ANEXA A II-A.

MODELE UTILIZATE LA ÎNCEPUTURILE OPTICII NELINIARE PENTRU A ILUSTRA ORIGINEA NELINIARITĂȚILOR OPTICE

1. Polarizațiile neliniară statică și variabilă considerate ca mărimi scalare

La începutul acestui capitol vom trece în revistă problema polarizației neliniare a unui mediu în care actionează simultan un câmp constant exterior și un câmp al unei unde monocromatice.

Presupunem, pentru simplificare, că cele două câmpuri au aceeași direcție astfel încât se poate utiliza suma scalară:

$$E = E^0 + E^\omega \cos(\omega t). \tag{II.1}$$

Ne vom mărgini la a ține seama de variația polarizării în funcție de timp, ceea ce ne permite să folosim aproximația scalară, caz în care avem expresiile

$$P_j^L = \sum_l \chi_{jl}^{(1)} E_l \tag{II.2}$$

pentru *polarizația electrică liniară a mediului* și

$$P_j^{NL} = \sum_l \sum_k \chi_{jlk}^{(2)} E_l E_k + \sum_l \sum_k \sum_m \chi_{jlkm}^{(3)} E_l E_k E_m + ... \tag{II.3}$$

pentru *polarizația neliniară a mediului* (în care $\chi_{jl}^{(1)}$ reprezintă componentele tensorului de ordinul al doilea al susceptibilității liniare, iar $\chi_{jlk}^{(2)}, \chi_{jlkm}^{(3)}, ...$ sunt componentele tensorilor de rangul al treilea, de rangul al patrulea, ... (pentru susceptibilitățile neliniare) care devin:

$$P^L = \chi^{(1)} E \tag{II.4}$$

și, respectiv

$$P^{NL} = \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3. \tag{II.5}$$

Când utilizăm aproximația scalară, nu trebuie să uităm că valoarea lui $\chi^{(2)}$ nu poate fi diferită de zero decât în cristale. Introducând expresia (II.1) în relațiile (II.4) și (II.5), rezultă:

$$P^L = \chi^{(1)} E^0 + \chi^{(1)} E^\omega \cos(\omega t), \tag{II.6}$$

respectiv

$$P^{NL} = P^0 + P^\omega \cos(\omega t) + P^{2\omega} \cos(2\omega t) + P^{3\omega} \cos(3\omega t), \tag{II.7}$$

unde

$$P^0 = \chi^{(2)}E^0E^0 + \chi^{(3)}E^0E^0E^0 + \frac{3}{2}\chi^{(3)}E^0E^\omega E^\omega + \frac{1}{2}\chi^{(2)}E^\omega E^\omega; \quad \text{(II.8)}$$

$$P^\omega = 2\chi^{(2)}E^0E^\omega + 3\chi^{(3)}E^0E^\omega + \frac{3}{4}\chi^{(3)}E^\omega E^\omega E^\omega; \quad \text{(II.9)}$$

$$P^{2\omega} = \frac{3}{2}\chi^{(3)}E^0E^\omega E^\omega + \frac{1}{2}\chi^{(2)}E^\omega E^\omega; \quad \text{(II.10)}$$

$$P^{3\omega} = \frac{1}{4}\chi^{(3)}E^\omega E^\omega E^\omega. \quad \text{(II.11)}$$

Se observă că într-un mediu liniar, polarizația (răspunsul), dată de expresia (II.6), urmează complet forma câmpului care acționează în acest mediu, pe când într-un mediu neliniar polarizația nu urmează această “formă”.

Tabelul II.1.

FENOMENE		*Polarizația neliniară*			
Originea fenomenelor \ Natura fenomenelor		Statică	Prima armonică	A doua armonică	A treia armonică
Electrică	$\chi^{(2)}$	{1} $\chi^{(2)}E^0E^0$	-	-	-
	$\chi^{(3)}$	{2} $\chi^{(3)}E^0E^0E^0$	-	-	-
Opto - electrică	$\chi^{(2)}$	-	{5} $2\chi^{(2)}E^0E^\omega$	-	-
	$\chi^{(3)}$	{3} $\frac{3}{2}\chi^{(3)}E^0E^\omega E^\omega$	{6} $3\chi^{(3)}E^0E^0E^\omega$	{8} $\frac{3}{2}\chi^{(3)}E^0E^\omega E^\omega$	-
Optică	$\chi^{(2)}$	{4} $\frac{1}{2}\chi^{(2)}E^\omega E^\omega$	-	{9} $\frac{1}{2}\chi^{(2)}E^\omega E^\omega$	-
	$\chi^{(3)}$	-	{7} $\frac{3}{4}\chi^{(3)}E^\omega E^\omega E^\omega$	-	{10} $\frac{1}{4}\chi^{(3)}E^\omega E^\omega E^\omega$

