастицы изменяется незначительно за период плазмонного колебания, т.е. если число плазмонов $n \ll C_{np}T/(2\pi\hbar\gamma_{heat}) \sim 2.2 \cdot 10^4$, то можно рассматривать наночастицу, как находящуюся в состоянии теплового и механического равновесия. В этом случае выражение для тензора напряжений принимает вид [45]

$$\sigma_{ik} = -\frac{\varepsilon E^2}{8\pi} \delta_{ik} + \frac{E^2}{8\pi} \rho \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} \right)_T \delta_{ik} + \frac{\varepsilon E_i E_k}{4\pi}, \quad (2.13)$$

где \mathbf{E} — электрическое поле, ε — диэлектрическая проницаемость среды, а ρ — ее плотность. В дальнейшем для оценок будем рассматривать простейшую модель "жидкой" среды, когда диэлектрическая восприимчивость $\varepsilon - 1$ пропорциональна плотности среды и когда сдвиговые деформации не оказывают на нее никакого влияния. Иными словами, мы будем считать, что $\rho d\varepsilon/d\rho = \varepsilon - 1$. В этом случае плотность электрических пондеромоторных

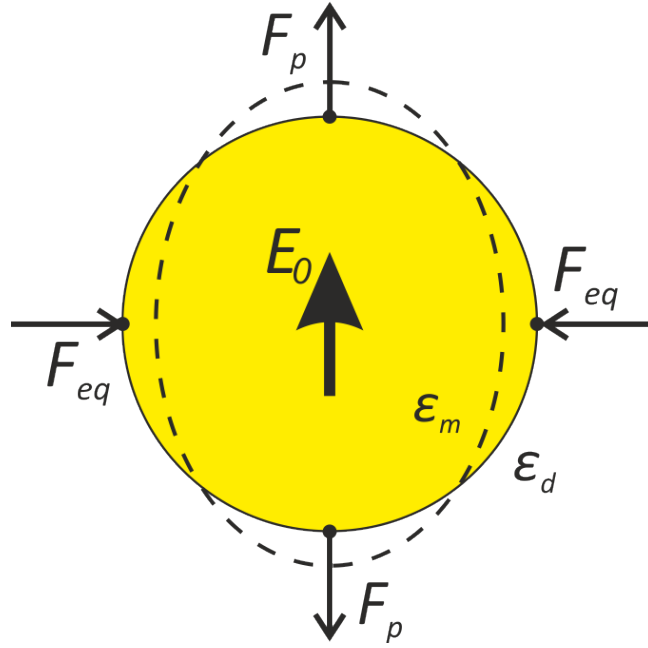


Рис. 2.3. Схематичное изображение пондеромоторных сил, которые пытаются деформировать наночастицу, вытянув ее в направлении электрического поля.

сил дается выражением

$$f_i = \frac{\partial \overline{\sigma_{ik}}}{\partial x_k} = \frac{(\varepsilon - 1)}{8\pi} \nabla_i \overline{E^2}, \quad (2.14)$$

где черта обозначает усреднение по времени.

В качестве примера рассмотрим сферическую наночастицу, как и раньше будем предполагать, что в резонансе находится дипольная мода. Электрические силы, действующие на единицу площади на границе раздела двух сред, могут быть вычислены с помощью выражения (2.14). Плотность сил, действующих на полюсах, равна

$$F_p = \frac{(\varepsilon_d + \varepsilon_m - 2\varepsilon_d\varepsilon_m)(\varepsilon_d - \varepsilon_m)}{8\pi\varepsilon_d^2} \overline{E_0^2}, \quad (2.15)$$

а плотность сил, действующих на экваторе, равна нулю, $F_{eq} = 0$, см. Рис. 2.3. Здесь \mathbf{E}_0 — электрическое поле внутри наночастицы. Мы предположили, что глубина скин-слоя намного больше размера частицы, поэтому для дипольной моды оно однородно. Мы видим, что силы стремятся вытянуть частицу в направлении ее дипольного момента.

Электрическое поле внутри наночастицы можно выразить через количество возбужденных плазмонов. Из энергетических соображений находим $\overline{E_0^2} \sim -4\pi n\hbar\omega/(\varepsilon_m a^3)$. Используя условие плазмонного резонанса для сферической частицы, $2\varepsilon_d + \varepsilon_m = 0$, и типичные параметры для частоты плазмона $\hbar\omega = 1.9$ eV и радиуса наночастицы $a = 10$ nm, получаем, что $F_p \sim n \times 10^6$ Pa. Для $n \sim 10^2$ плазмонов это значение по порядку величины совпадает с начальным пределом текучести золотых наночастиц [46]. Однако для нагрузок, которые длятся пикосекунды, металлы выдерживают напряжения в 10 – 30 раз большие, чем в статическом случае [47, 48]. Поэтому в режиме возбуждения короткими импульсами допустимое число плазмонов составляет несколько тысяч. Отметим также, что эластические свойства золота сильно зависят от температуры [49]. Одновременное рассмотрение тепловых явлений и пондеромоторных сил на масштабе пикосекунд может значительно улучшить приведенные выше оценки.

2.4. Выводы

В данном разделе было показано, что температурная зависимость скорости распада плазмонов играет важную роль в тепловых процессах, происходящих в плазмонных наносистемах. Возникающие нелинейности приводят к тому, что в стационарном режиме наночастица нагревается до температуры плавления при числе плазмонов в резонаторе порядка единицы. Для привычных высокочастотных лазеров сужение спектральной линии при переходе через порог генерации обусловлено механизмом вынужденного излучения: большое количество когерентных фотонов провоцируют активную молекулу излучить новый фотон в ту же моду когерентным образом [19, 22]. Проведенный анализ тепловых явлений для плазмонных наносистем, в частности, показывает, что в случае спазера подобный механизм сужения спектра не может реализоваться в стационарном режиме — система попросту расплавится. Тем

не менее, экспериментальные данные для таких объектов, например, [8, 9], свидетельствуют, что сужение спектра излучения все же происходит. Чтобы разобраться с этим явлением, необходимо построить теорию функционирования спазера, которая бы описывала ширину его спектральной линии, т.е. полностью квантовую теорию. Этой проблеме посвящена следующая глава данной диссертации.

В импульсном режиме возбуждения плазмонную наносистему удается заселить большим количеством плазмонов на масштабе сотен фемтосекунд. В этом случае ограничение на допустимое число плазмонов связано с деформацией устройства пондеромоторными силами. Однако ограничения, связанные с этим механизмом, довольно мягкие — по нашим оценкам допустимое число плазмонов составляет сотни или даже тысячи квантов.

На данный момент все еще чувствуется недостаток в экспериментальных и теоретических работах, посвященных тепловым и прочностным явлениям в плазмонике. Мы надеемся, что наши результаты и оценки послужат мотивацией для дальнейших исследований в данном направлении.

Глава 3

Квантовая теория спазера

В данном разделе мы разрабатываем квантовую теорию плазмонного нанолазера в предположении низкодобротного резонатора. Это исследование мотивировано результатами, изложенными в предыдущих главах. В главе 1 мы разработали полуклассическое описание спазера, оно позволяет описать порог генерации в системе и частоту генерации, однако не содержит никакой информации о ширине спектральной линии. В главе 2, рассмотрев тепловые явления в плазмонных наносистемах, мы пришли к выводу, что механизмом сужения спектральной линии спазера, работающего в стационарном режиме, при переходе через порог генерации не может быть явление вынужденного излучения. Для осуществления такого механизма требуется значительное число плазмонов в резонаторе, что приведет к нагреву системы до температуры ее плавления. Тем не менее, сужение спектра наблюдается экспериментально [8, 9]. Для создания ясной и законченной картины принципов работы спазера необходимо разработать теорию, которая бы корректно описывала ширину спектральной линии. Такая теория должна принимать во внимание квантовые флуктуации, которые ответственны за однородное уширение спектра [22, 50].

Чтобы полностью решить поставленную задачу аналитически, мы делаем некоторые предположения. Во-первых, мы считаем, что распад плазмонов со скоростью κ является самым быстрым процессом в рассматриваемой системе. Это позволяет нам адиабатически исключить плазмонную моду из рассмотрения [51] и полностью характеризовать систему состоянием N одинаковых двухуровневых активных молекул. Во-вторых, мы считаем, что число активных молекул велико, $N \gg 1$, и поэтому флуктуации состояния активной среды могут рассматриваться в пределе слабого шума [22, ch. 5.1.3]. От-

метим, что вследствие адиабатического исключения плазмонной моды, наш метод позволяет разрешать только времена $\tau \gg 1/\kappa$. Динамика системы на меньших временных масштабах была рассмотрена в работе [52], но только для модели с одной активной молекулой, $N = 1$, и ниже порога генерации, когда среднее число плазмонов в резонаторе значительно меньше единицы.

Используемый нами метод хорошо известен в лазерной физике, см., например, [53]. Здесь мы представляем согласованное рассмотрение из первых принципов в пределе, когда время дефазировки активных молекул мало по сравнению с временем жизни их возбужденного состояния [54, 55]. Мы описываем поведение спазера выше и ниже порога генерации и демонстрируем, что спектральная линия значительно сужается при переходе через этот порог. Мы также находим среднее число плазмонов в резонаторе и показываем, что вблизи порога оно может быть порядка или даже меньше единицы, что находится в соответствии с выводами главы 2 и экспериментом [8]. В этом случае когерентность сохраняется в состоянии активных атомов, которые релаксируют медленнее, чем $1/\kappa$. Этот факт фундаментальным образом отличает поведение спазеров от поведения обычных высокочастотных лазеров, где информация о когерентности хранится в состоянии фотонов, а механизмом сужения спектральной линии является вынужденное излучение.

Мы также изучаем статистические свойства излучения спазера и находим явное выражения для корреляционной функции излучения второго порядка $g^{(2)}(\tau)$ в пределе $\kappa\tau \gg 1$. Выше порога генерации флуктуации амплитуды поляризации активных молекул приводят к затухающим колебаниям в функции $g^{(2)}(\tau)$. Похожая зависимость была получена в численном счете [56], и она типична для низкочастотных лазеров [53]. Для высокочастотных лазеров функция $g^{(2)}(\tau)$ не содержит осцилляций, поэтому форма этой кривой, на первый взгляд, может служить индикатором механизма сужения спектральной линии (или индикатором места хранения информации о когерентности). В заключение, мы выходим за рамки низкочастотного приближения и исследуем

дуюем этот вопрос в деталях. В частности, мы находим при каком соотношении между скоростью затухания плазмонов κ и однородном уширением активных молекул Γ эти осцилляции появляются. Содержание главы основано на работе автора [57].

3.1. Физическая модель и методы

Рассмотрим $N \gg 1$ одинаковых двухуровневых молекул с частотой перехода между уровнями ω , которые взаимодействуют с полем одномодового низкодобротного плазмонного резонатора. Частота моды совпадает с частотой перехода в молекулах, а время жизни плазмонов обозначим $(2\kappa)^{-1}$. Взаимодействие между молекулами и полем описывается гамильтонианом Тависа-Каммингса [22], $H_{AF} = i\hbar g(a^+ J_- - a J_+)$, где g — одинаковая для всех молекул константа взаимодействия, a^+ и a — операторы рождения и уничтожения плазмонов [58], $J_\alpha = \sum_{j=1}^N \sigma_{j\alpha}$ — коллективные операторы молекул. Здесь $\sigma_{j\alpha}$, $\alpha = \{x, y, z\}$ — матрицы Паули и $\sigma_{j\pm} = (\sigma_{jx} \pm i\sigma_{jy})/2$. В пределе низкодобротного резонатора плазмонную моду можно адиабатически исключить из рассмотрения [51], и тогда уравнение на динамику матрицы плотности молекул $\rho = \text{tr}_F \rho_{AF}$ в представлении Шредингера принимает вид:

$$\begin{aligned} \dot{\rho} = & -i\frac{1}{2}\omega[J_z, \rho] + \frac{\gamma_\uparrow}{2} \left(\sum_{j=1}^N 2\sigma_{j+}\rho\sigma_{j-} + \frac{1}{2}J_z\rho + \frac{1}{2}\rho J_z - N\rho \right) \\ & + \frac{\gamma_\downarrow}{2} \left(\sum_{j=1}^N 2\sigma_{j-}\rho\sigma_{j+} - \frac{1}{2}J_z\rho - \frac{1}{2}\rho J_z - N\rho \right) + \frac{\gamma_p}{2} \left(\sum_{j=1}^N \sigma_{jz}\rho\sigma_{jz} - N\rho \right) \\ & + \frac{g^2}{\kappa} (2J_-\rho J_+ - J_+ J_-\rho - \rho J_+ J_-), \end{aligned} \quad (3.1)$$

где след берется от полной матрицы плотности системы по переменным поля. Здесь активные молекулы некогерентно возбуждаются со скоростью γ_\uparrow (внешняя накачка), и мы также принимаем во внимание спонтанное излучение, происходящее со скоростью γ_\downarrow . Процессы дефазировки, обусловленные взаимо-

действием с фононами, имеют характерную скорость γ_p . Последнее слагаемое описывает взаимодействие активных молекул друг с другом через плазмонную моду. Поле в резонаторе можно адиабатически исключить, только если $\kappa \gg Ng^2/\kappa, \gamma_p, \gamma_\uparrow, \gamma_\downarrow$. Отметим, что нормально упорядоченные средние от операторов электрического поля в этом случае могут быть восстановлены с помощью формальной замены $a^+(t) \rightarrow (g/\kappa)J_+(t)$ и $a(t) \rightarrow (g/\kappa)J_-(t)$, [22, (13.60)]. Точно такая же модель, но с произвольным числом N активных молекул, была проанализирована численно в работах [56, 59]. Авторы показали, что последнее слагаемое в уравнении (3.1) может приводить к кооперативным эффектам.

Наша конечная цель — описать состояние поля в резонаторе, поэтому достаточно описывать систему в терминах коллективных операторов для молекул, нам не нужно интересоваться состоянием каждого атома в отдельности. Оказывается, можно построить замкнутое описание в терминах J_+, J_z, J_- , несмотря на то, что некоторые слагаемые в уравнении (3.1) не могут быть выражены через эти операторы.

Введем в рассмотрение характеристическую функцию

$$\chi_N(\xi, \xi^*, \eta) \equiv \text{tr} (\rho e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-}), \quad (3.2)$$

которая позволяет вычислять нормально-упорядоченные операторные средние стандартным образом:

$$\langle J_+^p J_z^r J_-^q \rangle = \frac{\partial^{p+r+q}}{\partial (i\xi^*)^p \partial (i\eta)^r \partial (i\xi)^q} \chi_N \Big|_{\xi=\xi^*=\eta=0}. \quad (3.3)$$

Фурье преобразование от этой функции называется P -представлением Глаубера-Сударшана

$$\tilde{P}(v, v^*, m) = \frac{1}{2\pi^3} \int d^2\xi \int d\eta \chi_N(\xi, \xi^*, \eta) e^{-i\xi^* v^*} e^{-i\xi v} e^{-i\eta m}, \quad (3.4)$$

которое играет роль функции распределения и позволяет вычислять нормально-упорядоченные операторные средние как в статистической механике

[22, (6.118a)]

$$\langle J_+^p J_z^r J_-^q \rangle = \int d^2v \int dm \tilde{P}(v, v^*, m) v^{*p} m^r v^q. \quad (3.5)$$

Эволюционное уравнение на функцию распределения $\tilde{P}(v, v^*, m)$ может быть получено дифференцированием по времени соотношения (3.2) и дальнейшей заменой $\dot{\rho}$ соотношением (3.1). Детали вычислений находятся в приложении Б, здесь мы приводим только конечный результат:

$$\frac{\partial \tilde{P}}{\partial t} = L \left(v, v^*, m, \frac{\partial}{\partial v}, \frac{\partial}{\partial v^*}, \frac{\partial}{\partial m} \right) \tilde{P}, \quad (3.6)$$

где

$$\begin{aligned} L = & \frac{\gamma_{\uparrow}}{2} \left[\left(e^{-2\frac{\partial}{\partial m}} - 1 \right) (N - m) + \frac{\partial^4}{\partial v^2 \partial v^{*2}} e^{2\frac{\partial}{\partial m}} (N + m) + 2N \frac{\partial^2}{\partial v \partial v^*} \right] \\ & + \frac{\gamma_{\uparrow}}{2} \left(2e^{-2\frac{\partial}{\partial m}} - 1 + 2\frac{\partial^2}{\partial v \partial v^*} \right) \left(\frac{\partial}{\partial v} v + \frac{\partial}{\partial v^*} v^* \right) \\ & + \frac{\gamma_{\downarrow}}{2} \left[\left(e^{2\frac{\partial}{\partial m}} - 1 \right) (N + m) + \frac{\partial}{\partial v} v + \frac{\partial}{\partial v^*} v^* \right] \\ & + \gamma_p \left[\frac{\partial}{\partial v} v + \frac{\partial}{\partial v^*} v^* + \frac{\partial^2}{\partial v \partial v^*} e^{2\frac{\partial}{\partial m}} (N + m) \right] + i\omega \left[\frac{\partial}{\partial v} v - \frac{\partial}{\partial v^*} v^* \right] \\ & + \frac{g^2}{\kappa} \left[2 \left(1 - e^{-2\frac{\partial}{\partial m}} \right) v v^* - \left(\frac{\partial}{\partial v} v m + \frac{\partial}{\partial v^*} v^* m \right) + \frac{\partial^2}{\partial v^2} v^2 + \frac{\partial^2}{\partial v^{*2}} v^{*2} \right]. \end{aligned}$$

Замкнутая форма этого уравнения подтверждает возможность описывать систему в терминах коллективных операторов для молекул.

Точное решение уравнения (3.6) сингулярно, вследствие наличия экспоненциальных множителей в L , которые описывают переходы в активных молекулах. Более того, это решение не может быть найдено в аналитическом виде. Однако мы можем найти приближенное несингулярное распределение \tilde{P} , заменив уравнение (3.6) приближенным уравнением Фоккера-Планка. Ключевым элементом такой замены является процедура *system size expansion* [22, ch. 5.1.3]. В нашем случае большим параметром является число активных молекул $N \gg 1$. Следуя этому методу, мы получим адекватное описание квантовых флуктуаций в главном порядке по параметру $1/N$.

Чтобы выполнить систематическое разложение уравнения (3.6) по параметру $1/N$, мы перейдем во вращающуюся с частотой ω систему отсчета и введем в рассмотрение безразмерную поляризацию $\sigma = \text{tr}[\rho J_- e^{i\omega t}]/N$ и инверсную населенность $n = \text{tr}[\rho J_z]/N$ в расчете на одну молекулу. Затем мы отделим друг от друга средние значения и флуктуации в наших переменных

$$ve^{i\omega t}/N = \sigma + N^{-1/2}\nu, \quad m/N = n + N^{-1/2}\mu, \quad (3.7)$$

и введем в рассмотрение функцию распределения

$$P(\nu, \nu^*, \mu, t) \equiv N^{3/2} \tilde{P}(v(\nu, t), v^*(\nu^*, t), m(\mu, t), t), \quad (3.8)$$

которая зависит только от переменных, соответствующих флуктуациям. Дифференцируя левую часть последнего выражения по времени как сложную функцию и используя соотношение (3.6), мы получим уравнение на новую функцию распределения $P(\nu, \nu^*, \mu, t)$. В этом уравнении мы пренебрежем всеми слагаемыми $\sim O(N^{-1/2})$. Коэффициенты при слагаемых, пропорциональных числу молекул N в положительной степени, должны зануляться — это соответствует уравнениям, описывающим динамику макроскопических переменных. Оставшиеся члены, пропорциональные N в нулевой степени, характеризуют флуктуации. Опуская громоздкие вычисления, мы приведем только конечные ответы. Используемый метод хорошо известен из физики высокодобротных лазеров, см., например, [22].

3.2. Макроскопические уравнения и порог генерации

Согласно нашим вычислениям, динамика макроскопических переменных подчиняется уравнениям

$$\frac{d(\sigma/n_s)}{\Gamma dt} = - \left(1 - \wp \frac{n}{n_s} \right) \sigma/n_s, \quad (3.9)$$

$$\frac{d(n/n_s)}{\Gamma dt} = - \frac{n/n_s - 1}{\Gamma T_1} - 4\wp |\sigma/n_s|^2, \quad (3.10)$$

где мы ввели в рассмотрение время релаксации населенности, $T_1 = 1/(\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow)$, однородное уширение активных молекул $\Gamma = \gamma_p + 1/(2T_1)$ и равновесное значение инверсной населенности $n_s = (\gamma_\uparrow - \gamma_\downarrow)/(\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow)$. Система уравнений имеет два стационарных решения, зависящих от параметра накачки $\wp = \wp_0 n_s$, где $\wp_0 = Ng^2/(\kappa\Gamma)$.

В случае $\wp < 1$, решение единственно и имеет вид $n = n_s$, $\sigma = 0$. Мы видим, что макроскопическая поляризация активных молекул равна нулю, и поэтому эта ситуация соответствует режиму работы нанолазера ниже порога генерации. В случае $\wp > 1$, приведенное выше решение теряет устойчивость, зато появляется новое устойчивое решение, которое определяется выражением $n = 1/\wp_0$, $|\sigma| = (n_s/2\wp)\sqrt{(\wp - 1)/\Gamma T_1}$ и описывает нанолазер, работающий в надпороговом режиме. В целом, ситуация полностью аналогична поведению высокодобротных лазеров [22, ch. 8.1.2].