Polarizația unui mediu neliniar, $P^L + P^{NL}$, se descompune în patru constituienți: *o polarizație statică* care comportă o componentă liniară, $\chi^{(1)}E^0$ (v. relația (II.6)) și o componentă neliniară P^0 (v. relația (II.8)); *o primă armonică* comportând o componentă liniară, $\chi^{(1)}E^\omega\cos(\omega t)$ (v. relația (II.6)) și o componentă neliniară, $P^{\omega}\cos(\omega t)$ (v. relațiile (II.7) și (II.9)); *o a doua armonică*, $P^{2\omega}\cos(2\omega t)$ (v. relațiile (II.7) și (II.10)), datorită unei singure polarizări neliniare; *o a treia armonică*, $P^{3\omega}\cos(3\omega t)$ (v. relațiile (II.7) și (II.11)), datorită, de asemenea, la o singură polarizare neliniară. Fiecare din acești patru constituienți, în afară de a treia armonică, se descompun la rândul lor în mai mulți termeni care diferă unul de altul prin susceptibilitățile neliniare $\chi^{(2)}$ sau $\chi^{(3)}$, precum și natura originilor (*optică, electrică* sau *opto-electrică*). Astfel, *polarizația statică neliniară* se descompune în patru termeni (formula II.8)) și *a două armonică* în doi termeni (formula (II.10)). Nu este dificil de a calcula că, în total, polarizația neliniară se descompune în zece termeni. La fiecare din acești termeni corespunde (răspunde) un fenomen optic neliniar determinat. Este evident că dacă se face să intervină în expresia (II.5) termeni de ordin mai înalt în câmp, numărul *termenilor neliniari posibili* sporește și se va constata, în particular, apariția armonicilor de ordin superior.

Acești zece *termeni neliniari* sunt grupați *în tabelul II.1.* conform naturii și originii lor. Examinarea acestui tabel arată că patru termeni sunt de origină optică, adică, ei se datorează acțiunii câmpului undei luminoase; doi termeni sunt de origină electrică, adică, ei se datorează acțiunii unui câmp constant exterior și patru termeni sunt de origină opto-electrică, adică, ei se datorează *interferenței* câmpului undei luminoase și câmpului electric exterior.

Aplicând rezultatele din tabelul II.1 cristalelor, trebuie să ținem seama de natura tensorială a susceptibilitățiilor neliniare. Astfel, de exemplu, termenul $\{8\}$ trebuie pus pentru a j – a componentă a vectorului polarizare sub forma:

$$P_j^{(8)} = \frac{3}{2}\sum_l\sum_k\sum_m \chi_{jlkm}^{(3)} E_l^0 E_k^{\omega} E_m^{\omega} \,. \qquad \text{(II.12)}$$

În plus, este necesar de a ține seama de dispersia temporală a susceptibilităților neliniare. În cazul în care relația constitutivă face să intervină amplitudinile polarizării și câmpurilor undelor, dispersia temporală se manifestă prin faptul că mediul are caracteristici optice care depind de frecvență. În aceste condiții este necesar să se țină seama de faptul că componentele tensorilor $\chi^{(2)}$ și $\chi^{(3)}$ ar depinde la fel de bine atât de frecvența variației polarizării cât și de frecvența undelor care figurează în aceste expresii. În exemplul pe care l-am considerat, termenul $\{8\}$, la componenta P_j corespunde pulsația 2ω, la componenta E_l^0 pulsația 0 și la componentele E_k^{ω} și E_m^{ω} pulsațiile ω. Având în vedere această circumstanță, trebuie să comparăm două suite: o suită de pulsații și o suită de indici ai componentelor vectorilor:

$$\{2\omega, 0, \omega, \omega\} \Leftrightarrow \{j, k, l, m\} \,. \qquad \text{(II.13)}$$

Suita de pulsații $\{2\omega, 0, \omega, \omega\}$ figurează în calitate de indice superior la componentele tensorului de susceptibilitate neliniară. Rezultă că expresia (II.12) ia forma:

$$P_j^{(8)} = \frac{3}{2}\sum_l\sum_k\sum_m \chi_{jlkm}^{(3)2\omega,0,\omega,\omega} E_l^0 E_k^{\omega} E_m^{\omega} \,. \qquad \text{(II.14)}$$

Dacă aplicăm rezultatele din tabelul II.1. la lichide și gaze, se convine să se țină seama că $\chi^{(2)} = 0$ (termenii $\{1\}$, $\{5\}, \{4\}$ și $\{9\}$ sunt eliminați din tabel). În plus, trebuie, în acest caz, de asemenea, să se țină seama de dispersia temporală. Termenul $\{8\}$ trebuie să se scrie în acest caz sub forma:

$$P^{(8)} = \frac{3}{2}\chi^{(3)}\left(2\omega, 0, \omega, \omega\right) E^{0} E^{\omega} E^{\omega} . \tag{II.15}$$

În concluzie, remarcăm că în numeroase cazuri se consideră fenomenele optice neliniare neglijând dispersia spațială.