Отметим, что оба решения совпадают в случае $\wp = 1$, и эта точка соответствует порогу генерации спазера. Напомним, что в главе 1 порог генерации был найден в рамках полуклассического рассмотрения. По смыслу уравнения (3.9) и (3.10) соответствуют уравнениям Блоха (1.4) и (1.5), в которых электрическое поле быстро релаксирует и все время успевает подстраиваться под состояние молекул, см. также работу [14].

3.3. Квантовые флуктуации ниже порога генерации

Теперь проанализируем уравнения, которые описывают флуктуации инверсии и поляризации относительно их средних значений. В режиме ниже порога генерации спазера, когда $\wp < 1$, уравнение на функцию распределения (3.8) принимает вид:

$$\begin{aligned} \frac{\partial P}{\partial t} = & \Gamma(1 - \wp) \left[\frac{\partial}{\partial \nu} \nu + \frac{\partial}{\partial \nu^*} \nu^* \right] P + \frac{1}{T_1} \frac{\partial}{\partial \mu} \mu P \\ & + \frac{2\gamma_\uparrow \Gamma}{(\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow)} \frac{\partial^2 P}{\partial \nu \partial \nu^*} + \frac{4\gamma_\uparrow \gamma_\downarrow}{\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow} \frac{\partial^2 P}{\partial \mu^2}. \end{aligned} \quad (3.11)$$

Это уравнение Фоккера-Планка с линейными коэффициентами, которое легко решается после разделения переменных. Будем искать его решение в виде

$$P(\nu, \nu^*, \mu, t) = X(\nu_1, t)Y(\nu_2, t)M(\mu, t), \quad (3.12)$$

где $\nu = \nu_1 + i\nu_2$ и $\nu^* = \nu_1 - i\nu_2$. Подставляя этот анзатц в уравнение (3.11), мы получаем соотношения

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \Gamma \left[(1 - \wp) \frac{\partial}{\partial \nu_1} \nu_1 + \frac{\gamma_{\uparrow} T_1}{2} \frac{\partial^2}{\partial \nu_1^2} \right] X, \quad (3.13)$$

$$\frac{\partial Y}{\partial t} = \Gamma \left[(1 - \wp) \frac{\partial}{\partial \nu_2} \nu_2 + \frac{\gamma_{\uparrow} T_1}{2} \frac{\partial^2}{\partial \nu_2^2} \right] Y, \quad (3.14)$$

$$\frac{\partial M}{\partial t} = \left[\frac{1}{T_1} \frac{\partial}{\partial \mu} \mu + \frac{4\gamma_{\uparrow}\gamma_{\downarrow}}{\gamma_{\uparrow} + \gamma_{\downarrow}} \frac{\partial^2}{\partial \mu^2} \right] M. \quad (3.15)$$

Все эти уравнения имеют вид

$$\frac{\partial F}{\partial t} = \left(A \frac{\partial}{\partial x} x + \frac{D}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right) F, \quad (3.16)$$

где A и D — некоторые постоянные коэффициенты. Функция Грина такого уравнения и его стационарное решение определяются выражениями:

$$F(x, t|x_0, 0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi(D/2A)(1-e^{-2At})}} \exp \left[-\frac{1}{2} \frac{(x-x_0e^{-At})^2}{(D/2A)(1-e^{-2At})} \right], \quad (3.17)$$

$$F_{ss}(x) = \lim_{t \rightarrow \infty} P(x, t|x_0, 0) = \sqrt{A/(\pi D)} e^{-Ax^2/D}. \quad (3.18)$$

Зная функцию $P(\nu, \nu^*, \mu, t)$, мы с помощью (3.7) и (3.8) можем выполнить обратную замену переменных и найти исходную функцию распределения $\tilde{P}(v, v^*, m, t)$. Она позволит нам вычислять нормально-упорядоченные корреляционные функции для коллективных операторов молекул, которые в свою очередь определяют корреляционные функции поля в резонаторе. После объемных, но несложных вычислений, мы находим:

$$\langle a^+ a \rangle_{ss, <} = \frac{g^2}{\kappa^2} \langle J_+ J_- \rangle_{ss, <} = \frac{Ng^2}{\kappa^2(1-\wp)} \frac{\gamma_{\uparrow}}{\gamma_{\uparrow} + \gamma_{\downarrow}}, \quad (3.19)$$

$$g_{<}^{(1)}(\tau) = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\langle a^+(t) a(t+\tau) \rangle_{<}}{\langle a^+ a \rangle_{ss, <}} = e^{-\Gamma(1-\wp)\tau} e^{-i\omega\tau}, \quad (3.20)$$

$$g_{<}^{(2)}(\tau) = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\langle a^+(t) a^+(t+\tau) a(t+\tau) a(t) \rangle_{<}}{\langle a^+ a \rangle_{ss, <}^2} = 1 + e^{-2\Gamma(1-\wp)\tau}. \quad (3.21)$$

Одновременная корреляционная функция (3.19) вычислялась с помощью соотношения (3.5), а для двумерных нормально-упорядоченных корреляторов, например (3.20-3.21), справедливо более сложное, но интуитивное понятное выражение

$$\langle J_+^p(t) \widehat{N}(t + \tau) J_-^q(t) \rangle = \int d^2v \int dm \int d^2v_0 \int dm_0 v_0^{*p} v_0^q N(v, v^*, m) \times \tilde{P}(v, v^*, m, \tau | v_0, v_0^*, m_0, 0) \tilde{P}(v_0, v_0^*, m_0, t), \quad (3.22)$$

где $\widehat{N}(t + \tau)$ — произвольный нормально-упорядоченный оператор. Строгий вывод этого соотношения можно найти в книге [22, ch. 4.3].

Выражения для двумерных корреляционных функций (3.20) и (3.21) совпадают с аналогичными выражениями для высокодобротного лазера, с точностью до замены $\Gamma \rightarrow \kappa$, поскольку мы адиабатически исключаем плазмонную моду, а не поляризацию активных атомов [22, ch. 8.1.4]. Отметим еще раз, что в силу этого приближения наш метод позволяет разрешать только времена $\tau \gg 1/\kappa$. Динамика на меньших временах была рассмотрена в работе [52], но только для модели с одной активной молекулой.

В случае $\varphi = 1$ переносной член в уравнении (3.11) исчезает, и поэтому пропадает возвращающая сила, которая предотвращает неограниченный рост флуктуаций. По этой причине, выражение для среднего числа плазмонов в резонаторе (3.19) расходится в точке $\varphi = 1$. Уравнение (3.11) не может корректно описать поведение системы в пороге генерации. Поведение низкодобротного лазера в пороге обсуждается, например, в работе [53].

3.4. Квантовые флуктуации выше порога генерации

Перейдем к описанию флуктуаций в режиме выше порога генерации, когда $\varphi > 1$. Как следует из стационарного решения макроскопических уравнений (3.9) и (3.10), в этом случае фаза поляризации может быть произвольной. Поэтому удобнее вместо соотношения (3.7) сделать другую замену перемен-

ных:

$$ve^{i\omega t}/N = e^{iN^{-1/2}\psi} \left(|\sigma| + N^{-1/2}\nu \right). \quad (3.23)$$

Теперь переменная ν описывает флуктуации амплитуды поляризации активных молекул, и поэтому она изменяется в диапазоне $-N^{1/2}|\sigma| \leq \nu \leq \infty$, а переменная ψ соответствует флуктуациям фазы поляризации. Функция распределения, характеризующая флуктуации и нормированная на единицу по отношению к мере интегрирования $d\nu d\psi d\mu$, определяется выражением

$$P(\nu, \psi, \mu, t) \equiv N^{3/2} \left(|\sigma| + N^{-1/2}\nu \right) \tilde{P}(v(\nu, \psi, t), v^*(\nu, \psi, t), m(\mu, t), t). \quad (3.24)$$

Проводя преобразования, аналогичные преобразованиям, рассмотренным в конце разделе 3.1, мы получаем уравнение, описывающее эволюцию этой функции распределения.

В пределе небольших флуктуаций амплитуды поляризации, когда $|\sigma| \gg N^{-1/2}\nu$, переменные частично разделяются, и мы можем искать решение этого уравнения в виде $P(\nu, \psi, \mu, t) = J(\nu, \mu, t)\Phi(\psi, t)$. Более того, согласно экспериментальным данным из работ [54, 55], мы можем положить $\Gamma T_1 \gg 1$. В рамках этих приближений, эволюция функций J и Φ удовлетворяет следующим уравнениям:

$$\frac{\partial J}{\partial t} = \sqrt{\frac{\Gamma(\wp - 1)}{4T_1}} \left[8 \frac{\partial}{\partial \mu} \nu - \frac{\partial}{\partial \nu} \mu \right] J + \frac{1}{T_1} \frac{\partial}{\partial \mu} \mu J + \frac{\gamma_p}{4} \left(1 + \frac{1}{\wp_0} \right) \frac{\partial^2}{\partial \nu^2} J, \quad (3.25)$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = \gamma_p \frac{\Gamma T_1 (\wp_0 + 1) \wp_0}{(\wp - 1)} \frac{\partial^2}{\partial \psi^2} \Phi. \quad (3.26)$$

Уравнение (3.25) представляет собой частный случай многомерного уравнение Фоккера-Планка с линейными коэффициентами. В общем виде такое уравнение может быть записано в виде

$$\frac{\partial F}{\partial t} = \left(-x'^T A x + \frac{1}{2} x'^T D x' \right) F, \quad (3.27)$$

где x' — вектор-столбец, составленный из элементов $(x')_i \equiv \partial/\partial x_i$. Предполагается, что все собственные значения матрицы A имеют отрицательную

действительную часть (стационарное решение устойчиво) и что матрица D положительно определена. Уравнение (3.27) является обобщением уравнения (3.16) на многомерный случай. Корреляционные функции можно записать в виде матрицы $C(t', t)$, элементы которой равны

$$C(t', t)_{ij} \equiv \langle [x_i(t') - \langle x_i(t') \rangle] [x_j(t) - \langle x_j(t) \rangle] \rangle. \quad (3.28)$$

Для вычисления объектов типа (3.20) и (3.21) выше порога генерации нам понадобится только стационарное значение этой матрицы

$$C_{ss} = \lim_{t \rightarrow \infty} C(t + \tau, t) = \begin{cases} e^{A\tau} C_\infty, & \tau \geq 0, \\ C_\infty e^{-A^T \tau}, & \tau \leq 0, \end{cases} \quad (3.29)$$

где $C_\infty = \lim_{t \rightarrow \infty} C(t, t)$ удовлетворяет уравнению

$$AC_\infty + C_\infty A^T = -D. \quad (3.30)$$

Найдем среднее число плазмонов в резонаторе выше порога генерации. Поскольку оно выражается через одновременную корреляционную функцию, то флуктуации фазы поляризации ψ не оказывают на него никакого влияния. С помощью соотношения (3.23), находим

$$\langle a^+ a \rangle_{ss, >} = \frac{g^2}{\kappa^2} \langle J_+ J_- \rangle_{ss, >} = \left(\frac{Ng}{\kappa} \right)^2 \left(|\sigma|^2 + \frac{\langle \nu^2 \rangle}{N} \right). \quad (3.31)$$

Здесь последнее слагаемое описывает флуктуации амплитуды поляризации и соответствует элементу матрицы C_∞ , который можно найти воспользовавшись уравнением (3.30). После несложных вычислений, получаем:

$$\langle a^+ a \rangle_{ss, >} - \frac{\Gamma(\wp - 1)}{4T_1 g^2} = \frac{\gamma_p(\wp_0 + 1)}{8\kappa} [2\Gamma T_1 + 1/(\wp - 1)]. \quad (3.32)$$

Второе слагаемое в левой части соответствует первому слагаемому в уравнении (3.31) и представляет собой вклад от среднего значения поляризации активных молекул, которое отлично от нуля выше порога генерации. Правая

часть полностью определяется флуктуациями. Наша теория корректна, если флуктуации малы. Достаточно далеко от порога, когда $\Gamma T_1(\wp - 1) \gg 1$, это приводит к условию $\wp - 1 \gg (\gamma_p/\kappa)(gT_1)^2(\wp_0 + 1)$. Таким образом, наше рассмотрение непротиворечиво, только если $(\gamma_p/\kappa)(gT_1)^2 \ll 1$.

Для вычисления двумерных корреляционных функций, нам нужно решить уравнение (3.26). Его решение будет несколько отличаться от решения уравнения (3.16), поскольку мы должны принять во внимание периодические граничные условия для переменной $\tilde{\psi} = N^{-1/2}\psi$, которая изменяется в диапазоне $0 \leq \tilde{\psi} < 2\pi$. Для удобства также перемасштабируем функцию распределения $\tilde{\Phi} = N^{-1/2}\Phi$. В новых переменных функция Грина будет определяться выражением

$$\tilde{\Phi}(\tilde{\psi}, t | \tilde{\psi}_0, 0) = \frac{1}{2\pi} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \exp \left[im(\tilde{\psi} - \tilde{\psi}_0) - Dm^2t \right], \quad (3.33)$$

где D — коэффициент диффузии в соответствующем перемасштабированном уравнении, см. также исходное уравнение (3.26),

$$D = \gamma_p \frac{\Gamma T_1}{N} \frac{\wp_0(\wp_0 + 1)}{(\wp - 1)} = \frac{\gamma_p \Gamma}{4} \frac{\hbar\omega(\wp_0 + 1)}{P_{>}} \ll 1/T_1. \quad (3.34)$$

В последнем равенстве мы переписали коэффициент диффузии через генерируемую мощность $P_{>} = \kappa \hbar\omega \langle a^+ a \rangle_{ss,>}$. Стационарная функция распределения однородна, $\tilde{\Phi}_{ss} = 1/2\pi$.

Теперь мы готовы вычислить двумерные корреляционные функции. С помощью выражения (3.23) находим, что корреляционная функция первого порядка определяется выражением

$$g_{>}^{(1)}(\tau) = e^{-i\omega\tau} \lim_{t \rightarrow \infty} \left\langle e^{-i\tilde{\psi}(t)} e^{i\tilde{\psi}(t+\tau)} \right\rangle \left(1 + \frac{\langle \nu(t)\nu(t+\tau) - \nu^2 \rangle}{N|\sigma|^2} \right). \quad (3.35)$$

Усреднение по флуктуациям фазы производится с помощью функции Грина (3.33) и соотношения (3.22), а усреднение по флуктуациям амплитуды поляризации с помощью формулы (3.29). В итоге, для интересующей нас области

выше порога генерации, когда $\Gamma T_1(\wp - 1) \gg 1$, мы получаем ($\tau \gg 1/\kappa$)

$$g_{>}^{(1)}(\tau) = e^{-(i\omega + D)\tau} \left[1 - DT_1 + DT_1 e^{-\tau/2T_1} \cos \left(\sqrt{2\Gamma T_1(\wp - 1)} \tau / T_1 \right) \right]. \quad (3.36)$$

Из этого выражения видно, что ширина спектральной линии определяется коэффициентом диффузии D . Слагаемые, пропорциональные малому параметру $DT_1 \ll 1$, соответствуют флуктуациям амплитуды поляризации. Качественно результаты похожи на случай высокочастотного лазера, см. выражение [22, (8.138)]. Однако механизм, который приводит к сужению спектральной линии (по сравнению со случаем ниже порога генерации), принципиально другой. Более подробно этот вопрос обсуждается в следующем разделе.

Аналогично, для корреляционной функции второго порядка, с помощью выражения (3.23) находим, что

$$g_{>}^{(2)}(\tau) = \lim_{t \rightarrow \infty} \left(1 + \frac{4\langle \nu(t + \tau)\nu(t) \rangle}{N|\sigma|^2} \right). \quad (3.37)$$

Производя усреднение так же, как и раньше, для области достаточно далекой от порога генерации, когда $\Gamma T_1(\wp - 1) \gg 1$, получаем ответ ($\tau \gg 1/\kappa$)

$$g_{>}^{(2)}(\tau) = 1 + 4DT_1 e^{-\tau/2T_1} \cos \left(\sqrt{2\Gamma T_1(\wp - 1)} \tau / T_1 \right). \quad (3.38)$$

Затухающие осцилляции в форме кривой $g_{>}^{(2)}(\tau)$ характерны для низкочастотных лазеров [53]. Как мы обсуждали ранее, наше рассмотрение справедливо только в режиме слабого шума, т.е. когда $g_{>}^{(2)}(0) - 1 \ll 1$. Аналогичное поведение корреляционной функции второго порядка наблюдалось в численном моделировании [56], но в этой работе авторы имели дело с режимом сильных флуктуаций. Отметим, что в случае высокочастотных лазеров флуктуации амплитуды поляризации не приводят к осцилляциям в функции $g_{>}^{(2)}(\tau)$, см. [22, (8.139)]. В следующем разделе мы объясним происхождение этих колебаний и выясним, когда поведение, характерное для высокочастотных лазеров, сменяется поведением, характерным для низкочастотных лазеров.

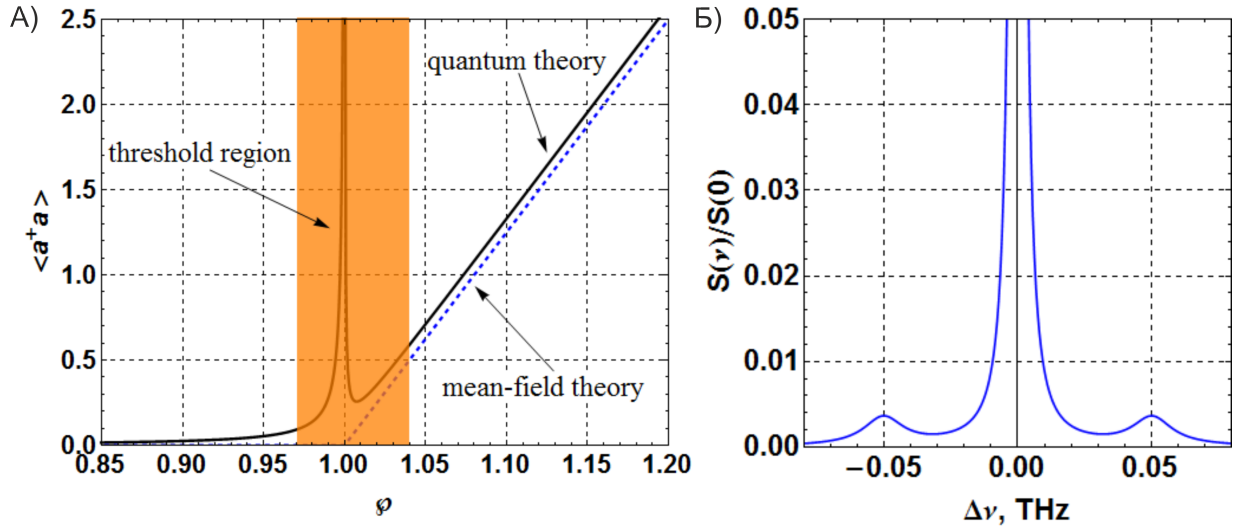


Рис. 3.1. (а) Зависимость среднего числа плазмонов в резонаторе от параметра накачки \wp для следующих параметров задачи: $\kappa = 2 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $\Gamma = 5 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $g = 10^{11} \text{ s}^{-1}$, $\gamma_{\uparrow} = 9 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$, $\gamma_{\downarrow} = 10^{10} \text{ s}^{-1}$. Пунктирная линия соответствует теории среднего поля, сплошная линия учитывает эффекты, связанные с квантовыми флуктуациями. (б) Спектральная линия, нормированная на единицу, выше порога генерации с поправками, которые возникают из-за флуктуаций амплитуды поляризации.

3.5. Численные параметры и обсуждение

Чтобы представить результаты, мы должны выбрать численные значения для параметров, используемых в нашей теории. Для активных молекул мы будем считать $\Gamma = 5 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $\gamma_{\downarrow} = 10^{10} \text{ s}^{-1}$, $\gamma_{\uparrow} = 9 \cdot 10^{10} \text{ s}^{-1}$, основываясь на экспериментальной работе [54]. Далее, чтобы процедура адиабатического исключения плазменной моды была законна, мы положим $\kappa = 2 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ и $g = 10^{11} \text{ s}^{-1}$. В экспериментах и других теоретических работах, например, [8, 58], скорость затухания плазмонов κ обычно несколько меньше, а константа взаимодействия g — несколько больше, чем используемые нами параметры. Поэтому наши значения легко могут быть реализованы на практике, и такой их выбор представляется разумным. Для изменения параметра накачки \wp мы варьируем число N активных молекул.

На Рис. 3.1(а) мы построили зависимость среднего числа плазмонов в резонаторе от параметра накачки \wp в областях ниже и выше порога гене-

рации. Пунктирная линия соответствует полуклассической теории среднего поля, см. уравнения (3.9) и (3.10), а сплошная линия принимает во внимание поправки, связанные с квантовыми флуктуациями, см. уравнения (3.19) и (3.32). Отметим, что вблизи порога генерации, $\varphi \sim 1$, среднее число плазмонов в резонаторе $\langle a^+a \rangle < 1$. Несмотря на это обстоятельство, спектральная линия, которая ниже порога генерации имеет ширину порядка Γ (3.20), существенно сужается при переходе через порог, и ее ширина становится порядка D выше порога генерации (3.36). Если $\varphi - 1 = 0.1$, то мы находим, что $D/\Gamma \sim 1/850$. Также заметим, что флуктуации амплитуды поляризации незначительно изменяют форму спектральной линии выше порога генерации, см. Рис 3.1(б). Форма спектральной линии была получена с помощью Фурье-преобразования от первой корреляционной функции (3.36). Высота боковых пиков на графике мала по сравнению с высотой центрального пика по параметру $(DT_1)^2 \ll 1$.