1.1. Polarizația neliniară statică

Se va scrie termenul $\{1\}$ din tabelul II.1. sub forma:

$$P_j^{(1)} = \sum_{1}\sum_{k} \chi_{jlk}^{(3)0,0,0} E_l^0 E_k^0 . \tag{II.16}$$

Acest termen este responsabil de efectul electro-optic liniar (*efectul Pockels*) într-un câmp electric constant exterior. În lichide, acest efect nu se produce.

Dacă scriem termenul $\{2\}$ sub forma:

$$P_j^{(2)} = \sum_{l}\sum_{k}\sum_{m} \chi_{jlkm}^{(3)0000} E_l^0 E_k^0 E_m^0 , \tag{II.17}$$

acesta este responsabil de efectul electro-optic pătratic (*fenomenul Kerr*) într-un câmp electric constant exterior. Pentru un lichid expresia (II.17) ia forma:

$$P^{(2)} = \chi^{(3)} E^0 E^0 E^0 . \tag{II.18}$$

Vom scrie termenul $\{3\}$ sub forma:

$$P_j^{(3)} = \frac{3}{2}\sum_{l}\sum_{k}\sum_{m} \chi_{jlkm}^{(3)00\omega\omega} E_l^0 E_k^{\omega} E_m^{\omega} , \tag{II.19}$$

acest rezultat descriind polarizația statică ce apare în cazul creerii celei de-a treia armonici în prezența unui câmp constant exterior. În lichide, la acest termen (II.19) corespunde un fenomen numit de *orientare optică a moleculelor*.

Punând termenul $\{4\}$ sub forma:

$$P_j^{(4)} = \frac{1}{2}\sum_{l}\sum_{k} \chi_{jlk}^{(3)0\omega\omega} E_l^{\omega} E_k^{\omega} , \tag{II.20}$$

acesta descrie polarizația statică care apare în cazul producerii celei de-a doua armonici în absența câmpului constant exterior. Acesta este *efectul de redresare optică*. Acest efect nu se manifestă în lichide.

1.2. Armonici ale polarizării neliniare

Termenii $\{5\}$–$\{10\}$ dau diferite armonici ale polarizării neliniare. La termenii $\{5\}$ și $\{6\}$ corespund efectele particulare Pockels și, respectiv Kerr, datorită acțiunii conjugate a unui câmp exterior aplicat cristalului și a unui câmp de unde luminoase.

Dacă se pune termenul $\{7\}$ sub forma:

$$P_j^{(7)} = \frac{3}{4}\sum_{l}\sum_{k}\sum_{m} \chi_{jlkm}^{(3)\omega\omega\omega\omega} E_l^{\omega} E_k^{\omega} E_m^{(\omega)} , \tag{II.21}$$

acesta descrie variația indicelui de refracție al unui cristal traversat de o undă luminoasă intensă, ceea ce are ca efect să provoace apariția fenomenului de *autofocalizare a luminii*. Fenomenul de autofocalizare se manifestă, de asemenea, în lichide și în gaze. In acest ultim caz, expresia (II.21) se simplifică considerabil devenind:

$$P^{(7)} = \frac{3}{4}\chi^{3}(\omega)E^{\omega}E^{\omega}E^{\omega}. \tag{II.22}$$

Termenul {8} (v. formula (II.14)) descrie generarea celei de-a doua armonici în prezența unui câmp exterior. *Numai prezența unui câmp exterior permite să se observe producerea celei de-a doua armonici în lichide și în gaze*. În cristale, fenomenul de producere a celei de-a doua armonici este descris, de asemenea, de termenul {9}:

$$P_j^{(9)} = \frac{1}{2}\sum_l\sum_k \chi_{jlk}^{(3)2\omega\omega\omega} E_l^{\omega}E_k^{\omega}. \tag{II.23}$$

În acest caz, câmpul exterior este absent. Fenomenul considerat nu se produce decât datorită acțiunii câmpului undei luminoase.

Scriind termenul {10} sub forma:

$$P_j^{(10)} = \frac{1}{4}\sum_l\sum_k\sum_m \chi_{jlkm}^{(3)3\omega\omega\omega\omega} E_l^{\omega}E_k^{\omega}E_m^{\omega}, \tag{II.24}$$

se obține *fenomenul producerii celei de-a treia armonici*.