В случае высокочастотных лазеров спектральная линия становится уже выше порога генерации благодаря вынужденному излучению, которое начинает доминировать по сравнению со спонтанным излучением. В этом случае среднее число фотонов в резонаторе вблизи порога генерации значительно больше одного [22, 50]. В нашем случае среднее число плазмонов меньше одного. Поскольку спектральная линия все же сужается, вновь рождаемый плазмон должен быть когерентен уже распавшемуся плазмону. Это возможно, если когерентность сохраняется в состоянии активных молекул. Изначально рожденный плазмон взаимодействует с активными молекулами и делает их когерентными друг другу. После чего, этот плазмон распадается за короткое время $\sim 1/\kappa$, но информация о когерентности все еще хранится в состоянии активных молекул, которые релаксируют медленнее, $1/\Gamma \gg 1/\kappa$. Следующий плазмон, генерируемый такими активными молекулами, будет когерентен предыдущему. Возможность такого механизма сужения спектральной линии была продемонстрирована экспериментально на примере лазера с обыч-

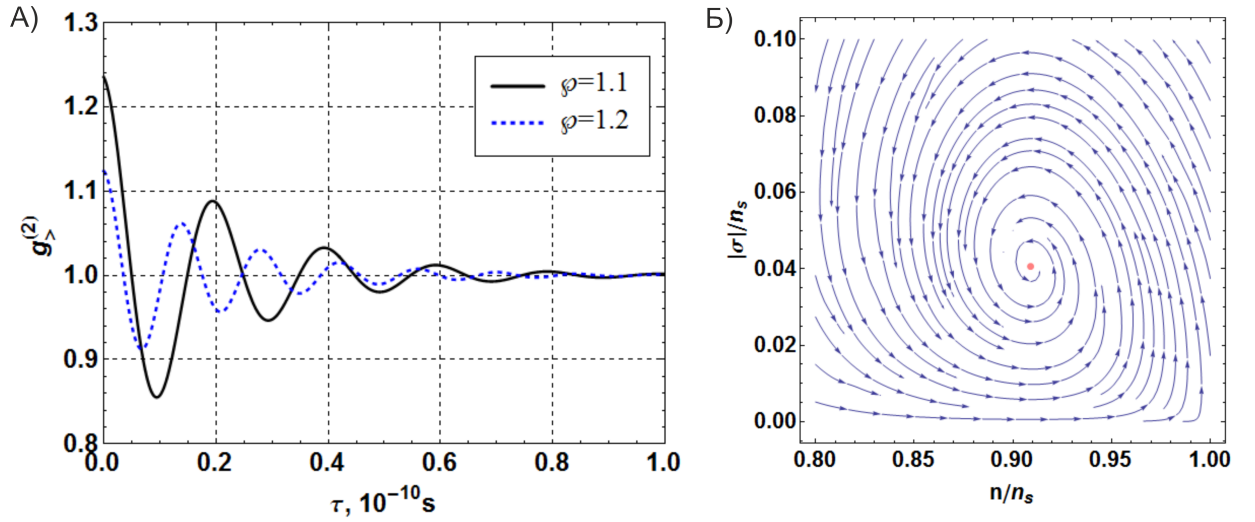


Рис. 3.2. (а) Корреляционная функция второго порядка выше порога генерации. Численные параметры такие же, как и на Рис. 3.1. (б) Векторное поле, полученное из анализа правой части макроскопических уравнений; используемые параметры $\varphi = 1.1$, $n_s = 0.8$ и $\Gamma T_1 = 50$. Движение по спирали к стационарному решению (красная точка) приводит к затухающим осцилляциям в форме кривой $g_{>}^{(2)}(\tau)$.

ным резонатором (для фотонов, а не для плазмонов) в работе [60]. Отметим, что наша теория напрямую не применима к этому эксперименту, поскольку используемое нами предположение $\Gamma T_1 \gg 1$ оказывается нарушенным. Другая экспериментальная реализация была выполнена на примере плазмонного нанолазера, см. работу [8]. В этом эксперименте среднее число плазмонов вблизи порога генерации также было меньше единицы, $\langle a^+ a \rangle \sim 0.2$. В самом деле, суммарная мощность, поглощаемая одним нанолазером, была равна $P_W \sim \langle a^+ a \rangle \hbar \omega^2 \tau_p / Q$, где $\tau_p = 5$ ns — длительность импульса накачки, измеренное значение $P_W = 10^{-13}$ J вблизи порога генерации, $Q = 13.2$ и $\hbar \omega = 2.3$ eV. Численные параметры, использованные нами для Рис 3.1, немного отличаются от параметров работы [8]. Причина заключается в том, что для экспериментальных параметров флуктуации амплитуды поляризации оказываются велики, см. уравнение (3.32), и наша теория становится не очень хорошо применима. Тем не менее, мы считаем, что качественно предложенная картина остается справедливой.

Далее, на Рис. 3.2(а) мы построили корреляционную функцию второго

порядка выше порога генерации в соответствии с выражением (3.38). Зависимость справедлива, если $\tau \gg 1/\kappa$, поскольку она была получена в пределе низкой добротности плазмонного резонатора. Чтобы объяснить природу затухающих осцилляций, мы также построили векторное поле в плоскости $n-|\sigma|$, см. Рис. 3.2(б), которое соответствует правой части макроскопических уравнений (3.9) и (3.10). Красная точка на этом рисунке обозначает стационарное решение этих уравнений. Флуктуации выводят систему из ее положения равновесия, и затем она релаксирует обратно. Движение по спирали, в соответствии с построенным векторным полем, приводит к затухающим осцилляциям в амплитуде поляризации $|\sigma|$ и инверсной населенности n , и как следствие — к затухающим осцилляциям в форме корреляционной функции второго порядка. Качественно результаты выглядят похожими на результаты численного моделирования [56], где наблюдались схожие осцилляции и максимум корреляционной функции второго порядка при $\tau = 0$. Однако непосредственное численное сравнение с нашими результатами невозможно, поскольку в работе [56] авторы анализируют режим сильных флуктуаций.

Аналогичным образом можно проанализировать поведение лазеров произвольной добротности Q . В этом случае мы должны выйти за рамки используемого низкодобротного приближения. Вместо макроскопических уравнений (3.9) и (3.10), мы будем рассматривать полную систему уравнений Максвелла-Блоха, см. работу [14]. Эволюция флуктуаций амплитуды поляризации в окрестности стационарного решения определяется тремя собственными значениями. Одно из них всегда действительно и отрицательно. Два других могут быть либо действительными, либо комплексно-сопряженными, что соответствует отсутствию осцилляций или осциллирующему характеру корреляционной функции второго порядка. Собственные значения полностью определяются тремя параметрами: κT_1 , ΓT_1 и φ . На Рис. 3.3 мы построили соответствующую фазовую диаграмму в логарифмических координатах и для различных значений параметра накачки $\varphi > 1$. Область ниже и правее

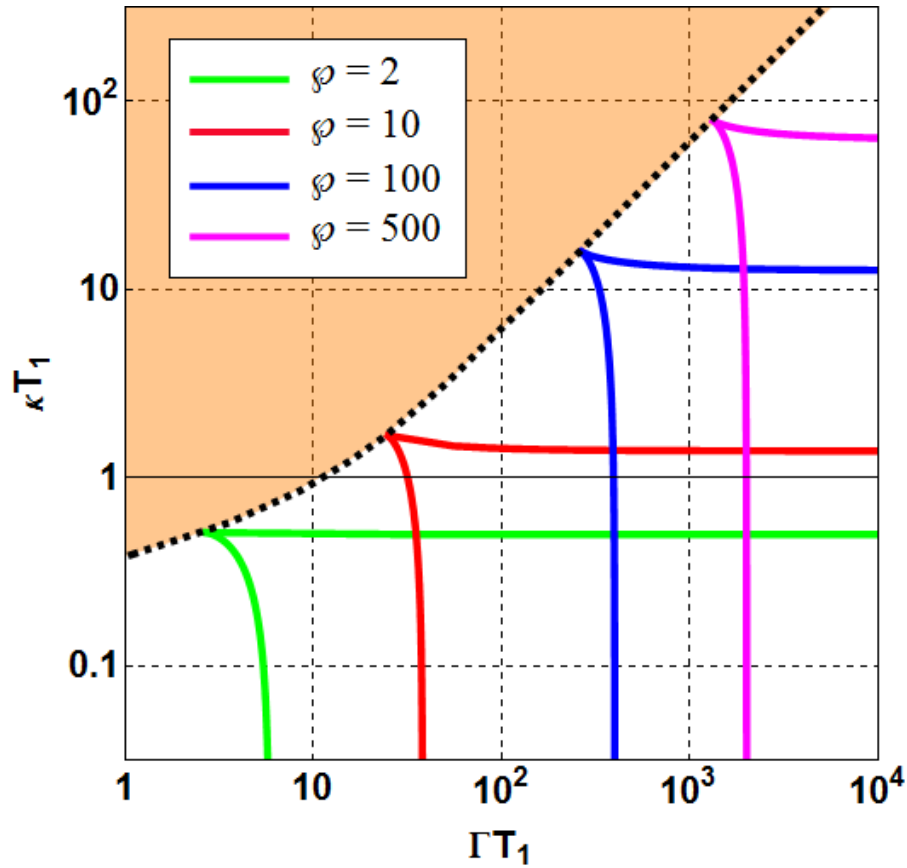


Рис. 3.3. Фазовая диаграмма, содержащая информацию о наличии осцилляций в форме кривой $g_{>}^{(2)}(\tau)$, для различных параметров накачки φ . Область снизу и справа от соответствующей кривой определяет режим без осцилляций. Закрашенная область выше пунктирной линии соответствует низкодобротным лазерам.

сплошных кривых обозначает режим без осцилляций. Параметры из закрашенной области выше пунктирной кривой всегда соответствуют осцилляциям в форме кривой $g_{>}^{(2)}(\tau)$. Эта область низкодобротных лазеров, где механизм сужения спектральной линии при переходе через порог генерации основан на сохранении когерентности в состоянии активных молекул. Асимптотическое поведение ($\varphi \gg 1$) пунктирной линии было получено численно, и оно соответствует зависимостям $\kappa T_1 \approx 0.16\varphi$ и $\Gamma T_1 \approx 2.5\varphi$. В области ниже пунктирной линии возможны как осциллирующее так и неосциллирующее поведение кривой $g_{>}^{(2)}(\tau)$, в зависимости от параметра накачки φ . Таким образом, форма корреляционной функции второго порядка содержит недостаточно информации для определения механизма сужения спектральной линии. Ответ на этот

вопрос содержится в фазовой диаграмме, изображенной на Рис. 3.3, закрашенная область отвечает низкодобротным лазерам.

3.6. Выводы

В данной главе мы изложили квантовую теорию плазмонного нанолазера, построенную в предположении низкодобротного резонатора. Мы обнаружили, что среднее число плазмонов в резонаторе вблизи порога генерации может быть меньше единицы, как в нашей теории, так и в эксперименте [8]. Несмотря на этот факт, ширина спектральной линии значительно уменьшается при переходе через порог. Мы утверждаем, что такое поведение возможно, поскольку когерентность сохраняется в состоянии активных молекул, которые релаксируют значительно медленнее, чем происходит затухание плазмонной моды. Мы также изучили амплитудные флуктуации излучения и пришли к выводу, что они незначительно изменяют форму спектральной линии и приводят к затухающим колебаниям в форме корреляционной функции второго порядка $g^{(2)}(\tau)$ выше порога генерации. Такое поведение необычно для высокодобротных лазеров, и мы исследовали в деталях при каких соотношениях между скоростью затухания плазмонов κ и однородным уширением активных молекул Γ реализуется режим с осцилляциями и без них.

По своей задумке плазмонный нанолазер очень похож на обычный лазер, поэтому для описания его работы часто используют теории, хорошо изученные для высокодобротных лазеров. Наше исследование было одним из первых, которое позволило взглянуть на спазеры со стороны низкодобротных лазеров. Результаты анализа позволяют сказать, что между этими двумя подходами имеются существенные качественные различия. Полученные нами результаты позволяют глубже понять фундаментальные принципы работы плазмонных нанолазеров.

Глава 4

Генерация завихренности поверхностными волнами

В данной главе мы переходим ко второй части диссертационной работы, посвященной нелинейному явлению генерации вихревого движения на поверхности жидкости вследствие взаимодействия поверхностных волн. Это явление было недавно обнаружено и исследовано экспериментально [10, 11, 61]. Оказалось, что статистические характеристики такого поверхностного движения удивительным образом описываются теми же соотношениями, что и статистика развитой двумерной турбулентности. В частности, в системе наблюдается обратный каскад энергии и образование крупномасштабных когерентных структур — конденсата [61]. Следует подчеркнуть, что поле скорости при этом существенно трехмерно и что все результаты были получены в экспериментах на глубокой воде [11, 61].

Данное явление следует изучать как минимум по трем причинам. Во-первых, на первый взгляд кажется, что изучение такого поверхностного течения может многое рассказать про статистические свойства двумерной турбулентности. Основной выигрыш заключается в простоте генерации этого вихревого движения, поскольку возбуждать поверхностные волны достаточно просто. Во-вторых, возбуждение поверхностных волн легко контролировать, а умение создавать вихревое движение заданной формы может быть полезно в самых разнообразных задачах, связанных с эффективным перемешиванием [13]. Наконец, данное явление имеет непосредственное отношение к движению поверхности океана. Оно, наряду с дрейфом Стокса, может играть существенную роль в перемещении планктона или загрязняющих веществ вблизи его поверхности [12].

Эта глава посвящена построению количественной теории явления генерации вертикальной завихренности поверхностными волнами в слабо нелинейном режиме. Поверхностные волны часто описывают в рамках потенциального приближения, однако, согласно теореме Кельвина [62], в этом случае образование завихренности невозможно. Оказывается, что вязкость жидкости играет в этой истории ключевую роль. Она нарушает потенциальное приближение и приводит к образованию направленной горизонтально завихренности, сконцентрированной в узком вязком подслое вблизи поверхности жидкости. Затем нелинейное взаимодействие поверхностных волн приводит к образованию завихренности, направленной вертикально: грубо можно сказать, что поверхностные волны слегка поворачивают горизонтальную завихренность вследствие ненулевого наклона поверхности. Удивительно, что скорость вихревого движения на поверхности жидкости, связанная с вертикальной завихренностью, не зависит от вязкости жидкости, хотя она и производится вследствие вязкого механизма — новый пример *вязкой аномалии* в гидродинамике. Содержание главы основано на работе автора [63].

4.1. Влияние вязкости в линейном приближении

Движение вязкой несжимаемой жидкости описывается уравнением Навье-Стокса [64, 65]

$$\partial_t \mathbf{v} + (\mathbf{v} \nabla) \mathbf{v} = -\nabla P / \rho + \nu \nabla^2 \mathbf{v}, \quad (4.1)$$

где ρ — плотность жидкости, ν — коэффициент кинематической вязкости, \mathbf{v} — поле скорости и P — давление. Уравнение (4.1) необходимо дополнить условием несжимаемости, $\operatorname{div} \mathbf{v} = 0$, и граничными условиями на свободной поверхности жидкости. Во-первых, это кинематическое граничное условие [64],

$$\partial_t h = v_z - v_x \partial_x h - v_y \partial_y h, \quad (4.2)$$

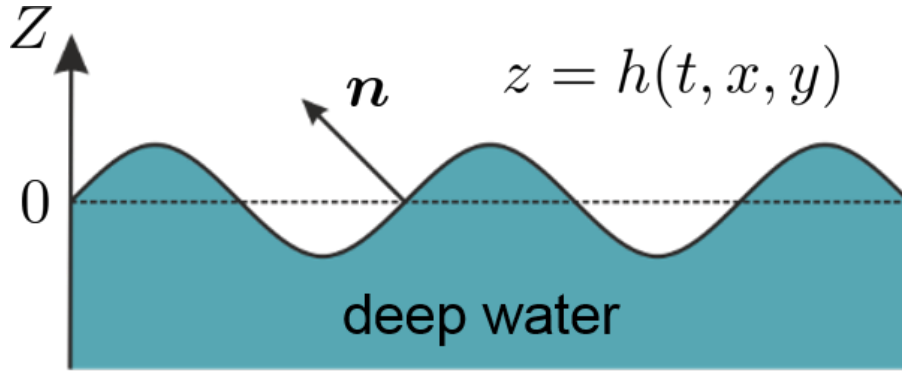


Рис. 4.1. Поверхностные волны в рассматриваемой системе.

которое означает, что поверхность жидкости движется со скоростью \mathbf{v} . Здесь и далее мы считаем, что ось Z направлена вертикально, противоположно ускорению свободного падения g , и что невозмущенная поверхность жидкости совпадает с плоскостью $z = 0$. Отклонение поверхности от равновесия характеризуется высотой поднятия $h(t, x, y)$, т.е. форма поверхности жидкости описывается уравнением $z = h(t, x, y)$, см. Рис. 4.1. Отметим, что слагаемое с давлением P в уравнении Навье-Стокса (4.1) учитывает гравитационные эффекты: $P = p + \rho g z$, где p — внутреннее давление в жидкости.

Во-вторых, это динамическое граничное условие, которое может быть получено из условия равенства нулю потока импульса через поверхность жидкости. Оно приводит к соотношениям [64, 65]

$$P - 2\rho\nu n_i n_k \partial_i v_k = \rho g h + \sigma(\nabla \mathbf{n}), \quad (4.3)$$

$$(\delta_{ij} - n_i n_j) n_k (\partial_j v_k + \partial_k v_j) = 0, \quad (4.4)$$

которые должны выполняться на поверхности жидкости при $z = h$. Здесь σ — коэффициент поверхностного натяжения, δ_{ij} — символ Кронекера и

$$\mathbf{n}(t, x, y) = \frac{(-\partial_x h, -\partial_y h, 1)}{\sqrt{1 + (\nabla h)^2}} \quad (4.5)$$

единичный вектор нормали к поверхности.

В дальнейшем мы рассматриваем ситуацию, когда на поверхности бесконечно глубокой жидкости возбуждено некоторое волновое движение. Мы

предполагаем, что амплитуда волн мала, т.е. $|\nabla h| \ll 1$. В линейном приближении мы имеем дело с гравитационно-капиллярными волнами, которые характеризуются дисперсионным соотношением $\omega^2 = gk + (\sigma/\rho)k^3$, где k — волновой вектор волны, а ω — ее частота. Мы также предполагаем, что затухание волн, обусловленное вязкостью, мало, т.е. $\gamma = \sqrt{\nu k^2/\omega} \ll 1$.

Линеаризованные уравнения (4.1)-(4.4) могут быть легко решены, см., например, книгу [64], и все величины, характеризующие поверхностные волны, могут быть выражены через отклонение поверхности от равновесия h . Для поля скорости мы находим:

$$v_\alpha = \nu[(\hat{\kappa}^2 + \hat{k}^2)/\hat{k}] \exp(\hat{k}z) \partial_\alpha h - 2\nu\hat{\kappa} \exp(\hat{\kappa}z) \partial_\alpha h, \quad (4.6)$$

$$v_z = \nu(\hat{\kappa}^2 + \hat{k}^2) \exp(\hat{k}z) h - 2\nu\hat{k}^2 \exp(\hat{\kappa}z) h. \quad (4.7)$$

Здесь и ниже греческие индексы принимают значения x, y , кроме того, мы ввели нелокальные операторы $\hat{k} = (-\partial_x^2 - \partial_y^2)^{1/2}$ и $\hat{\kappa} = (\partial_t/\nu + \hat{k}^2)^{1/2}$. Первые члены в правых частях выражений (4.6) и (4.7) соответствуют потенциальному вкладу в поле скорости, в то время как вторые — описывают поправки, обусловленные вязкостью. Мы видим, что роль вязкости заключается в незначительной коррекции потенциального вклада и в образовании дополнительных соленоидальных поправок. Отметим, что для поверхностных волн $\kappa \sim k/\gamma \gg k$, поэтому дополнительные поправки сконцентрированы вблизи поверхности жидкости и проникают на глубину $\gamma/k \ll 1/k$, где $1/k$ — глубина проникновения потенциальной части скорости.

По известному полю скорости можно легко вычислить завихренность, $\boldsymbol{\varpi} = \text{curl } \boldsymbol{v}$. С помощью соотношений (4.6) и (4.7) находим, что вертикальная компонента завихренности в линейном приближении равна нулю, $\varpi_z = 0$, а компонента, направленная вдоль поверхности, в главном приближении по параметру $\gamma \ll 1$ равна

$$\varpi_\alpha = 2\epsilon_{\alpha\beta} \exp(\hat{\kappa}z) \partial_\beta \partial_t h + O(\gamma^2), \quad (4.8)$$

где $\epsilon_{\alpha\beta}$ — единичный антисимметричный тензор. Как и последние слагаемые в выражениях (4.6) и (4.7), горизонтальная завихренность ϖ_α в линейном приближении сконцентрирована в узком вязком слое вблизи свободной поверхности жидкости. Глубина этого слоя равна $1/\kappa \sim \gamma/k \ll 1/k$.

4.2. Нелинейная генерация вертикальной завихренности

В линейном приближении Z -компонента завихренности ϖ_z равна нулю, она появляется только вследствие нелинейного взаимодействия поверхностных волн. Чтобы найти ее, мы должны выйти за рамки линейного приближения. Начнем наш анализ с написания формально точных уравнений. Взяв ротор от уравнения Навье-Стокса (4.1) и спроектировав его на Z -направление, мы находим

$$\partial_t \varpi_z - \nu \nabla^2 \varpi_z = -(\mathbf{v} \nabla) \varpi_z + (\boldsymbol{\varpi} \nabla) v_z. \quad (4.9)$$

Это уравнение необходимо сопроводить граничными условиями на свободной поверхности жидкости. Для этого подействуем оператором $\epsilon_{imn} n_m \partial_n$ на уравнение (4.4), где ϵ_{imn} — единичный антисимметричный тензор. В результате получим, что при $z = h$ справедливо равенство

$$n_m n_k \partial_k \varpi_m + (\partial_i v_k + \partial_k v_i) \epsilon_{imn} n_m K_{kn} = 0. \quad (4.10)$$

Здесь мы ввели тензор кривизны $K_{ik} = K_{ki} = (\delta_{ij} - n_i n_j) \partial_j n_k$ и воспользовались цепочкой равенств

$$\epsilon_{imn} n_m \partial_n n_i = \epsilon_{imn} n_m (\delta_{nj} - n_n n_j) \partial_j n_i = \epsilon_{imn} n_m K_{ni} = 0. \quad (4.11)$$

Симметрия тензора кривизны может быть проверена непосредственным вычислением с помощью соотношения (4.5).

Теперь учтем главный нелинейный вклад в уравнении на вертикальную завихренность (4.9). Этот вклад будет второго порядка по амплитуде поверхностных волн. Используя нелокальные операторы, введенные ранее, прихо-

дим к выражению

$$(\partial_z^2 - \hat{\kappa}^2)\varpi_z = -f, \quad f = \nu^{-1}\varpi_\alpha\partial_\alpha v_z. \quad (4.12)$$

На языке дифференциальных уравнений член в правой части является источником по отношению к вертикальной завихренности ϖ_z . Он соответствует повороту двумерного вектора ϖ_α полем скорости поверхностных волн. Мы должны удержать члены такого же порядка в граничном условии (4.10), которое теперь (с заданной точностью) может быть поставлено на невозмущенной поверхности жидкости $z = 0$:

$$\partial_z\varpi_z(0) = \partial_\alpha h\partial_z\varpi_\alpha - \epsilon_{\alpha\gamma}(\partial_\alpha v_\beta + \partial_\beta v_\alpha)\partial_\beta\partial_\gamma h. \quad (4.13)$$

Отметим, что второе слагаемое в правой части равенства (4.13) мало по сравнению с первым слагаемым по параметру $\gamma \ll 1$. Однако, как мы увидим далее, его необходимо удерживать, потому что оно может давать сравнимый вклад в значение вертикальной завихренности ϖ_z на поверхности жидкости.

Для начала решим уравнение (4.12) с граничным условием (4.13) и условием равенства нулю завихренности на бесконечности, $\varpi_z(-\infty) = 0$, удерживая только главные вклады по параметру $\gamma \ll 1$. С помощью решения линейной задачи (4.6)-(4.8) находим:

$$f = 2\nu^{-1}\epsilon_{\alpha\beta}\partial_\alpha\partial_t h e^{\hat{\kappa}z}\partial_\beta\partial_t h, \quad \partial_z\varpi_z(0) = 2\epsilon_{\alpha\beta}\partial_\alpha h\partial_\beta\partial_t \hat{\kappa}h. \quad (4.14)$$

Решение уравнения (4.12) дается выражением $\varpi_z = e^{\hat{\kappa}z}A(z) + e^{-\hat{\kappa}z}B(z)$, где $\partial_z A = -\hat{\kappa}^{-1}e^{-\hat{\kappa}z}(f/2)$, $\partial_z B = \hat{\kappa}^{-1}e^{\hat{\kappa}z}(f/2)$. Интегрируя эти выражения и используя соотношения (4.14), мы получаем:

$$\varpi_z(z) = 2\epsilon_{\alpha\beta}(\partial_\alpha h)(e^{\hat{\kappa}z}\partial_\beta\partial_t h). \quad (4.15)$$

Глубина проникновения этого вклада всегда мала $1/\kappa \sim \gamma/k \ll 1/k$. Если вертикальная завихренность медленно меняется во времени, $\omega_v \lesssim \nu k^2$, то поправки к выражениям (4.14) по параметру γ могут производить слагаемые,

которые будут иметь глубину проникновения порядка $1/k$. Такие слагаемые необходимо учитывать, потому что вследствие интегрирования они могут давать сравнимый вклад в конечный ответ для вертикальной завихренности. Поэтому, с нужной степенью точности, находим:

$$\begin{aligned} f &= 2\nu^{-1}\epsilon_{\alpha\beta}(e^{\hat{k}z}\partial_\alpha\partial_t h)(e^{\hat{k}z}\partial_\beta\partial_t h), \\ \partial_z\varpi_z(0) &= 2\epsilon_{\alpha\beta}(\partial_\alpha h\partial_\beta\partial_t\hat{k}h + \partial_\alpha\partial_\gamma h\partial_\beta\partial_\gamma\partial_t\hat{k}^{-1}h), \end{aligned} \quad (4.16)$$

и для вертикальной завихренности, получаем:

$$\begin{aligned} \varpi_z(z) &= 2\epsilon_{\alpha\beta}(e^{\hat{k}z}\partial_\alpha h)(e^{\hat{k}z}\partial_\beta\partial_t h) + \\ &2\epsilon_{\alpha\beta}\hat{k}^{-1}e^{\hat{k}z}(\partial_\alpha h\partial_\beta\partial_t\hat{k}h + \partial_\alpha\partial_\gamma h\partial_\beta\partial_\gamma\partial_t\hat{k}^{-1}h). \end{aligned} \quad (4.17)$$

Здесь первое слагаемое соответствует повороту горизонтальной завихренности (4.8), вызванному наклоном поверхности жидкости $\partial_\alpha h$, который отличен от нуля вследствие волнового движения. Второе слагаемое описывает результат распространения повернутой завихренности вглубь жидкости, а третье — обусловлено ненулевой кривизной поверхности, поскольку содержит вторую производную от отклонения h . Значение завихренности на поверхности жидкости получается подстановкой $z = 0$ в выражение (4.17).

Поскольку мы имеем дело с нелинейностью второго порядка, то характерная частота изменения завихренности ω_v может изменяться от нуля до порядка 2ω — нескольких частот поверхностных волн. Если $\omega_v \gg \nu k^2$, то первое слагаемое в выражении (4.17) определяющее, в противном случае — все слагаемые одного порядка.

4.3. Узкополосная накачка

В дальнейшем мы будем главным образом интересоваться значением завихренности на поверхности жидкости в случае, когда поверхностные волны имеют узкий спектр ширины $\Delta\omega$, сосредоточенный вблизи частоты $\omega \gg \Delta\omega$.

Предельный случай соответствует монохроматической накачке. Такая постановка задачи мотивирована экспериментальными результатами [63], в которых завихренность на поверхности жидкости восстанавливается путем наблюдения за движением легких частиц, а спектр поверхностных волн практически монохроматический.

Рассмотрим случай двух плоских волн, распространяющихся в произвольном направлении. Мы предполагаем, что их частоты ω_1 и ω_2 близки, т.е. $\Delta\omega \ll \omega$, где $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$, $\omega = (\omega_1 + \omega_2)/2$. Отклонение поверхности жидкости от равновесия описывается соотношением

$$h(\mathbf{r}, t) = H_1 \cos(\mathbf{k}_1 \mathbf{r} - \omega_1 t) + H_2 \cos(\mathbf{k}_2 \mathbf{r} - \omega_2 t), \quad (4.18)$$

где H_i — амплитуды волн, \mathbf{k}_i — их двумерные волновые вектора и $i = \overline{1, 2}$. Так как вертикальная завихренность ϖ_z появляется вследствие нелинейности второго порядка, то в значении завихренности на поверхности жидкости $\varpi_z(0)$ мы ожидаем вклады с частотами 2ω и $\Delta\omega$. Для вычисления быстрого вклада (с частотой 2ω) мы должны учитывать только первое слагаемое в правой части выражения (4.17), так как остальные члены малы вследствие неравенства $k/\kappa \sim \gamma \ll 1$. Для медленного вклада (с частотой $\Delta\omega$) оператор $\hat{\kappa}$ можно оценить как $\kappa \sim (\Delta\omega/\nu + k^2)^{1/2}$, и в случае $\Delta\omega \lesssim \nu k^2$ необходимо учитывать все слагаемые в выражении (4.17). Подставляя соотношение (4.18) в выражение (4.17), для вертикальной завихренности на поверхности получаем:

$$\begin{aligned} \varpi_z(0) = & -H_1 H_2 |\mathbf{k}_1| |\mathbf{k}_2| \sin \theta \left\{ [2\omega + (\omega_1 |\mathbf{k}_1| + \omega_2 |\mathbf{k}_2|) \hat{\kappa}^{-1}] \sin(\Delta \mathbf{k} \mathbf{r} - \Delta \omega t) - \right. \\ & \left. \Delta \omega \sin[2(\mathbf{k} \mathbf{r} - \omega t)] \right\} - H_1 H_2 |\mathbf{k}_1|^2 |\mathbf{k}_2|^2 \sin \theta \cos \theta \left(\frac{\omega_1}{|\mathbf{k}_1|} + \frac{\omega_2}{|\mathbf{k}_2|} \right) \hat{\kappa}^{-1} \sin(\Delta \mathbf{k} \mathbf{r} - \Delta \omega t), \end{aligned} \quad (4.19)$$

где $\mathbf{k} = (\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2)/2$, $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ и θ — угол между векторами \mathbf{k}_1 и \mathbf{k}_2 . Заметим, что амплитуда вклада с частотой 2ω меньше, чем амплитуда вклада с частотой $\Delta\omega$, их отношение $\sim \Delta\omega/2\omega$. Также обратим внимание, что завихренность на поверхности $\varpi_z(0)$ пропорциональна $\sin \theta$. Поэтому волны,

распространяющиеся в одинаковых или противоположных направлениях, не генерируют никакой завихренности. Для ее образования необходимо наличие по крайней мере двух волн, распространяющихся под углом друг к другу.

Особое внимание обратим на случай монохроматической накачки, когда $\Delta\omega = 0$. В этом случае из соотношения (4.19) следует, что завихренность на поверхности стационарна. Тогда во второй строке равенства (4.17) можно заменить оператор \hat{k} на оператор \hat{k} . Вторая строка этого равенства описывает вклад в завихренность, который проникает на глубину потенциального течения $1/k$, а первая — вклад, который сконцентрирован в узком приповерхностном слое глубины γ/k . На поверхности оба вклада имеют сравнимые амплитуды,

$$\varpi_z(0) = 2\epsilon_{\alpha\beta}\partial_\alpha h\partial_\beta\partial_t h + 2\epsilon_{\alpha\beta}\hat{k}^{-1}(\partial_\alpha h\partial_\beta\partial_t\hat{k}h + \partial_\alpha\partial_\gamma h\partial_\beta\partial_\gamma\partial_t\hat{k}^{-1}h). \quad (4.20)$$

Обратим внимание, что значение вертикальной завихренности на поверхности (4.20) не зависит от вязкости жидкости ν , хотя ненулевая вязкость играет принципиальную роль в нашей схеме. Именно благодаря ей в линейном приближении появляется тонкий слой вблизи поверхности жидкости с отличной от нуля горизонтальной завихренностью, которая впоследствии поворачивается за счет нелинейного взаимодействия поверхностных волн. Качественно это происходит потому, что значение горизонтальной завихренности (4.8) на поверхности в линейном приближении ($z = 0$) не зависит от вязкости жидкости, последняя определяет только глубину ее проникновения.

В заключение этого раздела обсудим условия применимости нашей теоретической схемы. Мы учитываем ведущий нелинейный вклад в рамках теории возмущений, поэтому наше описание справедливо, когда нелинейные члены более высоких порядков малы по сравнению с удержанными. Мы должны оценить нелинейные вклады более высоких порядков в уравнении (4.9), приняв во внимание только что найденные поправки к скорости $v^{(2)}$, связанные с вертикальной завихренностью. Из уравнения (4.20) следует, что $v^{(2)} \sim \omega kh^2$.

Поэтому нелинейные слагаемые с $v^{(2)}$ малы, если $(\mathbf{v}^{(2)}\nabla)\varpi_z \ll \nu\Delta\varpi_z$. В случае $\omega_v \lesssim \nu k^2$ мы приходим к условию $kh \ll \gamma$, которое сильнее условия малости амплитуды поверхностных волн $kh \ll 1$. Заметим, что это условие применимости можно также переписать в виде $\kappa h \ll 1$.

Исходно мы предполагали наличие в задаче двух малых параметров $kh \ll 1$ и $\gamma \ll 1$. Сейчас мы видим, что наши результаты для медленно меняющейся во времени завихренности согласованы, только если $kh \ll \gamma$. Если это условие нарушено, то необходимо принимать во внимание нелинейные члены более высоких порядков, которые, по всей видимости, приводят к формированию в системе обратного каскада [11, 61], однако рассмотрение этого случая выходит за рамки данной диссертационной работы.

4.4. Анализ экспериментальных данных

Теперь мы обсудим, как наша теоретическая схема может быть применена для анализа экспериментальных результатов. Все эксперименты были выполнены нашими соавторами по работе [63] из института физики твердого тела (ИФТТ) г. Черноголовка. В той же работе можно найти подробное описание используемых установок и методик проведения экспериментов. Здесь заметим, что для возбуждения волнового движения ячейки с водой помещались на виброплатформу. Параметры соответствовали режиму ниже порога фарадеевской неустойчивости, поэтому волны возбуждались за счет менисков на краях ячеек. Изменяя форму менисков, можно добиться возбуждения в ячейках стоячих и бегущих волн. Вихревое движение на поверхности восстанавливалось путем наблюдения за медленным движением частиц, предварительно добавленных в воду.

Первый эксперимент соответствовал возбуждению стоячих волн в X - и Y -направлениях в практически квадратной ячейке с размерами $50 \times 49 \text{ mm}^2$. Легкая асимметрия была привнесена специально, она приводит к различию

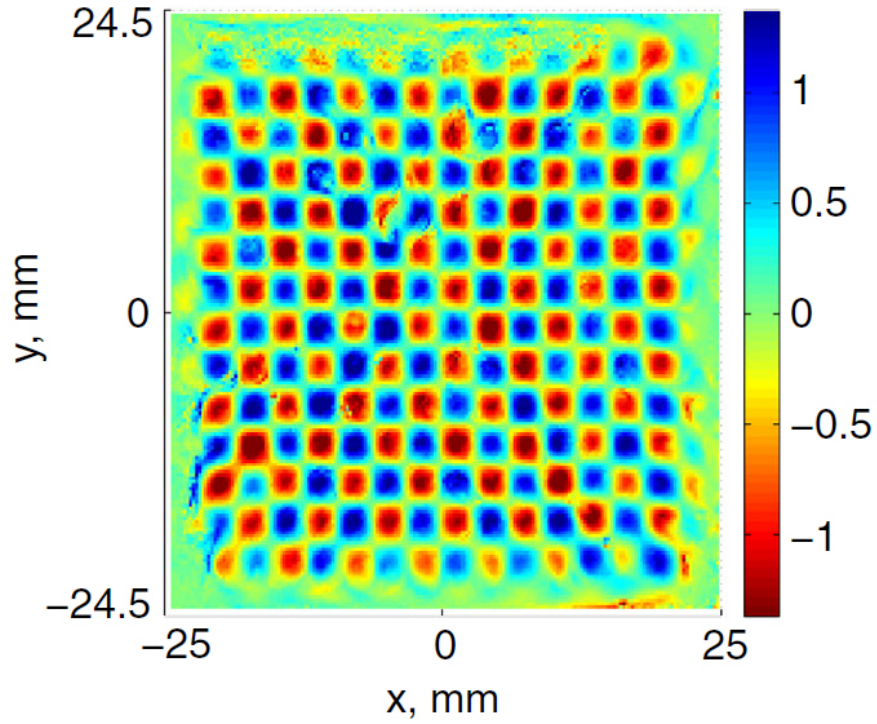


Рис. 4.2. Амплитуда завихренности (в относительных единицах) для ячейки с размерами $50 \times 49 \text{ mm}^2$, в которой возбуждены поверхностные волны с частотой 42.7 Hz.

в граничных условиях для волн в X - и Y -направлениях. В свою очередь, это различие приводит к ненулевому сдвигу фаз ψ между волнами, т.е. отклонение поверхности жидкости от равновесия описывается соотношением

$$h = H_1 \cos(\omega t) \cos(kx) + H_2 \cos(\omega t + \psi) \cos(ky), \quad (4.21)$$

где волновой вектор k определяется дисперсионным соотношением. Изменяя соотношение сторон ячейки, можно управлять сдвигом фаз ψ . Подставляя выражение (4.21) в соотношение (4.20), находим

$$\varpi_z(0) = -(2 + \sqrt{2}) \sin \psi H_1 H_2 \omega k^2 \sin(kx) \sin(ky). \quad (4.22)$$

Отметим, что результат не зависит от времени, что согласуется с выводами раздела 4.3. Сумма рационального и иррационального вкладов соответствует сумме двух слагаемых в (4.17), которые имеют различную глубину проникновения. Выражение (4.22) находится в качественном соответствии с результатами эксперимента, представленными на Рис. 4.2. Также отметим, что изменяя

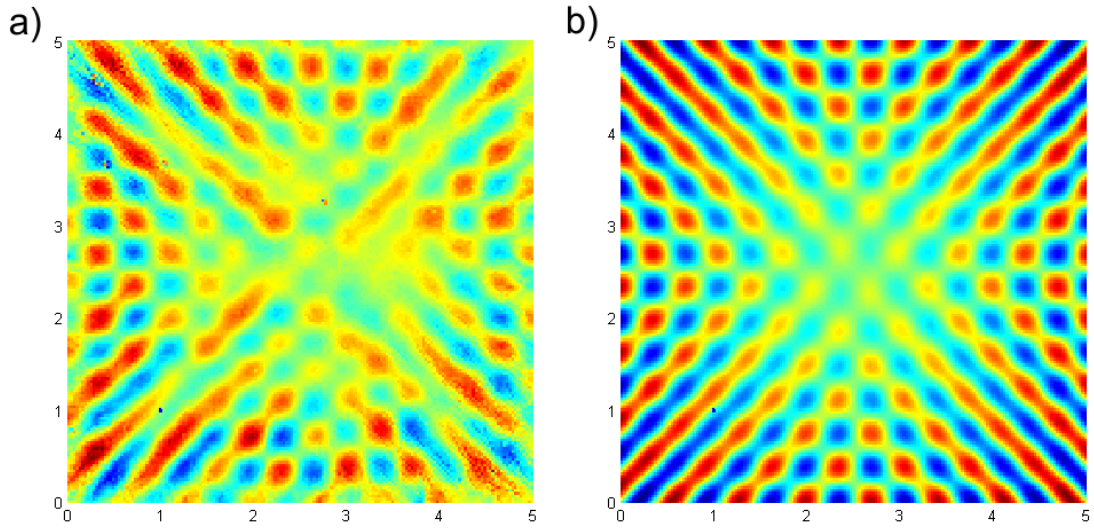


Рис. 4.3. Пространственная структура вертикальной завихренности в ячейке с размерами $50 \times 50 \text{ mm}^2$: (а) эксперимент и (б) теория.

амплитуду поверхностных волн, удалось экспериментально подтвердить, что завихренность появляется вследствие нелинейного эффекта второго порядка (квадратична по амплитуде поверхностных волн). Результаты этого эксперимента приведены в работе [63].

В случае идеально квадратной ячейки $50 \times 50 \text{ mm}^2$ сдвиг фаз ψ между волнами близок к нулю. В этой ситуации амплитуда завихренности оказывается существенно подавлена в соответствии с выражением (4.22), однако ее пространственное распределение демонстрирует нетривиальную структуру, см. Рис. 4.3(а). Чтобы описать эту структуру, необходимо принять во внимание пространственное затухание поверхностных волн. Дисперсионное соотношение с учетом вязкости имеет вид: $\omega = -2i\nu k^2 \pm \omega_k$, $\omega_k^2 = gk + (\sigma/\rho)k^3$, см., например, [65]. В нашем эксперименте частота ω действительна и определяется частотой колебаний виброплатформы, поэтому волновой вектор $k = k_0 + i\alpha$ должен быть комплексным. Его мнимая часть означает, что волны затухают вследствие распространения. Тогда для отклонения поверхности от равнове-

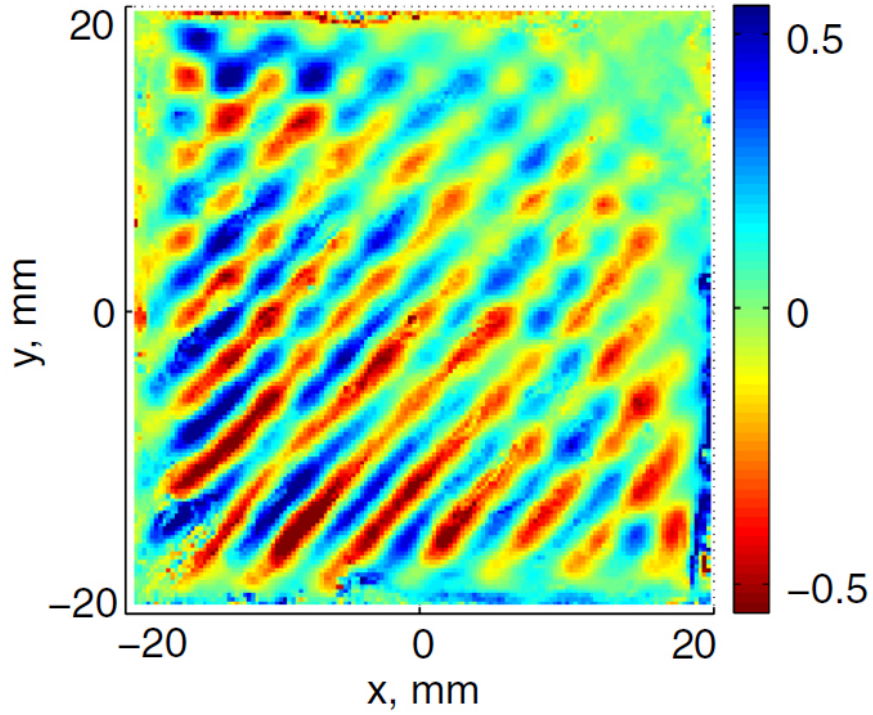


Рис. 4.4. Амплитуда завихренности (в относительных единицах) для ячейки с размерами $40 \times 40 \text{ mm}^2$ и стенками разной высоты, в которой возбуждены поверхностные волны с частотой 54 Гц.