1.3. Interacțiunea undelor monocromatice

Revenind la *varianta scalară* a descrierii polarizării neliniare și în locul relațiilor (II.5) și (II.1) considerând expresiile:

$$P^{NL} = \chi^{(2)}E^2, \tag{II.25}$$

respectiv

$$E = E^{\omega}\cos(\omega t) + E^{\Omega}\cos(\Omega t), \tag{II.26}$$

atunci, introducând expresia (II.26) în formula (II.25), rezultă următoarea expresie pentru polarizarea neliniară:

$$P^{NL} = P^0 + P^{2\omega}\cos(2\omega t) + P^{2\Omega}\cos(2\Omega t) + P^{\Omega+\omega}\cos(\Omega+\omega)t + P^{\Omega-\omega}\cos(\Omega-\omega)t, \tag{II.27}$$

unde:

$$P^0 = \frac{1}{2}\left[\left(E^{\omega}\right)^2 + \left(E^{\Omega}\right)^2\right]\chi^{(2)}; \tag{II.28}$$

$$P^{2\omega} = \frac{1}{2}\left(E^{\omega}\right)^2\chi^{(2)}; \tag{II.29}$$

$$P^{2\Omega} = \frac{1}{2}\left(E^{\Omega}\right)^2\chi^{(2)}; \tag{II.30}$$

$$P^{\Omega+\omega} = E^{\omega}E^{\Omega}\chi^{(2)}; \tag{II.31}$$

$$P^{\Omega-\omega} = E^{\omega}E^{\Omega}\chi^{(2)}. \tag{II.32}$$

Se observă că:

$$P^{\Omega+\omega} = P^{\Omega-\omega} = \chi^{(2)}E^{\omega}E^{\Omega}, \tag{II.33}$$

iar prin trecerea la o descriere tensorială se obține:

$$P_j^{\Omega\pm\omega} = \sum_l \sum_k \chi_{jlk}^{\Omega\pm\omega\Omega\omega} = E_l^{\Omega} E_k^{\omega} . \qquad \text{(II.34)}$$

Astfel, interacția dintre undele de pulsații Ω și ω într-un mediu neliniar provoacă apariția de unde de pulsații Ω și ω într-un mediu neliniar. În acest mod se explică *generarea parametrică a luminii*.

Este ușor de stabilit că există o analogie între relația (II.34) pe de o parte și relațiile (II.23) și (II.20), pe de altă parte. Această analogie ne permite să afirmăm că printre termenii care figurează în tabelul II.1, termenii {9} și {4} sunt cei care corespund *generării parametrice a luminii*.

Dacă generarea parametrică a luminii se produce în prezența unui câmp exterior, termenii de tipul {9} și {4} trebuie înlocuiți prin termeni de tipul {8} și, respectiv {3} (v. formulele (II.12) și (II.19)), ajungând la concluzia că generarea parametrică a luminii în prezența unui câmp exterior trebuie să se descrie printr-o polarizare neliniară:

$$P_j^{\Omega\pm\omega} \approx \sum_l \sum_k \sum_m \chi_{jlkm}^{(3)\Omega\pm\omega 0\Omega\omega} E_l^{0} E_k^{\Omega} E_m^{\omega} . \qquad \text{(II.35)}$$

Generarea parametrică a luminii în prezența unui câmp exterior se poate produce nu numai în cristale ci și, de asemenea în medii izotrope.

2. Modelul electronului clasic și susceptibilitățile neliniare (Modelul oscilatorului anarmonic)

Pentru a se simplifica calculul susceptibilităților dielectrice s-a recurs, pentru început, la modelul electronului-oscilator clasic. Dacă oscilatorul considerat este armonic, se obține susceptibilitatea liniară. Pentru calculul susceptibilităților neliniare trebuie să se considere un oscilator anarmonic. Astfel, în mediul neliniar se consideră că avem N oscilatori anarmonici clasici pe unitatea de volum. Fiecare oscilator este descris fizic de un electron legat la un centru sau o vibrație moleculară în infraroșu activă. Se consideră că $\overline{E}$ este intensitatea câmpului electric care acționează asupra electronilor-oscilator.

Atunci, pentru un oscilator armonic, ecuația de mișcare este de forma:

$$m\frac{d^2\overline{r}}{dt^2} + \alpha\frac{d\overline{r}}{dt} + k\overline{r} = -e\overline{E} . \qquad \text{(II.36)}$$

În cazul oscilatorilor armonici, forța de atracție (de restaurare) este proporțională cu ecartul în raport cu poziția de echilibru $(k\overline{r})$.

Luând în considerație anarmonicitățile oscilațiilor, în expresia forței de atracție apar termeni suplimentari proporționali cu grade mai ridicate ale cantității $\overline{r}$. Datorită exigențelor de simetrie pentru un mediu izotrop (în particular, pentru un gaz) nu sunt posibile decât grade impare ale cantității $\overline{r}$. Astfel, dacă se ține seama de anarmonicitatea oscilatorului, aceasta este legată în primă aproximație de un termen suplimentar proporțional cu $\overline{r}^3$. Deci, în cazul unui oscilator anarmonic se obține:

$$m\frac{d^2\overline{r}}{dt^2}+\alpha\frac{d\overline{r}}{dt}+k\overline{r}-a\overline{r}^3=-e\overline{E}\ ,\tag{II.37}$$

unde a este un parametru care descrie anarmonicitatea oscilațiilor.