сия имеем:

$$h = \frac{H_1}{2} \left[\cos(kx - \omega t)e^{-\alpha x} + \cos(kx + \omega t)e^{\alpha x} \right] + \frac{H_2}{2} \left[\cos(ky - \omega t)e^{-\alpha y} + \cos(ky + \omega t)e^{\alpha y} \right], \quad (4.23)$$

и, подставляя в выражение (4.20), находим:

$$\varpi_z = \frac{(2 + \sqrt{2})}{2} H_1 H_2 \omega k^2 \left[\sin(kx - ky) \sinh(\alpha x + \alpha y) - \sin(kx + ky) \sinh(\alpha x - \alpha y) \right]. \quad (4.24)$$

Результат (4.24) изображен на Рис. 4.3(б), и он находится в неплохом соответствии с экспериментом, см. Рис. 4.3(а).

Наконец, рассмотрим ситуацию с бегущими волнами. В этом случае отклонение поверхности от равновесия

$$h = H_1 \cos(\omega t - kx) + H_2 \cos(\omega t - ky), \quad (4.25)$$

и подстановка в общее выражение (4.20) приводит к результату

$$\varpi_z(0) = -(2 + \sqrt{2})H_1H_2\omega k^2 \sin(kx - ky). \quad (4.26)$$

В эксперименте такая ситуация была промоделирована с помощью ячейки, которая имела боковые стенки разной высоты. Она была наполнена водой так, чтобы на высоких стенках (правая и верхняя) не было мениска. Результаты экспериментальных наблюдений приведены на Рис. 4.4. Они находятся в качественном согласии с выражением (4.26), хотя и демонстрируют, что наблюдается пространственное затухание волн.

4.5. Стоксов дрейф

В экспериментах поле скорости восстанавливается путем наблюдения за медленным движением частиц. Чтобы восстановить траекторию движения частицы, необходимо решить уравнение движения

$$\frac{d\mathbf{X}}{dt} = \mathbf{v}(\mathbf{X}, t), \quad (4.27)$$

где \mathbf{X} — координата частицы. Разложим поле скорости в ряд Тейлора в окрестности некоторой точки \mathbf{x}_0 :

$$\mathbf{v}(\mathbf{x}) = \mathbf{v}_0 + \hat{G} \cdot \delta\mathbf{x} + \dots, \quad (4.28)$$

здесь $\mathbf{v}_0 = \mathbf{v}(\mathbf{x}_0)$, \hat{G} — тензор градиента скорости, вычисленный в точке \mathbf{x}_0 , и $\delta\mathbf{x} = \mathbf{x} - \mathbf{x}_0$. Теперь вычислим смещение частицы, которая исходна была в точке \mathbf{x}_0 . Для этого будем решать уравнение (4.27) итерационным методом.

С точностью до второго порядка, находим:

$$\delta\mathbf{X}_0 = \int \mathbf{v}_0 dt, \quad \delta\mathbf{X}_1 = \int \hat{G} \cdot \delta\mathbf{X}_0 dt, \quad \dots \quad (4.29)$$

Поэтому лагранжева скорость частицы равна

$$\mathbf{V}_L = \mathbf{v}_0 + \hat{G} \cdot \delta\mathbf{X}_0 + \dots \quad (4.30)$$

Во втором порядке по амплитуде волн она отличается от поля скорости \mathbf{v}_0 . Впервые эту задачу рассмотрел Стокс, и этот эффект сейчас известен как стоксов дрейф [64]. Для нас это означает, что если мы хотим корректно описать экспериментальные данные, то этот дрейф необходимо принимать во внимание.

Наше изложение в предыдущих разделах было посвящено нахождению поля скорости (или завихренности) с точностью до нелинейных слагаемых второго порядка, $\mathbf{v}_0 = \mathbf{v}_{0,l} + \mathbf{v}_{0,nl}$. Первый член здесь дается выражениями (4.6)-(4.7), а второй производит вертикальную завихренность (4.20). Теперь вычислим поправку к скорости, связанную с дрейфом Стокса. С нужной степенью точности при вычислении $\delta \mathbf{X}_1$ мы должны рассматривать только вклад от $\mathbf{v}_{0,l}$. Удерживая только ведущий член по параметру $\gamma \ll 1$ в выражениях (4.6)-(4.7), находим:

$$\mathbf{v}_{0,l} = \begin{pmatrix} (e^{\hat{k}z}/\hat{k})\partial_\alpha \partial_t h - 2\nu \hat{k} e^{\hat{k}z} \partial_\alpha h \\ e^{\hat{k}z} \partial_t h \end{pmatrix} + O(\gamma). \quad (4.31)$$

Мы удержали вязкое слагаемое, поскольку оно даст сравнимый вклад в тензор градиента скорости. Теперь вычислим смещение частицы в главном порядке (4.29):

$$\delta \mathbf{X}_0 = \begin{pmatrix} (e^{\hat{k}z}/\hat{k})\partial_x h \\ (e^{\hat{k}z}/\hat{k})\partial_y h \\ e^{\hat{k}z} h \end{pmatrix}, \quad (4.32)$$

здесь мы опустили постоянную интегрирования, поскольку при усреднении стоксова дрейфа по времени она даст нулевой вклад. Тензор градиента скорости определяется выражением, см. соотношение (4.31),

$$\hat{G} = \begin{pmatrix} (e^{\hat{k}z}/\hat{k})\partial_{xx}^2 \partial_t h & (e^{\hat{k}z}/\hat{k})\partial_{xy}^2 \partial_t h & (e^{\hat{k}z} - 2e^{\hat{k}z})\partial_x \partial_t h \\ (e^{\hat{k}z}/\hat{k})\partial_{xy}^2 \partial_t h & (e^{\hat{k}z}/\hat{k})\partial_{yy}^2 \partial_t h & (e^{\hat{k}z} - 2e^{\hat{k}z})\partial_y \partial_t h \\ e^{\hat{k}z} \partial_x \partial_t h & e^{\hat{k}z} \partial_y \partial_t h & \hat{k} e^{\hat{k}z} \partial_t h \end{pmatrix}. \quad (4.33)$$

Теперь мы готовы написать вклад от дрейфа Стокса в измеряемую скорость частиц на поверхности. С необходимой точностью мы можем положить

$z = 0$, кроме того, примем $\partial_{xy}^2 h = 0$. Последнее предположение основано на анализируемых экспериментальных конфигурациях, см. выражения (4.21) и (4.25), и оно позволяет существенно упростить итоговые формулы. Скорость стокова дрейфа в горизонтальном направлении:

$$v_{S\alpha} = (\hat{k}^{-1} \partial_{\alpha at}^3 h)(\hat{k}^{-1} \partial_\alpha h) - h \partial_\alpha \partial_t h. \quad (4.34)$$

Это выражение необходимо усреднить по времени, и вычислить какой вклад $\varpi_S = \epsilon_{\alpha\beta} \partial_\alpha \langle v_{S\beta} \rangle_T$ оно внесет в измеренное поле завихренности. Оказывается, что этот вклад имеет тот же вид, что и соотношения (4.22) и (4.26), только коэффициент $2 + \sqrt{2}$ нужно заменить на -1 . Т.е. стоков дрейфа приводит к замедлению движения частиц.

У читателя может возникнуть законный вопрос, не объясняются ли все приведенные экспериментальные данные исключительно механизмом Стокса? Ответ состоит в том, что наблюдаемое направление движения частиц на Рис. 4.4 противоположно тому, что предсказывает этот дрейф. Тем не менее, отметим, что в вопросах количественного сопоставления теории и эксперимента учет дрейфа Стокса необходим.

4.6. Выводы

В данной главе мы описали новый механизм генерации вихревого движения на поверхности жидкости, который связан с нелинейным взаимодействием поверхностных волн. Мы разработали количественное описание данного явления и сделали ряд предсказаний, часть из которых была подтверждена экспериментально [63]. Хотя лабораторные эксперименты обычно проводятся с капиллярными волнами, наша аналитическая схема и полученные результаты в равной мере применимы и к гравитационным волнам. Поэтому наша теория может быть использована, например, для анализа соленоидальных течений на поверхности океана.

С увеличением амплитуды поверхностных волн безразмерный параметр κh возрастает, и когда он превышает единицу — наша теория перестает работать. В этом режиме становится важным взаимодействие вихревых течений друг с другом [66], что приводит, в частности, к формированию обратного энергетического каскада [61]. Полученные нами результаты позволяют лучше понять это явление и открывают дорогу к его количественному описанию.

В заключение отметим, что описанный механизм генерации завихренности носит фундаментальный характер. Оказывается, данное явление имеет место для самых разных систем, допускающих распространение поверхностных волн. Следующая глава диссертации будет посвящена обобщению представленной теории на случай свободно подвешенных тонких пленок, в которых возбуждены поперечные колебания (изгибная мода).

Глава 5

Завихренность на поверхности СМЕКТИЧЕСКИХ ПЛЕНОК

Взаимосвязь между вихревым и волновым движением является одной из самых давних и захватывающих проблем гидродинамики. В данной главе мы анализируем эту взаимосвязь на примере свободно подвешенной тонкой жидкой пленки. На масштабах значительно больших толщины пленки такая система может рассматриваться как двумерный объект, помещенный в трехмерное пространство. По сравнению с традиционными двумерными системами, такие пленки обладают дополнительной степенью свободы, связанной с их изгибной деформацией. Нелинейное взаимодействие поперечных колебаний приводит к образованию соленоидального течения на поверхности пленки, которое и исследуется в данной главе.

Одним из широко известных типов жидких пленок, которые могут быть свободно подвешены, являются мыльные пленки. Долгое время они рассматривались в качестве системы, позволяющей экспериментально исследовать двумерную гидродинамику [67]. Однако детальный анализ показал, что движение жидкости в мыльной пленке устроено сложнее и что его связь с движением, описываемым двумерными гидродинамическими уравнениями, не очевидна [68]. Явление генерации вихревого движения в колеблющихся мыльных пленках также имеет давнюю историю. Впервые оно наблюдалось Тейлором более века назад [69]. Количественные эксперименты были выполнены в конце 20 века, см., например, [70, 71], а качественное теоретическое объяснение приведено в работе [72]. Насколько нам известно, количественная теория явления отсутствует до сих пор.

В нашей работе мы рассматриваем свободно подвешенные тонкие смек-

тические пленки, см., например, [73, 74]. Сметические жидкие кристаллы — слоистые материалы, которые могут образовывать богатое разнообразие структур. Мы будем рассматривать простейшую структуру, так называемый сметик- A , который подобен твердому телу в направлении перпендикулярном слоям и похож на жидкость вдоль слоев. Поперечные колебания в таких пленках хорошо изучены [75, 76], а вот о наблюдении завихренности никаких сведений найти не удалось. Отметим, что динамика сметических пленок устроена намного проще динамики мыльных пленок, поскольку в первом случае нет аналога волн Марангони [71]. Это упрощение позволяет построить количественную теорию генерации вихревого движения на поверхности сметической пленки вследствие возбуждения изгибной моды.

Мы рассматриваем и сравниваем друг с другом два случая: когда пленка находится в вакууме и когда она окружена воздухом. Оказывается, что воздух играет важную роль в динамике пленки, в частности, он влияет на закон дисперсии изгибной моды. Вихревое движение появляется в результате нелинейного взаимодействия поперечных колебаний, которое учитывается в рамках теории возмущений. Содержание главы основано на работе автора [77] и может рассматриваться как обобщение теории для волн на поверхности жидкости, представленной в предыдущей главе.

5.1. Движение пленки в вакууме

Опишем динамические свойства свободно подвешенной тонкой пленки, изготовленной из сметика- A . Такая пленка представляет собой изотропную двумерную систему, поскольку мы интересуемся ее динамикой на масштабах намного превосходящих толщину пленки. Мы предполагаем, что в равновесии пленка параллельна плоскости $X - Y$ и что ее отклонение от равновесия характеризуется смещением $h(t, x, y)$ в Z -направлении, т.е. форма пленки определяется уравнением $z = h(t, x, y)$. Единичный вектор, перпен-

дикулярный поверхности пленки, имеет компоненты $\mathbf{l} = (-\partial_x h, -\partial_y h, 1)/\sqrt{g}$, где $g = 1 + (\nabla h)^2$.

Состояние пленки описывается в терминах массовой плотности $\rho(t, x, y)$ и плотности импульса $\mathbf{j}(t, x, y)$. Обе эти величины являются проекциями соответствующих поверхностных плотностей на плоскость $X - Y$. Динамические уравнения для смещения пленки h и ее массовой плотности ρ выглядят следующим образом [76]:

$$\rho \partial_t h = j_z - j_\alpha \partial_\alpha h, \quad \partial_t \rho = -\partial_\alpha j_\alpha. \quad (5.1)$$

Здесь и ниже греческие индексы пробегает значения x и y . Первое уравнение в (5.1) представляет собой кинематическое граничное условие, аналогичное выражению (4.2), которое свидетельствует о том, что пленка движется со скоростью $\mathbf{v} = \mathbf{j}/\rho$, второе уравнение — закон сохранения массы.

Уравнения (5.1) должны быть дополнены уравнением, описывающим динамику плотности импульса \mathbf{j} пленки. Сперва рассмотрим случай, когда пленка находится в вакууме. В этом случае импульс сохраняется, соответствующее уравнение гласит [76]:

$$\partial_t j_i = -\partial_\alpha (v_\alpha j_i - \sqrt{g} \sigma \delta_{i\alpha}^\perp - \sqrt{g} \eta_{i\alpha\beta m} \partial_\beta v_m), \quad (5.2)$$

здесь и ниже латинские индексы принимают значения x, y, z , $\delta_{ik}^\perp \equiv \delta_{ik} - l_i l_k$ — проектор на поверхность пленки, σ — коэффициент поверхностного натяжения. Как и выше, все величины предполагаются зависящими от t, x, y . Выражение для коэффициента поверхностного натяжения

$$\sigma = \sigma_0 - B \left[\frac{\rho}{\rho_0 \sqrt{g}} - 1 \right], \quad (5.3)$$

где B — модуль сжимаемости пленки, ρ_0 — массовая плотность в равновесии и σ_0 — равновесное значение коэффициента поверхностного натяжения. Тензор вязкости может быть записан в виде

$$\eta_{iklm} = (\zeta - \eta) \delta_{ik}^\perp \delta_{lm}^\perp + \eta (\delta_{il}^\perp \delta_{km}^\perp + \delta_{im}^\perp \delta_{kl}^\perp). \quad (5.4)$$

Здесь $\eta > 0$ и $\zeta > 0$ — двумерные аналоги трехмерных коэффициентов первой (сдвиговой) и второй (объемной) вязкостей. Уравнения (5.1)-(5.4) образуют замкнутую систему нелинейных уравнений, которая описывает динамику пленки.

В дальнейшем мы предполагаем, что пленка слабо отклоняется от своего положения равновесия, $|\nabla h| \ll 1$. Все остальные величины, характеризующие пленку, также слабо отклоняются от своих равновесных значений. В этом случае для анализа движения пленки можно использовать теорию возмущений. Представим плотность пленки в виде $\rho = \rho_0 + \rho^{(1)} + \dots$, где разложение в ряд производится по малому параметру $|\nabla h| \ll 1$. В линейном приближении мы имеем дело с двумя модами: продольным и изгибным звуком. С помощью линеаризованных соотношений (5.1)-(5.4) находим:

$$\rho_0 \partial_t^2 \rho^{(1)} = B \nabla^2 \rho^{(1)} + (\zeta + \eta) \partial_t \nabla^2 \rho^{(1)}, \quad (5.5)$$

$$\rho_0 \partial_t^2 h = \sigma_0 \nabla^2 h. \quad (5.6)$$

Первое уравнение описывает продольный звук, который связан с флуктуациями двумерной массовой плотности ρ и не затрагивает форму пленки. Эта мода характеризуется законом дисперсии $\omega = \pm k \sqrt{B/\rho_0} - ik^2(\zeta + \eta)/2\rho_0$. Второе уравнение описывает поперечные колебания, каждый элемент пленки совершает движение вдоль оси Z . Дисперсия этой моды также линейна, $\omega = \pm k c_b$, где $c_b = \sqrt{\sigma_0/\rho_0}$ — скорость изгибного звука. Эти моды ортогональны друг другу, и далее мы считаем, что внешняя сила, возбуждающая поперечные колебания, не возбуждает напрямую продольный звук, т.е. мы считаем $\rho^{(1)} = 0$.

Как следует из соотношения (5.6), изгибная мода имеет аномально малое затухание для пленок, свободно подвешенных в вакууме. Внутренняя вязкость пленки (5.4) не влияет на затухание поперечных колебаний — это свойство хорошо известно и связано с вращательной симметрией системы [76]. Поэтому в нашем случае затухание моды определяется эффектами, которые

остались за рамками нашей модели. Во-первых, это более высокие члены разложения по степеням ∇ , которые пропорциональны ∇^4 . Во-вторых, это вклад, связанный с нелинейным взаимодействием тепловых флуктуаций [76]. Однако для пленок, состоящих из нескольких сотен слоев, которые мы все время подразумеваем, вклад от тепловых флуктуаций относительно мал. Наконец, на затухание моды также могут оказывать влияние процессы, происходящие на краях пленки, вблизи мениска. Для описания всех этих факторов мы добавим в уравнение (5.6) феноменологическое слагаемое, характеризующее затухание поперечных колебаний

$$\partial_t^2 h + 2\hat{\alpha}\partial_t h - c_b^2 \nabla^2 h = 0. \quad (5.7)$$

Детальный вид зависимости оператора $\hat{\alpha}$ от оператора ∇ нас в дальнейшем не интересует.

Наша цель — описать вихревое (соленоидальное) движение в плоскости пленки, которое генерируется поперечными колебаниями пленки вследствие нелинейных эффектов. Такое соленоидальное движение характеризуется вертикальной компонентой завихренности $\varpi_z = \partial_x v_y - \partial_y v_x$. В линейном приближении $\varpi_z = 0$, поэтому для нахождения этой величины необходимо выйти за рамки этого приближения. Мы вычислим главный нелинейный вклад в величину ϖ_z , который будет второго порядка по параметру $|\nabla h| \ll 1$. Стартовой точкой вычислений служит уравнение (5.2). Необходимо рассмотреть его продольную γ -компоненту и подействовать на нее оператором $\epsilon_{\beta\gamma}\partial_\beta$, где $\epsilon_{\beta\gamma}$ — единичный двумерный антисимметричный тензор. В итоге получим уравнение на ϖ_z :

$$\rho_0 \partial_t \varpi_z - \eta \nabla^2 \varpi_z = \sigma_0 \epsilon_{\beta\gamma} \partial_\beta h \partial_\gamma \nabla^2 h + \eta \epsilon_{\beta\gamma} \partial_\beta \partial_t (\partial_\gamma h \nabla^2 h). \quad (5.8)$$

Проанализируем стационарный вклад в завихренность ϖ_z . Усредняя по времени уравнение (5.8), мы находим:

$$\nabla^2 \varpi_z = (\sigma_0/\eta) \epsilon_{\beta\gamma} \langle \partial_\gamma h \partial_\beta \nabla^2 h \rangle, \quad (5.9)$$

где угловые скобки обозначают усреднение по времени. Это выражение можно преобразовать с помощью уравнения (5.7) для поперечных колебаний пленки. Окончательно находим

$$\varpi_z = 2(\rho_0/\eta)\epsilon_{\beta\gamma}\nabla^{-2}\langle\partial_\gamma h\partial_\beta\partial_t\hat{a}h\rangle. \quad (5.10)$$

Подчеркнем, что выражение (5.10) пропорционально затуханию \hat{a} изгибной моды. Обсуждение этого ответа для вертикальной завихренности происходит в разделе 5.3.

5.2. Влияние окружающего воздуха

Теперь рассмотрим случай, когда смектическая пленка свободно подвешена в воздухе, и проанализируем его влияние на динамику пленки. Как и раньше, мы предполагаем, что некоторая внешняя сила возбуждает поперечные колебания. Например, это может быть акустическая накачка, см. Рис. 5.1, подробности экспериментальной методики описаны в работе [78]. Хорошо известно, что воздух, окружающий мыльные пленки, значительно влияет на их динамику. Следуя работам [71, 72], мы рассматриваем влияние воздуха на движение смектической пленки, и, в частности, на механизм генерации завихренности.

Мы предполагаем, что скорость звука в воздухе c_a намного превышает скорость изгибного звука c_b в пленке. Это разумно, поскольку величина $c_b^2 = \sigma_0/\rho_0$ обратно пропорциональна числу смектических слоев в пленке, и мы рассматриваем пленки, состоящие из сотен слоев. При выполнении условия $c_a \gg c_b$ движение воздуха можно описывать с помощью трехмерного уравнения Навье-Стокса (4.1), дополненного условием несжимаемости $\text{div } \mathbf{v} = 0$, где \mathbf{v} — скорость воздуха.

Пленка разделяет две области пространства, заполненные воздухом. Воздух влияет на движение жидкости в пленке, поэтому необходимо модифици-

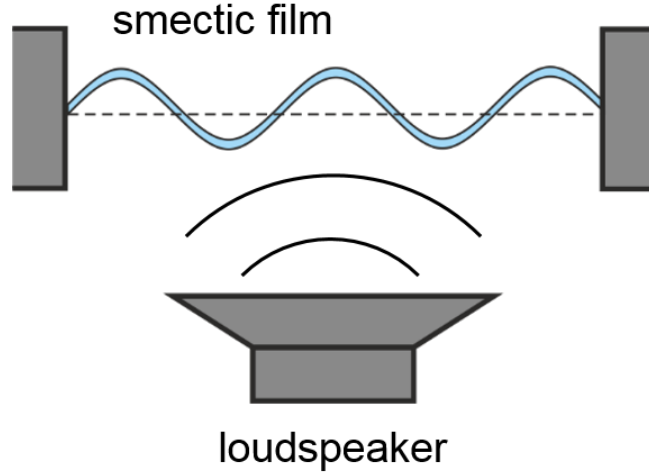


Рис. 5.1. Возбуждение изгибной моды вследствие акустической накачки.

рывать уравнение (5.2). Тензор напряжения в воздухе равен

$$\sigma_{ik} = -p\delta_{ik} + \rho_a\nu_a(\partial_k v_i + \partial_i v_k), \quad (5.11)$$

где ρ_a и ν_a — плотность воздуха и коэффициент его кинематической вязкости, соответственно, а p — давление. Эти напряжения приводят к дополнительному слагаемому в уравнении (5.2). Теперь его можно записать в виде

$$\partial_t j_i = -\partial_\alpha (v_\alpha j_i - \sqrt{g}\sigma_{i\alpha}^\perp - \sqrt{g}\eta_{i\alpha\beta m}\partial_\beta v_m) + \sqrt{g}(\sigma_{ik}^{II} - \sigma_{ik}^I)l_k, \quad (5.12)$$

где единичный вектор нормали \mathbf{l} направлен из области I ($z < h$) в область II ($z > h$). Отметим, что скорость воздуха \mathbf{v} непрерывна во всем пространстве и совпадает со скоростью пленки на ее поверхности. Уравнение (5.12) следует понимать, как граничное условие для трехмерного движения воздуха.

Это движение легко может быть проанализировано в линейном приближении. С помощью уравнения Навье-Стокса (4.1) и граничного условия (5.1) мы получаем (см. приложение В):

$$v_\alpha = \mp\nu_a \frac{\hat{k}(\hat{k} + \hat{k})}{\hat{k}} \left(e^{\mp\hat{k}z} - e^{\mp\hat{k}z} \right) \partial_\alpha h, \quad (5.13)$$

$$v_z = \nu_a(\hat{k} + \hat{k}) \left(\hat{k}e^{\mp\hat{k}z} - \hat{k}e^{\mp\hat{k}z} \right) h, \quad (5.14)$$

где верхние/нижние знаки соответствуют областям II/I и где мы ввели нелокальные операторы $\hat{k} = (-\partial_x^2 - \partial_y^2)^{1/2}$, $\hat{k} = (\partial_t/\nu_a + \hat{k}^2)^{1/2}$. Первые слагаемые

в уравнениях (5.13, 5.14) соответствуют потенциальному вкладу в скорость, а вторые — описывают вихревой вклад. В дальнейшем мы считаем, что вязкий член мал по сравнению с частотой ω внешней силы, т.е.

$$\gamma \equiv \sqrt{\nu_a k^2 / \omega} \ll 1, \quad (5.15)$$

где k — волновой вектор изгибной моды, возбуждаемой в пленке. Тогда вихревой вклад в скорость сосредоточен в тонком слое вблизи поверхности пленки глубиной порядка $1/\kappa \sim \gamma/|k|$. Потенциальный вклад проникает на значительно большую глубину порядка $|k|^{-1}$.

Здесь и далее мы также предполагаем, что затухание изгибной моды главным образом обусловлено вязкостью воздуха. Это справедливо, если $|k|^{-1}$ намного превосходит толщину пленки. Тогда закон дисперсии изгибной моды (см. приложение В):

$$\omega^2 = \omega_0^2 \left(1 - \frac{i\gamma}{\sqrt{2}} \Theta \right), \quad \omega_0^2 = \frac{\sigma_0 |k|^2}{\rho_0 + 2\rho_a / |k|}, \quad (5.16)$$

где $\Theta = (1 + \rho_0 |k| / 2\rho_a)^{-1}$. Слагаемое $2\rho_a / |k|$ соответствует присоединенной массе воздуха, вовлекаемой в движение при поперечных колебаниях пленки. Фактор $1/|k|$ в $2\rho_a / |k|$ отвечает глубине проникновения потенциальной части скорости воздуха. Выражение (5.16) получено в рамках условия (5.15).

Теперь перейдем к описанию завихренности $\boldsymbol{\varpi} = \text{curl } \mathbf{v}$. Объемное уравнение на эту величину может быть получено с помощью уравнения Навье-Стокса (4.1), см., например, [65]:

$$\partial_t \boldsymbol{\varpi} = (\boldsymbol{\varpi} \nabla) \mathbf{v} - (\mathbf{v} \nabla) \boldsymbol{\varpi} + \nu_a \nabla^2 \boldsymbol{\varpi}. \quad (5.17)$$

В линейном приближении вертикальная компонента завихренности ϖ_z равна нулю, она генерируется вследствие нелинейных эффектов. Как и раньше, нас интересует только стационарный вклад в ϖ_z . Используя уравнение (5.17) и производя усреднение по времени, мы находим (см. также уравнение (4.12)):

$$(\partial_z^2 - \hat{k}^2) \varpi_z = -f, \quad f = -\nu_a^{-1} \langle \boldsymbol{\varpi}_\alpha \partial_\alpha v_z \rangle. \quad (5.18)$$

Слагаемое в правой части является источником для завихренности ϖ_z . Уравнение (5.18) должно быть дополнено граничным условием (5.12). Вязкость пленки η может быть оценена как $\eta \sim \eta_s d$, где d — толщина пленки, а η_s — коэффициент динамической вязкости для смектика. Поэтому слагаемыми, содержащими вязкость пленки, можно пренебречь для достаточно тонких пленок, $\rho_a \nu_a / \eta \gg |k|$. Тогда из уравнения (5.12) и соотношений (5.13)-(5.14), получаем:

$$\langle (\partial_z \varpi_z)^{II} - (\partial_z \varpi_z)^I \rangle = \langle (\partial_\alpha h \partial_z \varpi_\alpha)^{II} - (\partial_\alpha h \partial_z \varpi_\alpha)^I \rangle. \quad (5.19)$$

Условие (5.19) должно выполняться при $z = 0$.

Решение уравнения (5.18) дается выражением $\varpi_z = e^{\hat{k}z} A(z) + e^{-\hat{k}z} B(z)$, где $\partial_z A = -\hat{k}^{-1} e^{-\hat{k}z} (f/2)$, $\partial_z B = \hat{k}^{-1} e^{\hat{k}z} (f/2)$. Как и в предыдущей главе, мы должны удерживать ведущие поправки по параметру $\gamma \ll 1$ к основным вкладам. С необходимой точностью

$$\varpi_\alpha = \epsilon_{\alpha\beta} \frac{\hat{\kappa} + \hat{k}}{\hat{k}} e^{\mp \hat{\kappa}z} \partial_\beta \partial_t h, \quad (5.20)$$

$$f = \epsilon_{\alpha\beta} \left\langle \left[\frac{\hat{\kappa} + \hat{k}}{\hat{k}} e^{\mp \hat{\kappa}z} \partial_\beta \partial_t h \right] \left[(\hat{\kappa} + \hat{k})(\hat{\kappa} e^{\mp \hat{\kappa}z} - \hat{k} e^{\mp \hat{k}z}) \partial_\alpha h \right] \right\rangle, \quad (5.21)$$

и тогда

$$\begin{aligned} \varpi_z = e^{\mp \hat{k}z} C + \left\langle \frac{\epsilon_{\alpha\beta} \hat{\kappa}_1 \hat{\kappa}_2 \hat{k}_2}{(\hat{\kappa}_1 + \hat{\kappa}_2)^2 \hat{k}_1} e^{\mp (\hat{\kappa}_1 + \hat{\kappa}_2)z} (\partial_\beta \partial_t h) (\partial_\alpha h) - \right. \\ \left. \frac{\epsilon_{\alpha\beta} \hat{\kappa}_2^2}{\hat{\kappa}_1 \hat{k}_1} \left(1 + \frac{\hat{k}_2}{\hat{\kappa}_2} + \frac{\hat{k}_1}{\hat{\kappa}_1} - \frac{2\hat{k}_2}{\hat{\kappa}_1} \right) e^{\mp (\hat{\kappa}_1 + \hat{\kappa}_2)z} (\partial_\beta \partial_t h) (\partial_\alpha h) \right\rangle. \end{aligned} \quad (5.22)$$

Здесь мы приняли во внимание непрерывность величины ϖ_z на поверхности пленки $z = 0$. Операторы с индексом i действуют только на i -е скобки, содержащие отклонение пленки h . Константа C определяется из граничного условия (5.19). С той же точностью окончательно находим:

$$\begin{aligned} \varpi_z = \epsilon_{\alpha\beta} \left\langle \left(e^{\mp \hat{\kappa}z} \frac{\hat{\kappa}}{\hat{k}} \partial_\beta \partial_t h \right) \left(e^{\mp \hat{k}z} \partial_\alpha h \right) \right\rangle + \\ \frac{\epsilon_{\alpha\beta}}{2} \hat{k}^{-1} e^{\mp \hat{k}z} \left\langle (\partial_\beta \partial_t \hat{k}^{-1} h) (\hat{\kappa} \hat{k} \partial_\alpha h) - \frac{\hat{\kappa}}{\hat{k}} \partial_\beta h \partial_\alpha \partial_t \hat{k} h \right\rangle. \end{aligned} \quad (5.23)$$

Оба слагаемых дают сравнимые вклады в значение вертикальной завихренности на поверхности пленки.

В дальнейшем мы рассматриваем случай монохроматической накачки, когда абсолютное значение волнового вектора k зафиксировано. Тогда выражение (5.23) можно упростить, и для завихренности на поверхности пленки мы получаем:

$$\varpi_z(0) = \epsilon_{\alpha\beta} \left(\frac{\hat{k}}{\hat{k}} \partial_\beta \partial_t h \right) \partial_\alpha h + \epsilon_{\alpha\beta} \hat{k}^{-1} (\hat{k} \partial_\alpha h \partial_\beta \partial_t h). \quad (5.24)$$

Этот ответ для завихренности анализируется в следующем разделе.

5.3. Обсуждение результатов

Мы рассмотрели случай, когда поперечные колебания свободно подвешенной смектической пленки возбуждаются вследствие внешней накачки. Мы считали, что накачка производится в узком спектральном диапазоне. Тогда некоторое стационарное вихревое (соленоидальное) движение возбуждается на поверхности пленки за счет нелинейных эффектов. Мы разработали количественную теорию, позволяющую получить точные выражения (5.10) и (5.23) для вертикальной завихренности в случае пленки, окруженной вакуумом и воздухом соответственно. Отметим, что выражение (5.23) справедливо, когда воздух, окружающий пленку, значительно влияет на ее динамику. В частности, изменяется закон дисперсии для изгибной моды по сравнению со звуковым $\omega = \pm c_b k$, см. выражение (5.16).

Теперь мы проанализируем выражения (5.10) и (5.23) и посчитаем завихренность ϖ_z на поверхности пленки в некотором конкретном случае. Мы будем считать, что пленка ограничена прямоугольной рамкой с размерами L_x и L_y и что внешняя накачка является монохроматической. Тогда собственными модами системы являются стоячие волны, которые имеют нулевое смещение на краях рамки. Рассмотрим суперпозицию двух стоячих волн, воз-

бужденных внешней накачкой. Отклонение пленки от положения равновесия описывается выражением

$$h = H_1 \sin(k_x x) \sin(k_y y) \cos(\omega t) + H_2 \sin(q_x x) \sin(q_y y) \cos(\omega t + \phi), \quad (5.25)$$

где $k_x^2 + k_y^2 = q_x^2 + q_y^2 = k^2$, и абсолютное значение волнового вектора k определяется частотой внешней накачки ω посредством закона дисперсии $\omega = c_b k$ или (5.16).

Принимая во внимание затухание моды и используя выражение (5.10), мы находим стационарную завихренность на поверхности пленки, окруженной вакуумом (см. также приложение Г)

$$\begin{aligned} \varpi_z = \frac{2\alpha\rho_0}{\eta} \omega H_1 H_2 \hat{k}^{-2} & \left[k_y q_x \sin(k_x x) \sin(q_y y) \cos(q_x x) \cos(k_y y) - \right. \\ & \left. - k_x q_y \cos(k_x x) \cos(q_y y) \sin(q_x x) \sin(k_y y) \right] \sin \phi. \end{aligned} \quad (5.26)$$

Выше мы обсуждали различные механизмы, дающие вклад в коэффициент затухания α . Вследствие неопределенности в относительной эффективности этих механизмов, мы не знаем явной зависимости постоянной α от волнового вектора k . Полученная завихренность ϖ_z пропорциональна коэффициенту затухания α , поэтому мы приходим к выводу, что экспериментальное изучение этой завихренности позволит установить основную причину затухания поперечных колебаний для пленки в вакууме.

Аналогично, для пленки, окруженной воздухом, подставляя выражение (5.25) в соотношение (5.24), мы находим значение стационарной завихренности на поверхности

$$\begin{aligned} \varpi_z(0) = \frac{\omega H_1 H_2}{\gamma\sqrt{2}} \left(1 + |k| \hat{k}^{-1} \right) & \left[k_y q_x \sin(k_x x) \sin(q_y y) \cos(q_x x) \cos(k_y y) \right. \\ & \left. - k_x q_y \cos(k_x x) \cos(q_y y) \sin(q_x x) \sin(k_y y) \right] \sin \phi. \end{aligned} \quad (5.27)$$

Подчеркнем, что оба ответа (5.26) и (5.27) пропорциональны $\sin \phi$, где ϕ — сдвиг фаз между стоячими волнами.

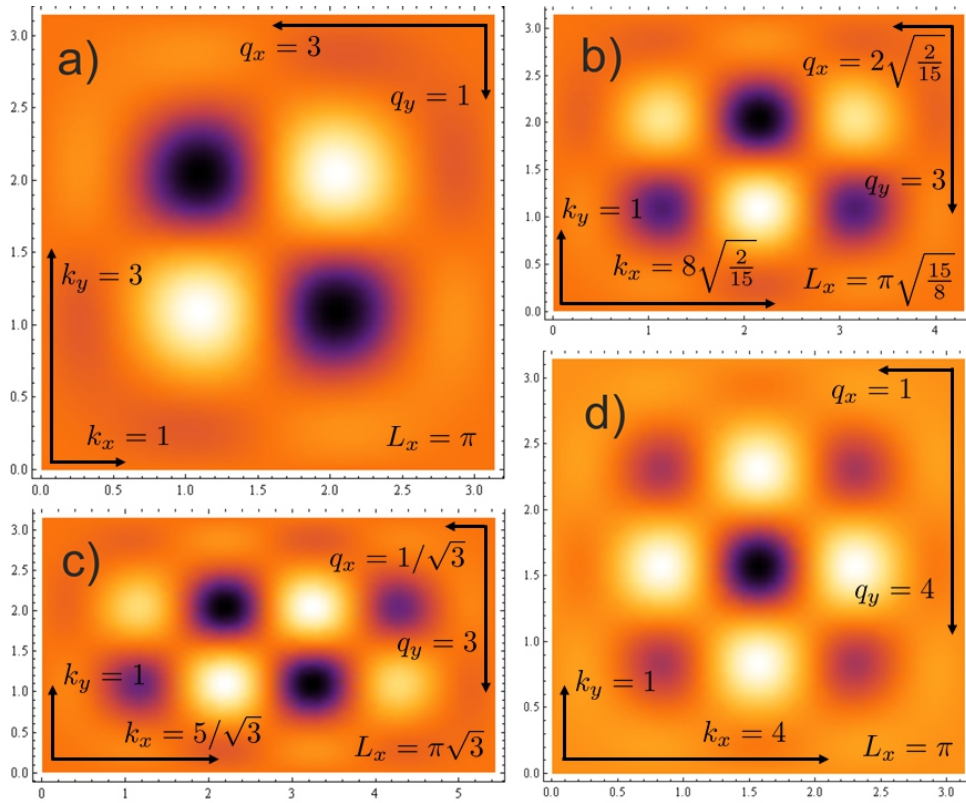


Рис. 5.2. Пространственное распределение стационарной завихренности ϖ_z для случая суперпозиции двух стоячих волн (5.25). Во всех случаях размер рамки $L_y = \pi$. Значения остальных параметров указаны на рисунках.

Далее рассмотрим пленку, ограниченную практически квадратной рамкой. В этом случае $k_x = q_y$, $k_y = q_x$, и мы имеем дело с двумя вырожденными модами. Если рамка — идеальный квадрат, то $\sin \phi = 0$ и стационарная завихренность отсутствует. Однако немного изменяя соотношение сторон рамки, мы можем добиться ненулевого сдвига фаз между модами, и вертикальная завихренность станет отличной от нуля. При переходе через точку компенсации (когда рамка квадратна) завихренность изменяет знак. Некоторые возможные пространственные распределения завихренности изображены на Рис. 5.2. Они были получены численно в соответствии с выражением (5.27). Завихренность, найденная по формуле (5.26), имеет похожую пространственную структуру.

В заключение сформулируем условие применимости нашей теории. Она справедлива, если нелинейные члены более высоких порядков малы по срав-

нению с рассмотренными. В случае пленки, окруженной воздухом, мы должны оценивать нелинейные члены в уравнении (5.17), принимая во внимание поправки второго порядка к скорости $v^{(2)}$, связанные с только что найденной завихренностью. Из уравнения (5.23) следует, что $v^{(2)} \sim \omega kh^2/\gamma$. Поэтому нелинейные члены с $v^{(2)}$ малы, если $(\mathbf{v}^{(2)}\nabla)\varpi_z \ll \nu\Delta\varpi_z$. Это приводит нас к условию $kh \ll \gamma^{3/2}$, которое сильнее, чем условие малости амплитуды поперечных колебаний $kh \ll 1$.

5.4. Выводы

В данной главе мы исследовали нелинейный механизм генерации завихренности на поверхности тонких свободно подвешенных смектических пленок. Мы рассмотрели два случая, когда пленка была окружена вакуумом и воздухом. В первом случае генерируемая завихренность оказалась чувствительной к затуханию поперечных колебаний пленки. Мы получили явное выражение (5.10) для стационарной завихренности и предположили, что экспериментальное изучение этой завихренности может пролить свет на характер аномально малого затухания изгибной моды. Во втором случае мы обнаружили, что окружающий воздух существенно изменяет динамику изгибной моды и влияет на механизм генерации завихренности. Мы получили модифицированный закон дисперсии для поперечных колебаний (5.16) и явное выражение (5.23) для вертикальной завихренности. Мы проанализировали полученные результаты и сформулировали ряд предсказаний, которые можно проверить экспериментально.

Хотя наши конечные ответы (5.10) и (5.23) были получены для случая монохроматической накачки, разработанная нами теоретическая схема может также использоваться для произвольно зависящей от времени возбуждающей силы. В частности, можно думать о накачке, происходящей на двух близких частотах. В этом случае ожидается появление некоторых эффектов, связан-

ных с биениями в генерируемой завихренности. Эти эффекты могут быть полезны для экспериментальных наблюдений, а также для подтверждения наших теоретических предсказаний.

Отметим, что наша теория применима в случае $|\nabla h| \ll \gamma^{3/2}$, где $|\nabla h|$ — угол наклона пленки, а γ — малый параметр теории (5.15). Если угол наклона пленки $|\nabla h|$ становится больше, чем $\gamma^{3/2}$, то условие применимости нашей теории (малость нелинейных слагаемых более высокого порядка) нарушается. В этом случае можно ожидать сильного нелинейного взаимодействия вихревых (соленоидальных) движений, возбуждаемых в пленке. Это может привести к формированию аналога обратного каскада и к появлению крупномасштабных когерентных вихрей — конденсата, см. работы [79, 80, 81]. Подчеркнем, что появления этих эффектов можно ожидать даже при малых углах наклона пленки $|\nabla h|$.

Мы разработали теорию для случая изотропных пленок, сделанных из смектика-*A*. Тем не менее, практически все полученные результаты переносятся на случай ориентационно упорядоченных пленок из смектика-*C* или гексатика, вследствие их слабой анизотропии. Отметим, что в этом случае вихревое движение в плоскости пленки будет генерировать некоторые нетривиальные ориентационные структуры, которые могут помочь в исследовании этого движения.

Заключение

Первая часть диссертации была посвящена исследованию некоторых нелинейных явлений, происходящих в плазмонных наносистемах. Особенное внимание было уделено изучению принципов функционирования плазмонного нанолазера или спазера. Отличительной чертой проводимых исследований была попытка взглянуть на мир плазмоники с точки зрения высоких омических потерь и низкой добротности плазмонных резонаторов. Такая точка зрения оказалась плодотворной и позволила объяснить некоторые парадоксальные экспериментальные данные, а также сделать ряд новых теоретических предсказаний.