Ținând seama de faptul că polarizația este momentul dipolar al unității de volum:

$$\overline{P}=-eN\overline{r}\ ,\tag{II.38}$$

expresiile (II.36) și (II.37) se pot pune sub forma:

$$\frac{d^2\overline{P}}{dt^2}+\gamma\frac{d\overline{P}}{dt}+\omega_0^2\overline{P}=\frac{e^2N}{m}\overline{E}\ ,\tag{II.39}$$

respectiv

$$\frac{d^2\overline{P}}{dt^2}+\gamma\frac{d\overline{P}}{dt}+\omega_0^2\overline{P}-\frac{a}{e^2N^2m}\overline{P}^3=\frac{e^2N^2}{m}\overline{E}\ .\tag{II.40}$$

Soluția ecuației (II.39) dă polarizația liniară $\overline{P}^L$ și respectiv, susceptibilitatea liniară $\chi^{(1)}$. Soluția ecuației (II.40) este suma polarizațiilor liniară și neliniară:

$$\overline{P}=\overline{P}^L+\overline{P}^{NL}\ .\tag{II.41}$$

Aceasta este căutată, în general, presupunând că termenul cubic este net mai mic decât termenul liniar (polarizația neliniară este mult inferioară polarizației neliniare). În acest caz se admite sub o formă aproximativă că:

$$\overline{P}^3\approx\left(\overline{P}^L\right)^3\ .\tag{II.42}$$

În acest mod, mai întâi, se rezolvă ecuația (II.39) și se determină polarizația liniară $\overline{P}^L$. Aceasta se introduce în expresiile (II.41) și (II.42) și, apoi, în ecuația (II.40), obținându-se:

$$\frac{d^2\left(\overline{P}^L+\overline{P}^{NL}\right)}{dt^2}+\gamma\frac{d\left(\overline{P}^L+\overline{P}^{NL}\right)}{dt}+\omega^2\left(\overline{P}^L+\overline{P}^{NL}\right)-\frac{a}{e^2N^2m}\left(\overline{P}^L\right)^3=\frac{e^2N^2}{m}\overline{E}\ .\tag{II.43}$$

Ținând seama de relația (II.39), ecuația (II.43) va lua forma:

$$\frac{d^2\overline{P}^{NL}}{dt^2}+\gamma\frac{d\overline{P}^{NL}}{dt}+\omega_0^2\overline{P}^{NL}=\frac{a}{e^2N^2m}\left(\overline{P}^L\right)^3\ .\tag{II.44}$$

O astfel de manieră de a proceda corespunde metodei aproximațiilor succesive: mai întâi, se caută soluția unei ecuații liniare și, apoi, se folosește pentru o reprezentare aproximativă a neliniarității într-o ecuație neliniară.

Să presupunem că $\overline{E}=\overline{E}^\omega\cos(\omega t)$ și că pulsația ω se situează departe de pulsația caracteristică ω_0. Deoarece $\overline{P}^L=\chi^{(1)}(\omega)\overline{E}$, din ecuația (II.39) se obține:

$$\chi^{(1)}=\frac{e^2N}{m\left(\omega_0^2-\omega^2+i\omega\gamma\right)}\tag{II.45}$$

și

$$\overline{P}^L=\chi^{(1)}\overline{E}=\frac{e^2N\overline{E}^\omega}{m\left(\omega_0^2-\omega^2+i\omega\gamma\right)}\cos(\omega t)\ .\tag{II.46}$$

Introducând expresia (II.46) în ecuația (II.44), se obține:

$$\frac{d^2\overline{P}^{NL}}{dt^2}+\gamma\frac{d\overline{P}^{NL}}{dt}+\omega_0^2\overline{P}^{NL}=\frac{a}{e^2N^2m}\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2\overline{E}^{\omega}\cos^3(\omega t). \quad \text{(II.47)}$$

Deoarece

$$\cos^3(\omega t)=\frac{3}{4}\cos\omega t+\frac{1}{4}\cos(3\omega t), \quad \text{(II.48)}$$

este convenabil să se caute soluția $\overline{P}^{NL}$ sub forma a două armonici:

$$\overline{P}^{NL}=\overline{P}^{\omega}(t)+\overline{P}^{3\omega}(t)=\overline{P}^{\omega}\cos(\omega t)+\overline{P}^{3\omega}\cos(3\omega t). \quad \text{(II.49)}$$

Ținând seama de relația (II.48), ecuația (II.47) devine:

$$\frac{d^2\overline{P}^{NL}}{dt^2}+\gamma\frac{d\overline{P}^{NL}}{dt}+\omega_0^2\overline{P}^{NL}=\frac{a}{e^2N^2m}\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2\overline{E}^{\omega}\times\left[\frac{3}{4}\cos(\omega t)+\frac{1}{4}\cos(3\omega t)\right] \quad \text{(II.50)}$$