В первой главе анализировалась частота генерации плазмонного нанолазера. Оказалось, что низкая добротность плазмонного резонатора приводит к заметной деформации структуры лазирующей моды из-за неоднородного истощения активных молекул при увеличении интенсивности накачки. В свою очередь, эта деформация моды вызывает изменение или сдвиг частоты генерации спазера. В диссертации была разработана аналитическая схема, которая позволяет количественно рассчитывать величину описанного сдвига частоты. Полученные результаты, например, позволяют объяснить, почему в эксперименте [8] положение частоты генерации нанолазера не совпадает с теоретическими предсказаниями работы [14]. Кроме того, эффект сдвига частоты генерации недавно наблюдался в ходе численных симуляций [82], проведенных независимой группой исследователей.

Вторая глава была посвящена анализу тепловых и прочностных явлений в плазмонике. Исследовалась температура металлической наночастицы в зависимости от количества населяющих ее квантов плазмонных колебаний. Было выявлено, что в стационарном режиме существует критическое число плазмонов, при достижении которого температура наночастицы неограниченно возрастает (если пренебречь тепловым излучением наногранулы), что при-

водит к плавлению наногранулы. Это явление связано с установлением положительной обратной связи: нагрев обусловлен омическими потерями, которые возрастают с увеличением температуры. Было получено аналитическое выражение для критического числа плазмонов (2.5). Для экспериментальных параметров из работы [8] это число оказывается меньше единицы, что ставит под сомнение традиционный подход к описанию принципов работы спазера, поскольку вынужденное излучение в такой ситуации отсутствует. В импульсном режиме возбуждения допустимое число плазмонов может быть существенно больше единицы. В этом режиме необходимо принимать во внимание пондеромоторные силы, которые могут механически деформировать наногранулу. Согласно нашим оценкам, это происходит при сотнях или даже тысячах квантах плазмонных колебаний.

Содержание третьей главы логически вытекает из результатов предыдущей — она посвящена построению квантовой теории спазера в предположении низкодобротного резонатора. Оказывается, сужение спектральной линии в пороге генерации может происходить даже в отсутствие вынужденного излучения. В этом случае информация о когерентности системы хранится в состоянии активных молекул, которые релаксируют значительно медленнее, чем происходит затухание плазмонов. Попутно с установлением нового механизма сужения спектральной линии была также проанализирована статистика излучения выше и ниже порога генерации, см. соотношения (3.20), (3.21), (3.36) и (3.38). Отметим, что сужение спектральной линии вследствие сохранения когерентности в активной среде наблюдалось экспериментально [60] на примере лазера с традиционным резонатором. Наши результаты также находятся в согласии с теоретической работой [53].

Технология изготовления нанолазеров непрерывно развивается. В настоящее время основные усилия направлены на увеличение добротности плазмонного резонатора и на реализацию электрической накачки для активной среды. Последнее особенно важно, поскольку является необходимым шагом

на пути внедрения этих устройств в различные практические приложения. Мы надеемся, что результаты наших исследований позволили глубже разобраться в механизмах работы спазеров и внесли свой вклад в развитие этой области науки.

Вторая часть диссертации была посвящена изучению нелинейного явления генерации завихренности поверхностными волнами, которое совсем недавно было открыто экспериментально [10, 61]. Удивительным образом статистические характеристики такого вихревого движения на поверхности жидкости в сильно нелинейном режиме в точности совпадают со статистикой развитой двумерной турбулентности. Эта загадка остается неразрешенной до сих пор; мы же в своем анализе рассматриваем случай слабой нелинейности — первый и необходимый шаг на пути решения этой головоломки.

Четвертая глава диссертации была посвящена изучению генерации вертикальной завихренности в жидкости вследствие распространения поверхностных волн. Было получено явное выражение для завихренности (4.17) в терминах отклонения поверхности жидкости от равновесия. Несмотря на то, что конечный ответ для завихренности на поверхности не зависит от вязкости, см. (4.22) и (4.26), само явление невозможно в идеальной жидкости, поскольку это противоречит теореме Кельвина. Таким образом, мы имеем дело с новым примером вязкой аномалии в гидродинамике. Результаты нашей количественной теории качественно подтверждаются проведенными экспериментальными наблюдениями [63].

В пятой главе производилось обобщение теории на случай свободно подвешенных тонких смектических пленок. Были рассмотрены пленки, подвешенные в вакууме и воздухе. В обоих случаях поперечные колебания пленки могут приводить к образованию вихревого (соленоидального) течения на ее поверхности. Получены явные выражения для завихренности в терминах отклонения пленки от равновесия, см. (5.10) и (5.24). В случае вакуума генерируемая завихренность пропорциональна аномально малому затуханию изгиб-

ной моды [76]. Показано, что воздух существенно влияет на динамику пленки и на механизм генерации завихренности. В частности, он изменяет закон дисперсии поперечных колебаний (5.16), а генерируемая завихренность (5.27) оказывается обратно пропорциональна малому параметру $\sqrt{\nu_a k^2 / \omega} \ll 1$, который определяет затухание изгибной моды.

В дальнейшем, основываясь на проведенных исследованиях, мы планируем построить теорию генерации завихренности в сильно нелинейном режиме. Мелкие вихри, генерируемые в слабо нелинейном режиме, см. Рис. 4.2, являются топливом или накачкой для развития обратного энергетического каскада [61].

Автор выражает глубокую благодарность своему научному руководителю В.В. Лебедеву за постоянное внимание к работе, поддержку и ценные советы. Автор благодарен С.С. Вергелесу за совместную работу и многочисленные беседы, а также В.П. Драчеву, А.К. Сарычеву, И.Р. Габитову, И.В. Колоколову, С.В. Яблонскому и Г.Е. Фальковичу за плодотворные обсуждения и ценные замечания. Работа над диссертацией происходила при финансовой поддержке стипендиальной программы фонда "Династия", а также грантов РФФИ 12-02-01365-а, РФФИ 14-02-31357 и РНФ 14-22-00259.

Публикации по теме диссертации

- [P1] Parfenyev V., Vergeles S. "Intensity-dependent frequency shift in surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation", *Phys. Rev. A* **86**, 043824 (2012).
- [P2] Fedorov I., Parfenyev V., Vergeles S. et al. "Allowable number of plasmons in nanoparticle", *JETP Letters* **100**, 530–534 (2014).
- [P3] Parfenyev V., Vergeles S. "Quantum theory of a spaser-based nanolaser", *Optics Express* **22**, 13671–13679 (2014).
- [P4] Filatov S., Parfenyev V., Vergeles S. et al. "Nonlinear Generation of Vorticity by Surface Waves", *Phys. Rev. Lett.* **116**, 054501 (2016).
- [P5] Parfenyev V., Vergeles S., Lebedev V. "Nonlinear generation of vorticity in thin smectic films", *Pis'ma v ZhETF* **103**, 220–224 (2016).
- [P6] Parfenyev V., Vergeles S. "Spaser in above-threshold regime: The lasing frequency shift", *Proc. Intern. Conf. Days on Diffraction 2012*.
- [P7] Sarychev A., Fyodorov I., Parfenyev V. et al. "Thermal instability in plasmonics", *SPIE/COS Photonics Asia*, 927806 (2014).
- [P8] Sarychev A., Tartakovsky G., Vergeles S., Parfenyev V. "Thermal phenomena in quantum plasmonics", *SPIE Nanoscience+Engineering*, 95470A (2015).

Список литературы

1. Stockman M. I. Nanoplasmonics: past, present, and glimpse into future // Optics Express. 2011. Vol. 19. P. 22029–22106.
2. Surface-Enhanced Raman Scattering // Ed. by K. Kneipp, M. Moskovits, H. Kneipp. Vol. 103 of Topics in Applied Physics. Springer, Berlin, 2006.
3. Stockman M. I. Nanoplasmonic sensing and detection // Science. 2015. Vol. 348, no. 6232. P. 287–288.
4. Zhang X. Gold nanoparticles: recent advances in the biomedical applications // Cell biochemistry and biophysics. 2015. Vol. 72, no. 3. P. 771–775.
5. Gramotnev D. K., Bozhevolnyi S. I. Plasmonics beyond the diffraction limit // Nature Photonics. 2010. Vol. 4, no. 2. P. 83–91.
6. Fedyanin D. Y., Krasavin A. V., Arsenin A. V., Zayats A. V. Surface plasmon polariton amplification upon electrical injection in highly integrated plasmonic circuits // Nano Letters. 2012. Vol. 12, no. 5. P. 2459–2463.
7. Bergman D. J., Stockman M. I. Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystems // Physical Review Letters. 2003. Vol. 90, no. 2. P. 027402.
8. Noginov M., Zhu G., Belgrave A. et al. Demonstration of a spaser-based nanolaser // Nature. 2009. Vol. 460, no. 7259. P. 1110–1112.
9. Oulton R. F., Sorger V. J., Zentgraf T. et al. Plasmon lasers at deep subwavelength scale // Nature. 2009. Vol. 461, no. 7264. P. 629–632.
10. Von Kameke A., Huhn F., Fernández-García G. et al. Double cascade turbulence and Richardson dispersion in a horizontal fluid flow induced by Faraday waves // Physical Review Letters. 2011. Vol. 107, no. 7. P. 074502.
11. Francois N., Xia H., Punzmann H. et al. Three-dimensional fluid motion in Faraday waves: Creation of vorticity and generation of two-dimensional turbulence // Physical Review X. 2014. Vol. 4, no. 2. P. 021021.
12. Falkovich G. Could waves mix the ocean? // Journal of Fluid Mechanics.

2009. Vol. 638. P. 1–4.
13. Xia H., Francois N., Punzmann H., Shats M. Lagrangian scale of particle dispersion in turbulence // *Nature Communications*. 2013. Vol. 4.
 14. Stockman M. I. The spaser as a nanoscale quantum generator and ultrafast amplifier // *Journal of Optics*. 2010. Vol. 12, no. 2. P. 024004.
 15. Parfenyev V., Vergeles S. Intensity-dependent frequency shift in surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation // *Physical Review A*. 2012. Vol. 86, no. 4. P. 043824.
 16. Parfenyev V., Vergeles S. Spaser in above-threshold regime: The lasing frequency shift // *2012 Proceedings of the International Conference Days on Diffraction*. 2012.
 17. Lu Y.-J., Wang C.-Y., Kim J. et al. All-color plasmonic nanolasers with ultralow thresholds: autotuning mechanism for single-mode lasing // *Nano Letters*. 2014. Vol. 14, no. 8. P. 4381–4388.
 18. Pelton M., Bryant G. *Introduction to Metal-Nanoparticle Plasmonics*. A Wiley-Science Wise Co-Publication. Wiley, 2013. ISBN: [9781118583043](#).
 19. Allen L., Eberly J. H. *Optical resonance and two-level atoms*. Courier Corporation, 2012.
 20. Sarychev A. K., Tartakovskiy G. Magnetic plasmonic metamaterials in actively pumped host medium and plasmonic nanolaser // *Physical Review B*. 2007. Vol. 75, no. 8. P. 085436.
 21. Johnson P. B., Christy R.-W. Optical constants of the noble metals // *Physical Review B*. 1972. Vol. 6, no. 12. P. 4370.
 22. Carmichael H. *Statistical Methods in Quantum Optics 1*. Springer, Berlin, 2010.
 23. Danilova A., Danilova T., Imenkov A. et al. Rapid tuning of the generation frequency of InAsSb/InAsSbP diode lasers ($\lambda = 3.3 \mu\text{m}$) due to nonlinear optical effects // *Semiconductors*. 1999. Vol. 33, no. 2. P. 210–215.
 24. Rabinovich W., Feldman B. Spatial hole burning effects in distributed feed-

- back lasers // IEEE Journal of Quantum Electronics. 1989. Vol. 25, no. 1. P. 20–30.
25. Fedorov I., Parfenyev V., Vergeles S. et al. Allowable number of plasmons in nanoparticle // JETP Letters. 2014. Vol. 100, no. 8. P. 530–534.
 26. Sarychev A., Fyodorov I., Parfenyev V. et al. Thermal instability in plasmonics // SPIE/COS Photonics Asia / International Society for Optics and Photonics. 2014. P. 927806.
 27. Sarychev A. K., Tartakovsky G., Vergeles S., Parfenyev V. Thermal phenomena in quantum plasmonics // SPIE Nanoscience+Engineering / International Society for Optics and Photonics. 2015. P. 95470A.
 28. Colas des Francs G., Derom S., Vincent R. et al. Mie plasmons: modes volumes, quality factors, and coupling strengths (Purcell factor) to a dipolar emitter // International Journal of Optics.
 29. Freedman J. P., Leach J. H., Preble E. A. et al. Universal phonon mean free path spectra in crystalline semiconductors at high temperature // Scientific Reports. 2013. Vol. 3.
 30. Chen G. Ballistic-diffusive heat-conduction equations // Physical Review Letters. 2001. Vol. 86, no. 11. P. 2297.
 31. Duda J., Yang C.-Y., Foley B. et al. Influence of interfacial properties on thermal transport at gold: silicon contacts // Applied Physics Letters. 2013. Vol. 102, no. 8. P. 081902.
 32. Neumann O., Urban A. S., Day J. et al. Solar vapor generation enabled by nanoparticles // Acs Nano. 2012. Vol. 7, no. 1. P. 42–49.
 33. Liu M., Pelton M., Guyot-Sionnest P. et al. Reduced damping of surface plasmons at low temperatures // Physical Review B. 2009. Vol. 79, no. 3. P. 035418.
 34. Bouillard J.-S. G., Dickson W., O'Connor D. P. et al. Low-temperature plasmonics of metallic nanostructures // Nano Letters. 2012. Vol. 12, no. 3. P. 1561–1565.

35. Yeshchenko O., Bondarchuk I., Gurin V. et al. Temperature dependence of the surface plasmon resonance in gold nanoparticles // *Surface Science*. 2013. Vol. 608. P. 275–281.
36. Castro T., Reifenberger R., Choi E., Andres R. Size-dependent melting temperature of individual nanometer-sized metallic clusters // *Physical Review B*. 1990. Vol. 42, no. 13. P. 8548.
37. Yeshchenko O. A., Dmitruk I. M., Alexeenko A. A. et al. Size and temperature effects on the surface plasmon resonance in silver nanoparticles // *Plasmonics*. 2012. Vol. 7, no. 4. P. 685–694.
38. Jund P., Jullien R. Molecular-dynamics calculation of the thermal conductivity of vitreous silica // *Physical Review B*. 1999. Vol. 59, no. 21. P. 13707.
39. Yoon Y.-G., Car R., Srolovitz D. J., Scandolo S. Thermal conductivity of crystalline quartz from classical simulations // *Physical Review B*. 2004. Vol. 70, no. 1. P. 012302.
40. Martynenko Y. V., Ognev L. Thermal radiation from nanoparticles // *Technical Physics*. 2005. Vol. 50, no. 11. P. 1522–1524.
41. Landau L. D., Lifshitz E. *Statistical physics I*. Pergamon, Oxford, 1980.
42. Link S., Burda C., Mohamed M. et al. Femtosecond transient-absorption dynamics of colloidal gold nanorods: Shape independence of the electron-phonon relaxation time // *Physical Review B*. 2000. Vol. 61, no. 9. P. 6086.
43. Link S., Burda C., Nikoobakht B., El-Sayed M. How long does it take to melt a gold nanorod?: A femtosecond pump–probe absorption spectroscopic study // *Chemical Physics Letters*. 1999. Vol. 315, no. 1. P. 12–18.
44. Östling D., Stampfli P., Bennemann K. Theory of nonlinear optical properties of small metallic spheres // *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*. 1993. Vol. 28, no. 2. P. 169–175.
45. Landau L. D., Bell J., Kearsley M. et al. *Electrodynamics of continuous media*. Elsevier, 1984. Vol. 8.
46. Lee D., Wei X., Zhao M. et al. Plastic deformation in nanoscale gold single

- crystals and open-celled nanoporous gold // Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering. 2006. Vol. 15, no. 1. P. S181.
47. Demaske B. J., Zhakhovsky V. V., Inogamov N. A., Oleynik I. I. Ultrashort shock waves in nickel induced by femtosecond laser pulses // Physical Review B. 2013. Vol. 87, no. 5. P. 054109.
 48. Whitley V., McGrane S., Eakins D. et al. The elastic-plastic response of aluminum films to ultrafast laser-generated shocks // Journal of Applied Physics. 2011. Vol. 109, no. 1. P. 013505.
 49. Condra L. W., Svitak J. J., Pense A. W. The high temperature deformation properties of gold and thermocompression bonding // IEEE Transactions on Parts, Hybrids, and Packaging. 1975. Vol. 11, no. 4. P. 290–296.
 50. Scully M. O., Zubairy M. S. Quantum optics. Cambridge University Press, 1997.
 51. Cirac J. I. Interaction of a two-level atom with a cavity mode in the bad-cavity limit // Physical Review A. 1992. Vol. 46, no. 7. P. 4354.
 52. Andrianov E., Pukhov A., Dorofeenko A. et al. Spectrum of surface plasmons excited by spontaneous quantum dot transitions // Journal of Experimental and Theoretical Physics. 2013. Vol. 117, no. 2. P. 205–213.
 53. Gnutzmann S. Photon statistics of a bad-cavity laser near threshold // The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics. 1998. Vol. 4, no. 1. P. 109–123.
 54. Trieschmann J., Xiao S., Prokopeva L. J. et al. Experimental retrieval of the kinetic parameters of a dye in a solid film // Optics Express. 2011. Vol. 19, no. 19. P. 18253–18259.
 55. Kim J., Drachev V. P., Jacob Z. et al. Improving the radiative decay rate for dye molecules with hyperbolic metamaterials // Optics Express. 2012. Vol. 20, no. 7. P. 8100–8116.
 56. Temnov V. V., Woggon U. Photon statistics in the cooperative spontaneous emission // Optics Express. 2009. Vol. 17, no. 7. P. 5774–5782.

57. Parfenyev V. M., Vergeles S. S. Quantum theory of a spaser-based nanolaser // *Optics Express*. 2014. Vol. 22, no. 11. P. 13671–13679.
58. Andrianov E., Baranov D., Pukhov A. et al. Loss compensation by spasers in plasmonic systems // *Optics Express*. 2013. Vol. 21, no. 11. P. 13467–13478.
59. Temnov V. V., Woggon U. Superradiance and subradiance in an inhomogeneously broadened ensemble of two-level systems coupled to a low-Q cavity // *Physical Review Letters*. 2005. Vol. 95, no. 24. P. 243602.
60. Bohnet J. G., Chen Z., Weiner J. M. et al. A steady-state superradiant laser with less than one intracavity photon // *Nature*. 2012. Vol. 484, no. 7392. P. 78–81.
61. Francois N., Xia H., Punzmann H., Shats M. Inverse energy cascade and emergence of large coherent vortices in turbulence driven by Faraday waves // *Physical Review Letters*. 2013. Vol. 110, no. 19. P. 194501.
62. Falkovich G. *Fluid mechanics: A short course for physicists*. Cambridge University Press, 2011.
63. Filatov S., Parfenyev V., Vergeles S. et al. Nonlinear Generation of Vorticity by Surface Waves // *Physical Review Letters*. 2016. Vol. 116, no. 5. P. 054501.
64. Lamb H. *Hydrodynamics*. Cambridge University Press, 1932.
65. Landau L., Lifshitz E. *Fluid mechanics*, 2nd. Pergamon Press, Oxford, 1987.
66. Punzmann H., Francois N., Xia H. et al. Generation and reversal of surface flows by propagating waves // *Nature Physics*. 2014. Vol. 10, no. 9. P. 658–663.
67. Gharib M., Derango P. A liquid film (soap film) tunnel to study two-dimensional laminar and turbulent shear flows // *Physica D: Nonlinear Phenomena*. 1989. Vol. 37, no. 1. P. 406–416.
68. Couder Y., Chomaz J., Rabaud M. On the hydrodynamics of soap films // *Physica D: Nonlinear Phenomena*. 1989. Vol. 37, no. 1-3. P. 384–405.
69. Taylor S. Experiments on the Colours Shown by Thin Liquid Films under the Action of Sonorous Vibrations // *Proceedings of the Royal Society of London*.

1878. Vol. 27, no. 185-189. P. 71–76.
70. Airiau M. Étude des vibrations des membranes de savon // DEA Report, ENS, Paris. 1986.
71. Afenchenko V., Ezersky A., Kiyashko S. et al. The generation of two-dimensional vortices by transverse oscillation of a soap film // *Physics of Fluids* (1994-present). 1998. Vol. 10, no. 2. P. 390–399.
72. Vega J. M., Higuera F., Weidman P. Quasi-steady vortical structures in vertically vibrating soap films // *Journal of Fluid Mechanics*. 1998. Vol. 372. P. 213–230.
73. Pieranski P., Beliard L., Tournellec J.-P. et al. Physics of smectic membranes // *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*. 1993. Vol. 194, no. 1. P. 364–389.
74. Yablonskii S. V., Oue T., Nambu H. et al. Electromechanical effect in freely suspended liquid crystal films // *Applied Physics Letters*. 1999. Vol. 75. P. 64.
75. Kraus I., Bahr C., Chikina I., Pieranski P. Can one hear structures of smectic films? // *Physical Review E*. 1998. Vol. 58, no. 1. P. 610.
76. Kats E. I., Lebedev V. V. *Fluctuational effects in the dynamics of liquid crystals*. Springer Science & Business Media, 2012.
77. Parfenyev V., Vergeles S., Lebedev V. Nonlinear generation of vorticity in thin smectic films // *Pis'ma v ZhETF*. 2016. Vol. 103, no. 3. P. 220–224.
78. Uto S., Tazoh E., Ozaki M., Yoshino K. Mechanical vibration of freely suspended ferroelectric liquid-crystal film excited by sound and electric field // *Journal of Applied Physics*. 1997. Vol. 82, no. 6. P. 2791–2794.
79. Chertkov M., Connaughton C., Kolokolov I., Lebedev V. Dynamics of energy condensation in two-dimensional turbulence // *Physical Review Letters*. 2007. Vol. 99, no. 8. P. 084501.
80. Xia H., Shats M., Falkovich G. Spectrally condensed turbulence in thin layers // *Physics of Fluids* (1994-present). 2009. Vol. 21, no. 12. P. 125101.