Mai departe, ținând seama de expresia (II.49), ecuația (II.50) poate fi înlocuită de ecuațiile:

$$\frac{d^2\overline{P}^{(\omega)}(t)}{dt^2}+\gamma\frac{d\overline{P}^{(\omega)}(t)}{dt}+\omega_0^2\overline{P}^{(\omega)}(t)=\frac{3a\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2}{4e^2N^2m}\overline{E}^{\omega}\cos(\omega t) \quad \text{(II.51)}$$

și

$$\frac{d^2\overline{P}^{(3\omega)}(t)}{dt^2}+\gamma\frac{d\overline{P}^{(3\omega)}(t)}{dt}+\omega_0^2\overline{P}^{(3\omega)}(t)=\frac{a\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2}{4e^2N^2m}\overline{E}^{\omega}\cos(3\omega t). \quad \text{(II.52)}$$

Dacă în ecuația (II.51) se introduce expresia

$$\overline{P}^{\omega}\cos(\omega t)\Rightarrow\overline{P}^{\omega}\exp[i\omega t], \quad \text{(II.53)}$$

unde

$$\overline{E}^{\omega}\cos(\omega t)\Rightarrow\overline{E}^{\omega}\exp[i\omega t], \quad \text{(II.54)}$$

atunci, se obține:

$$\overline{P}^{\omega}=\overline{E}^{\omega}\frac{3a\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2}{4e^2N^2m\left(\omega_0^2-\omega^2+i\gamma\omega\right)}. \quad \text{(II.55)}$$

De asemenea, dacă în ecuația (II.52) se pune

$$\overline{P}^{3\omega}\cos(3\omega t)\Rightarrow\overline{P}^{3\omega}\exp[i3\omega t] \quad \text{(II.56)}$$

unde

$$\overline{E}^{\omega}\cos(3\omega t)\Rightarrow\overline{E}^{\omega}\exp[i3\omega t], \quad \text{(II.57)}$$

rezultă:

$$\overline{P}^{3\omega}=\overline{E}^{\omega}\frac{a\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2}{4e^2N^2m\left(\omega_0^2-9\omega^2+3i\gamma\omega\right)}. \quad \text{(II.58)}$$

Pentru $\gamma = 0$, expresiile (II.53) și (II.58) devin

$$\overline{P}^{\omega}=\overline{E}^{\omega}\frac{3a\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2}{4e^2N^2m\left(\omega_0^2-\omega^2\right)} \quad \text{(II.59)}$$

și, respectiv

$$\overline{P}^{3\omega}=\overline{E}^{\omega}\frac{a\left(\chi^{(1)}\right)^3\left(E^{\omega}\right)^2}{4e^2N^2m\left(\omega_0^2-9\omega^2\right)}. \quad \text{(II.60)}$$

Rezultatul (II.59) descrie termenul {7} din tabelul II.1. În aceste condiții, deoarece

$$\overline{P}^{\omega} = \chi^{(3)}\left(E^{\omega}\right)^2 \overline{E}^{\omega}, \tag{II.61}$$

avem

$$\chi^{(3)}(\omega,\omega) \approx \frac{3a\left(\chi^{(1)}\right)^3}{4e^2N^2m\left(\omega_0^2-\omega^2\right)} = \frac{3aNe^4}{4m^4\left(\omega_0^2-\omega^2\right)^4}, \tag{II.62}$$

calculul exact conducând la:

$$\chi^{(3)}(\omega,\omega) = \frac{3aNe^4}{4m^4\left(\omega_0^2-\omega^2+i\omega\gamma\right)^4}. \tag{II.63}$$

Rezultatul (II.60) descrie termenul {10} din tabelul 3.1. În aceste condiții avem:

$$\chi^{(3)}(3\omega,\omega) = \frac{e^4Na}{4m^4\left(\omega_0^2-\omega^2\right)^3\left(\omega_0^2-9\omega^2\right)}. \tag{II.64}$$

sau, exact $(\gamma \neq 0)$:

$$\chi^{(3)}(3\omega,\omega) = \frac{e^4Na}{4m^4\left(\omega_0^2-\omega^2+i\omega\gamma\right)^3\left(\omega_0^2-9\omega^2+3i\omega\gamma\right)}. \tag{II.65}$$

Observații. Când se calculează susceptibilitățile neliniare, este necesar să se țină seama, în fiecare caz concret, de contribuția datorată diferitelor tipuri de mișcare în mediul considerat și de particularitățile dinamicii atomice din acest mediu. Dacă se descriu diversele tipuri de mișcare (electronică, intramoleculară, de rețea) sub o formă aproximativă cu ajutorul modelelor oscilatorilor, anarmonicitatea acestor oscilatori își va aduce de fiecare dată contribuția sa la susceptibilitatea neliniară. În cazurile reale, problema calculului susceptibilităților neliniare se adeverește a fi destul de complicată și pentru rezolvarea sa se cere să se folosească aparatul modern al fizicii solidului și diferite metode de aproximare.

[1°] În cazul dielectricilor solizi, mișcarea electronilor din interiorul benzilor nu aduce nici o contribuție la susceptibilitate. Pentru a evalua susceptibilitatea, în acest caz, este suficient să se țină seama numai de tranzițiile electronilor dintre benzi. Calculele arată că în acest caz:

$$\chi^{(2)} \approx \frac{\mathrm{a}^2}{e}, \tag{II.66}$$

respectiv

$$\chi^{(3)} \approx \frac{\mathrm{a}^4}{e^2}, \tag{II.67}$$

unde a este constanta rețelei. În general, se introduce mărimea

$$E_a = \frac{e}{4\pi\varepsilon_0\mathrm{a}^2} \tag{II.68}$$

numită *câmp atomic*. Aceasta este, de fapt, valoarea caracteristică a câmpului electric la distanța "a" de nucleu. Evaluările (II.66) și (II.67) se pot scrie, atunci, sub forma:

$$\chi^{(2)} \cong \frac{1}{E_a} \tag{II.69}$$

și, respectiv

$$\chi^{(3)} \cong \frac{1}{E_a^2}. \tag{II.70}$$

[2°] În semiconductori, banda interzisă ete mai puțin largă decât în dielectrici. Rezultă că tranzițiile dintre benzi joacă un rol mai important. În același timp, contribuția adusă de tranzițiile electronice din interiorul benzilor devin considerabile. Aceste circumstanțe au ca efect o reducere a câmpurilor atomice și, drept consecință, o creștere importantă a susceptibilităților neliniare în cazul semiconductorilor.

[3°] În cristalele magnetice o contribuție importantă la susceptibilitățile neliniare poate fi adusă de magnoni. În acest caz, evaluările mărimilor $\chi^{(2)}$ și $\chi^{(3)}$ se pot scrie sub forma:

$$\chi^{(2)} \approx \frac{\mathrm{a}^2 c}{e\upsilon_1} \approx \frac{c}{\upsilon_1}\frac{1}{E_a} \tag{II.71}$$

și

$$\chi^{(3)} \approx \left(\frac{c}{\upsilon_1}\right)^2 \frac{1}{E_a^2}, \tag{II.72}$$

unde $\upsilon_1 \approx \dfrac{\hbar}{ma}$ este viteza caracteristică a electronului în atom (corespunzătoare primei orbite Bohr).

Susceptibilitățile neliniare legate de luarea în considerație a fononilor pot fi reprezentate sub forma:

$$\chi^{(2)} \approx \frac{\omega_1}{E_a \cdot \Delta\omega} \tag{II.73}$$

și

$$\chi^{(3)} \approx \frac{\omega_1}{E_a^2 \cdot \Delta\omega}, \tag{II.74}$$

unde $\Delta\omega$ este semilărgimea spectrului fononilor și ω_1 este pulsația tranziției în spectrul fononilor considerat în fenomenul neliniar dat.

3. Modelul gazului de electroni liberi

Un model simplu dar realist pentru a ilustra neliniaritatea optică într-un mediu este modelul gazului de electroni liberi. Versiunea simplificată a modelului pornește de la ecuația de mișcare pentru un electron:

$$\frac{d^2\overline{r}}{dt^2} = -\frac{e}{m}\left(\overline{E} + \overline{\upsilon} \times \overline{B}\right), \tag{II.75}$$

în care, pentru simplificare, s-a neglijat atenuarea. Se observă că termenul neliniar în această ecuație este cel referitor la forța lui Lorentz. Deoarece într-o plasmă $\upsilon << c$, forța lui Lorentz este mult mai mică decât forța lui Coulomb și atunci $\frac{e}{m}\overline{\upsilon} \times \overline{B}$ din ecuația (II.75) poate fi tratată ca o perturbație în aproximația succesivă a soluției. Astfel, pentru:

$$\overline{E} = \overline{E}_{10} \exp\left[i\left(\overline{k}_1\overline{r} - \omega_1 t\right)\right] + \overline{E}_{20} \exp\left[i\left(\overline{k}_2\overline{r} - \omega_2 t\right)\right] + \text{c.c.}, \tag{II.76}$$

obținem

$$\overline{r}^{(1)}\left(\omega_j\right) = \frac{e}{m\omega_j^2}\overline{E}_{j0} \exp\left[i\left(\overline{k}_j\overline{r}^{(0)} - \omega_j t\right)\right] + \text{c.c.} \tag{II.77}$$

$$\begin{aligned}\overline{r}^{(2)}\left(\omega_1 + \omega_2\right) = {} & \frac{-ie^2}{m^2\omega_1\omega_2\left(\omega_1 + \omega_2\right)^2} \times \left[\overline{E}_{10} \times \left(\overline{k}_2 \times \overline{E}_{20}\right) + \overline{E}_{20} \times \left(\overline{k}_1 \times \overline{E}_{10}\right)\right] \times \\ & \times \exp\left[i\left\{\left(\overline{k}_1 + \overline{k}_2\right)\overline{r}^{(0)} - \left(\omega_1 + \omega_2\right)t\right\}\right] + \text{c.c.}\end{aligned} \tag{II.78}$$