81. Laurie J., Boffetta G., Falkovich G. et al. Universal profile of the vortex condensate in two-dimensional turbulence // Physical Review Letters. 2014. Vol. 113, no. 25. P. 254503.
82. Arnold N., Piglmayer K., Kildishev A. V., Klar T. A. Spasers with retardation and gain saturation: electrodynamic description of fields and optical cross-sections // Optical Materials Express. 2015. Vol. 5, no. 11. P. 2546–2577.

Приложение А

Четырехуровневая модель активных молекул

Эволюция элементов матрицы плотности в секторе излучения (в приближении вращающейся волны) описывается уравнениями

$$\partial_t \rho_{uu} = \Gamma_u \rho_{pp} - \gamma \rho_{uu} - \text{Im}[\Omega \rho^*], \quad (\text{A.1})$$

$$\partial_t \rho_{ll} = -\Gamma_l \rho_{ll} + \gamma \rho_{uu} + \text{Im}[\Omega \rho^*], \quad (\text{A.2})$$

$$\partial_t \rho = -\Gamma_\Delta \rho - i(\rho_{uu} - \rho_{ll})\Omega/2, \quad (\text{A.3})$$

где γ — скорость спонтанного излучения. Отметим, что введенная в основном тексте населенность $N = \rho_{uu} - \rho_{ll}$. Мы не учитываем обратные переходы $|u\rangle \rightarrow |p\rangle$ и $|g\rangle \rightarrow |l\rangle$, считая температуру системы намного меньше, чем соответствующие разности энергий между уровнями. Уравнения на эволюцию элементов матрицы плотности в секторе накачки могут быть легко написаны по аналогии

$$\partial_t \rho_{pp} = -\Gamma_u \rho_{pp} - \text{Im}[\Omega_p \rho_p^*], \quad (\text{A.4})$$

$$\partial_t \rho_{gg} = \Gamma_l \rho_{ll} + \text{Im}[\Omega_p \rho_p^*], \quad (\text{A.5})$$

$$\partial_t \rho_p^* = -\Gamma_p \rho_p^* + i(\rho_{pp} - \rho_{gg})\Omega_p^*/2. \quad (\text{A.6})$$

Здесь Ω_p — частота осцилляций Раби в секторе накачки, а Γ_p — скорость дефазировки в том же секторе. Теперь найдем стационарное решение данных уравнений в предположении быстрой дефазировки и слабой накачки $\gamma, \Omega_p \ll \Gamma, \Gamma_p \sim \Gamma_u, \Gamma_l$. Последнее предположение оправдано, поскольку в экспериментальной работе [8] не наблюдается явления насыщения накачки.

Используя условие нормировки $\text{Tr} \hat{\rho} = 1$, после длительных, но простых вычислений для недиагонального элемента матрицы плотности приходим к

следующему выражению

$$\rho = \frac{-i\Omega\Gamma_{\Delta}^*}{2|\Gamma_{\Delta}|^2 \left[1 + \frac{2\Gamma_p}{|\Omega_p|^2} \left(\gamma + \frac{\Gamma|\Omega|^2}{2|\Gamma_{\Delta}|^2} \right) \right]}. \quad (\text{A.7})$$

Сравнивая с выражением (1.6), приходим к заключению, что параметры двухуровневой модели выражаются через параметры накачивающей волны согласно выражению (1.7).

Приложение Б

Уравнение движения в R -представлении

Согласно определению характеристической функции (3.2), ее эволюция описывается уравнением

$$\frac{\partial \chi_N}{\partial t} = \text{tr} \left(\dot{\rho} e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right). \quad (\text{B.1})$$

Теперь подставим $\dot{\rho}$ из уравнения (3.1) и рассмотрим полученные слагаемые по отдельности. Начнем с члена $\text{tr} \left(J_z \rho e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right)$. Пользуясь возможностью циклической перестановки под знаком следа, находим:

$$\begin{aligned} \text{tr} \left(\rho e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} J_z \right) &= \text{tr} \left(\rho e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} \left[e^{i\xi J_-} J_z e^{-i\xi J_-} \right] e^{i\xi J_-} \right) = \\ &= \text{tr} \left(\rho e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} \left[J_z + 2i\xi J_- \right] e^{i\xi J_-} \right) = \left(\frac{\partial}{\partial(i\eta)} + 2i\xi \frac{\partial}{\partial(i\xi)} \right) \chi_N. \end{aligned}$$

Здесь мы также воспользовались соотношением $e^{i\xi J_-} J_z e^{-i\xi J_-} = J_z + 2i\xi J_-$, которое справедливо, поскольку на левую часть этого равенства можно смотреть, как на формальное решение уравнения движения в представлении Гейзенберга ($i\xi$ независимая переменная и $i\xi J_-$ аналог $(iH/\hbar)t$ в формальном решении уравнения Шредингера). Мы можем определить $J_z(i\xi) \equiv e^{i\xi J_-} J_z e^{-i\xi J_-}$ с начальным условием $J_z(0) = J_z$, и тогда, используя аналогию, находим:

$$\frac{dJ_z(i\xi)}{d(i\xi)} = e^{i\xi J_-} [J_-, J_z] e^{-i\xi J_-} = e^{i\xi J_-} 2J_- e^{-i\xi J_-} = 2J_-, \quad (\text{B.2})$$

и соответственно,

$$J_z(i\xi) = J_z(0) + 2i\xi J_- = J_z + 2i\xi J_-. \quad (\text{B.3})$$

Таким же образом, мы получаем, что

$$\text{tr} \left(\rho J_z e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) = \left(\frac{\partial}{\partial(i\eta)} + 2i\xi^* \frac{\partial}{\partial(i\xi^*)} \right) \chi_N.$$

Чтобы преобразовать остальные слагаемые в уравнении (Б.1), нам понадобятся соотношения

$$e^{i\xi J_-} J_z e^{-i\xi J_-} = J_z + 2i\xi J_-, \quad (\text{Б.4})$$

$$e^{i\eta J_z} J_- e^{-i\eta J_z} = e^{-2i\eta} J_-, \quad e^{i\eta J_z} J_+ e^{-i\eta J_z} = e^{2i\eta} J_+, \quad (\text{Б.5})$$

$$e^{i\xi J_-} J_+ e^{-i\xi J_-} = J_+ - i\xi J_z - (i\xi)^2 J_-, \quad (\text{Б.6})$$

которые могут быть получены с помощью метода, аналогичного (Б.2-Б.3).

Для слагаемых, описывающих кооперативные эффекты, находим:

$$\begin{aligned} \text{tr} \left(J_+ J_- \rho e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) &= \left(e^{2i\eta} \frac{\partial^2}{\partial(i\xi^*)\partial(i\xi)} - i\xi \frac{\partial^2}{\partial(i\eta)\partial(i\xi)} - (i\xi)^2 \frac{\partial^2}{\partial(i\xi)^2} \right) \chi_N, \\ \text{tr} \left(J_- \rho J_+ e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) &= \frac{\partial^2}{\partial(i\xi^*)\partial(i\xi)} \chi_N, \\ \text{tr} \left(\rho J_+ J_- e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) &= \left(e^{2i\eta} \frac{\partial^2}{\partial(i\xi^*)\partial(i\xi)} - i\xi^* \frac{\partial^2}{\partial(i\xi^*)\partial(i\eta)} - (i\xi^*)^2 \frac{\partial^2}{\partial(i\xi^*)^2} \right) \chi_N. \end{aligned}$$

Оставшиеся три слагаемых не могут быть переписаны в терминах коллективных операторов для молекул, тем не менее:

$$\begin{aligned} &\text{tr} \left(\sum_{j=1}^N \sigma_{j+} \rho \sigma_{j-} e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) = \\ &\text{tr} \left(\sum_{j=1}^N \rho e^{i\xi^* J_+} (e^{-i\xi^* \sigma_{j+}} \sigma_{j-} e^{i\xi^* \sigma_{j+}}) e^{i\eta J_z} (e^{i\xi \sigma_{j-}} \sigma_{j+} e^{-i\xi \sigma_{j-}}) e^{i\xi J_-} \right) = \\ &\text{tr} \left(\sum_{j=1}^N \rho e^{i\xi^* J_+} (\sigma_{j-} - i\xi^* \sigma_{jz} - (i\xi^*)^2 \sigma_{j+}) e^{i\eta J_z} (\sigma_{j+} - i\xi \sigma_{jz} - (i\xi)^2 \sigma_{j-}) e^{i\xi J_-} \right) = \\ &\text{tr} \left(\sum_{j=1}^N \rho e^{i\xi^* J_+} (\sigma_{j-} - i\xi^* \sigma_{jz} - (i\xi^*)^2 \sigma_{j+}) (e^{2i\eta} \sigma_{j+} - i\xi \sigma_{jz} - (i\xi)^2 e^{-2i\eta} \sigma_{j-}) e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) = \\ &\text{tr} \left(\rho e^{i\xi^* J_+} \left(e^{2i\eta} \frac{1}{2} (N - J_z) + N(i\xi)(i\xi^*) + (i\xi)^2 (i\xi^*)^2 e^{-2i\eta} \frac{1}{2} (N + J_z) \right) e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) - \\ &\text{tr} \left(\rho e^{i\xi^* J_+} ((i\xi)(1 + (i\xi)(i\xi^*) e^{-2i\eta}) J_- + (i\xi^*)(e^{2i\eta} + (i\xi)(i\xi^*)) J_+) e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) = \\ &\frac{N}{2} [e^{2i\eta} + (i\xi)^2 (i\xi^*)^2 e^{-2i\eta} + 2(i\xi)(i\xi^*)] \chi_N - \frac{1}{2} [e^{2i\eta} - (i\xi)^2 (i\xi^*)^2 e^{-2i\eta}] \frac{\partial}{\partial(i\eta)} \chi_N - \\ &-i\xi [e^{2i\eta} + (i\xi)(i\xi^*)] \frac{\partial}{\partial(i\xi)} \chi_N - (i\xi^*) [e^{2i\eta} + (i\xi)(i\xi^*)] \frac{\partial}{\partial(i\xi^*)} \chi_N, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \text{tr} \left(\sum_{j=1}^N \sigma_{jz} \rho \sigma_{jz} e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) = \\
& \text{tr} \left[\sum_{j=1}^N \rho e^{i\xi^* J_+} \left(e^{-i\xi^* \sigma_{j+}} \sigma_{jz} e^{i\xi^* \sigma_{j+}} \right) e^{i\eta J_z} \left(e^{i\xi \sigma_{j-}} \sigma_{jz} e^{-i\xi \sigma_{j-}} \right) e^{i\xi J_-} \right] = \\
& \text{tr} \left[\sum_{j=1}^N \rho e^{i\xi^* J_+} (\sigma_{jz} + 2i\xi^* \sigma_{j+}) (\sigma_{jz} + 2i\xi e^{-2i\eta} \sigma_{j-}) e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right] = \\
& \text{tr} \left[\rho e^{i\xi^* J_+} (N - 2i\xi e^{-2i\eta} J_- - 2i\xi^* J_+ + 2(i\xi^*)(i\xi) e^{-2i\eta} (N + J_z)) e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right] = \\
& \left[N - 2i\xi^* \frac{\partial}{\partial(i\xi^*)} - 2i\xi \frac{\partial}{\partial(i\xi)} + 2(i\xi^*)(i\xi) e^{-2i\eta} \left(N + \frac{\partial}{\partial(i\eta)} \right) \right] \chi_N,
\end{aligned}$$

и наконец,

$$\text{tr} \left(\sum_{j=1}^N \sigma_{j-} \rho \sigma_{j+} e^{i\xi^* J_+} e^{i\eta J_z} e^{i\xi J_-} \right) = e^{-2i\eta} \frac{1}{2} \left(N + \frac{\partial}{\partial(i\eta)} \right) \chi_N.$$

Собирая все слагаемые вместе приходим к уравнению, описывающему эволюцию характеристической функции,

$$\frac{\partial \chi_N}{\partial t} = D \left(\xi, \xi^*, \eta, \frac{\partial}{\partial \xi}, \frac{\partial}{\partial \xi^*}, \frac{\partial}{\partial \eta} \right) \chi_N, \quad (\text{B.7})$$

где $D = D_A + D_\uparrow + D_p + D_\downarrow + D_{AF}$, и соответственно

$$\begin{aligned}
D_A &= -i\omega_A \left[\xi \frac{\partial}{\partial \xi} - \xi^* \frac{\partial}{\partial \xi^*} \right], \\
D_\uparrow &= \frac{\gamma_\uparrow}{2} \left[(e^{2i\eta} - 1) \left(N + i \frac{\partial}{\partial \eta} \right) + \xi^2 \xi^{*2} e^{-2i\eta} \left(N - i \frac{\partial}{\partial \eta} \right) - 2N \xi \xi^* \right] \\
&\quad - \frac{\gamma_\uparrow}{2} (2e^{2i\eta} - 1 - 2\xi \xi^*) \left(\xi \frac{\partial}{\partial \xi} + \xi^* \frac{\partial}{\partial \xi^*} \right), \\
D_p &= -\gamma_p \left[\xi^* \frac{\partial}{\partial \xi^*} + \xi \frac{\partial}{\partial \xi} + \xi \xi^* e^{-2i\eta} \left(N - i \frac{\partial}{\partial \eta} \right) \right], \\
D_\downarrow &= \frac{\gamma_\downarrow}{2} \left[(e^{-2i\eta} - 1) \left(N + \frac{\partial}{\partial(i\eta)} \right) - \left(\xi \frac{\partial}{\partial \xi} + \xi^* \frac{\partial}{\partial \xi^*} \right) \right], \\
D_{AF} &= \frac{g^2}{\kappa} \left[2(e^{2i\eta} - 1) \frac{\partial^2}{\partial \xi \partial \xi^*} - i \left(\xi \frac{\partial^2}{\partial \eta \partial \xi} + \xi^* \frac{\partial^2}{\partial \eta \partial \xi^*} \right) + \xi^2 \frac{\partial^2}{\partial \xi^2} + \xi^{*2} \frac{\partial^2}{\partial \xi^{*2}} \right].
\end{aligned}$$

Чтобы получить уравнение в P -представлении, мы должны взять Фурье преобразование от обеих частей равенства (B.7). В итоге приходим к соотношению (3.6).

Приложение В

Поле скорости в линейном приближении

Линеаризованное уравнение Навье-Стокса (4.1) имеет вид

$$\partial_t \mathbf{v} = -\nabla P / \rho_a + \nu_a \nabla^2 \mathbf{v}, \quad (\text{B.1})$$

и оно должно быть дополнено условием несжимаемости $\text{div } \mathbf{v} = 0$. Беря дивергенцию от этого уравнения, находим, что давление P должно удовлетворять уравнению Лапласа. Поэтому

$$P = P_2 e^{ikr - i\omega t} e^{-|k|z}, \quad z > 0 \quad \text{и} \quad P = P_1 e^{ikr - i\omega t} e^{|k|z}, \quad z < 0, \quad (\text{B.2})$$

и тогда линеаризованное уравнение Навье-Стокса:

$$\begin{cases} (\partial_t + \nu_a k^2 - \nu_a \partial_z^2) v_\alpha = -ik_\alpha P_2 e^{-|k|z} / \rho_a, \\ (\partial_t + \nu_a k^2 - \nu_a \partial_z^2) v_z = |k| P_2 e^{-|k|z} / \rho_a, \end{cases} \quad z > 0, \quad (\text{B.3})$$

$$\begin{cases} (\partial_t + \nu_a k^2 - \nu_a \partial_z^2) v_\alpha = -ik_\alpha P_1 e^{|k|z} / \rho_a, \\ (\partial_t + \nu_a k^2 - \nu_a \partial_z^2) v_z = -|k| P_1 e^{|k|z} / \rho_a, \end{cases} \quad z < 0. \quad (\text{B.4})$$

Эта система уравнений имеет решение, которое является суммой вынужденного (потенциального) и собственного (вихревого) слагаемых:

$$\begin{cases} v_\alpha = \frac{k_\alpha P_2}{\rho_a \omega} e^{-|k|z} + \kappa A_\alpha e^{-\kappa z}, \\ v_z = \frac{i|k| P_2}{\rho_a \omega} e^{-|k|z} + ik_\alpha A_\alpha e^{-\kappa z}, \end{cases} \quad z > 0, \quad (\text{B.5})$$

$$\begin{cases} v_\alpha = \frac{k_\alpha P_1}{\rho_a \omega} e^{|k|z} + \kappa B_\alpha e^{\kappa z}, \\ v_z = \frac{-i|k| P_1}{\rho_a \omega} e^{|k|z} - ik_\alpha B_\alpha e^{\kappa z}, \end{cases} \quad z < 0, \quad (\text{B.6})$$

где мы воспользовались условием несжимаемости $ik_\alpha v_\alpha + \partial_z v_z = 0$, а также ввели обозначение $\kappa^2 = k^2 - i\omega / \nu_a$. Чтобы определить постоянные A и B , мы

должны рассмотреть движение на поверхности пленки. С помощью закона сохранения вещества (5.1), $\partial_\alpha v_\alpha = 0$ при $z = 0$, мы находим:

$$A_\alpha = -\frac{k_\alpha P_2}{\rho_a \omega} \frac{1}{\kappa}, \quad B_\alpha = -\frac{k_\alpha P_1}{\rho_a \omega} \frac{1}{\kappa}. \quad (\text{B.7})$$

Непрерывность скорости на границе $z = 0$ приводит к условию $P_1 = -P_2 = P_0$. Окончательно, мы получаем:

$$v_\alpha = \mp \frac{k_\alpha P_0}{\rho_a \omega} \left(e^{\mp |k|z} - e^{\mp \kappa z} \right), \quad v_z = \frac{-i|k|P_0}{\rho_a \omega} \left(e^{\mp |k|z} - \frac{|k|}{\kappa} e^{\mp \kappa z} \right), \quad (\text{B.8})$$

где верхний (нижний) знак соответствует области $z > 0$ ($z < 0$).

Взаимосвязь между давлением P_0 и отклонением пленки от равновесия h может быть установлена из кинематического граничного условия (5.1), $\partial_t h = v_z$ при $z = 0$:

$$P_0 = -\nu_a \rho_a \frac{\kappa(\kappa + |k|)}{|k|} \partial_t h. \quad (\text{B.9})$$

Подставляя выражение (B.9) в соотношение (B.8), мы приходим к формулам (5.13)-(5.14), приведенным в основном тексте.

Закон дисперсии изгибной моды можно найти с помощью уравнения (5.12) для плотности импульса j_z . В линейном приближении его можно переписать в виде:

$$\rho_0 \partial_t^2 h = \sigma_0 \nabla^2 h + 2P_0, \quad (\text{B.10})$$

и, подставляя в него выражение (B.9), мы приходим к результату (5.16). Здесь мы воспользовались условием (5.15).

Приложение Г

Завихренность для пленки в вакууме

С учетом затухания изгибной моды (5.7), ее волновой вектор становится комплексным $k = k_0(1 + i\beta)$, что соответствует затуханию поперечных колебаний при их распространении вдоль пленки. Как следует из соотношения (5.7), только что введенный коэффициент $\beta = \alpha/\omega$, где постоянная затухания α определена в основном тексте.

Принимая во внимание затухание изгибной моды в явном виде, мы можем переписать выражение (5.25) как

$$\begin{aligned} h = & -\frac{H_1}{4} \cos(k_x x + k_y y - \omega t) e^{-\beta(k_x x + k_y y)} - \frac{H_1}{4} \cos(-k_x x - k_y y - \omega t) e^{\beta(k_x x + k_y y)} \\ & + \frac{H_1}{4} \cos(k_x x - k_y y - \omega t) e^{-\beta(k_x x - k_y y)} + \frac{H_1}{4} \cos(-k_x x + k_y y - \omega t) e^{\beta(k_x x - k_y y)} \\ & - \frac{H_2}{4} \cos(q_x x + q_y y - \omega t - \phi) e^{-\beta(q_x x + q_y y)} - \frac{H_2}{4} \cos(-q_x x - q_y y - \omega t - \phi) e^{\beta(q_x x + q_y y)} \\ & + \frac{H_2}{4} \cos(q_x x - q_y y - \omega t - \phi) e^{-\beta(q_x x - q_y y)} + \frac{H_2}{4} \cos(-q_x x + q_y y - \omega t - \phi) e^{\beta(q_x x - q_y y)}. \end{aligned}$$

Подставляя это выражение в соотношение (5.9), мы находим, что

$$\begin{aligned} \varpi_z = & \frac{2\beta\sigma_0}{\eta} H_1 H_2 \frac{|k|^2}{\hat{k}^2} \sin \phi \left[k_y q_x \sin(k_x x) \sin(q_y y) \cos(q_x x) \cos(k_y y) - \right. \\ & \left. - k_x q_y \cos(k_x x) \cos(q_y y) \sin(q_x x) \sin(k_y y) \right]. \end{aligned}$$

Это выражение и приведено в основном тексте, см. (5.26).