ș.a.m.d. Pentru o plasmă uniformă cu o densitate de sarcină ρ, densitatea de curent electric este dată de expresia:

$$\overline{J} = \overline{J}^{(1)} + \overline{J}^{(2)} + \ldots = \rho\frac{\partial}{\partial t}\left(\overline{r}^{(1)} + \overline{r}^{(2)} + \ldots\right) \tag{II.79}$$

cu, de exemplu,

$$\overline{J}^{(2)}\left(\omega_1 + \omega_2\right) = \rho\frac{\partial}{\partial t}\overline{r}^{(2)}\left(\omega_1 + \omega_2\right) \tag{II.80}$$

etc... Aceasta ne arată explicit cum un electron al gazului poate răspunde neliniar la lumina care sosește prin termenul Lorentz.

Într-o tratare ma riguroasă a unui gaz electronic, este necesar să luăm în considerație variațiile spațiale ale densității electronice ρ și ale vitezei $\overline{\upsilon}$. Acum, pentru a descrie plasma electronică sunt necesare două ecuații, anume, ecuația de mișcare și ecuația de continuitate[1]:

$$\frac{\partial\overline{\upsilon}}{\partial t} + \left(\overline{\upsilon}\,\nabla\right)\cdot\overline{\upsilon} = -\frac{\nabla p}{m\rho} - \frac{e}{m}\left(\overline{E} + \overline{\upsilon} \times \overline{B}\right) \tag{II.81}$$

și

$$\frac{\partial\rho}{\partial t} + \nabla\left(\rho\overline{\upsilon}\right) = 0, \tag{II.82}$$

unde p este presiunea și m este masa electronului. Termenul gradientului presiunii din ecuația de mișcare este responsabil de dispersia plasmei la rezonanță, dar în calculele următoare vom pune $\nabla p = 0$ pentru simplificare. Atunci, cu ecuațiile (II.81) și (II.82) se cuplează seria de ecuații Maxwell:

---

[1] J. D. Jackson, *Classical Eletrodynamics*, McGraw – Hill, New York, (1975), 2nd, ed. p.469

$$\nabla\times\overline{E}=-\frac{\partial\overline{B}}{\partial t};\ \nabla\times\overline{B}-\varepsilon_0\mu_0\frac{\partial\overline{E}}{\partial t}=\mu_0\overline{J}=\mu_0\rho\overline{v};$$

$$\nabla\overline{E}=\frac{1}{\varepsilon_0}\left(\rho-\rho^{(0)}\right)\quad;\quad\nabla\overline{B}=0\,. \tag{II.83}$$

Pentru a se asigura neutralitatea sarcinii în plasmă în absența perturbațiilor externe, se presupune – aici – că există o sarcină pozitivă fixă ca fond în plasmă. Aproximația succesivă poate fi folosită pentru a exprima pe $\overline{J}$ ca funcție de $\overline{E}$ din expresiile (II.81), (II.82) și (II.83). Fie[(2)]

$$\begin{aligned}&\rho=\rho^{(0)}+\rho^{(1)}+\rho^{(2)}+...;\\&\overline{v}=\overline{v}^{(1)}+\overline{v}^{(2)}+....;\\&\overline{j}=\overline{j}^{(1)}+\overline{j}^{(2)}+.....,\end{aligned} \tag{II.84}$$

cu

$$\begin{aligned}&\overline{j}^{(1)}=\rho^{(0)}\overline{v}^{(1)};\\&\overline{j}^{(2)}=\rho^{(0)}\overline{v}^{(2)}+\rho^{(1)}\overline{v}^{(1)}.\end{aligned} \tag{II.85}$$

Vom deduce expresia pentru $j^{(2)}(2\omega)$ ca un exemplu, presupunând $\overline{E}=\overline{E}_0\exp\left[i\left(\overline{k}\overline{r}-\omega t\right)\right]$. Substituirea expresiilor (II.84) în relațiile (II.81), (II.82) și (II.83), conduce la:

$$\begin{aligned}&\frac{\partial\overline{v}^{(1)}(\omega)}{\partial t}=-i\,\omega\,\overline{v}^{(1)}=-\frac{e}{m}\overline{E};\\&\frac{\partial\rho^{(1)}(\omega)}{\partial t}=-i\,\omega\,\rho^{(1)}=-\nabla\left(\rho^{(0)}\overline{v}^{(1)}\right);\\&\nabla\overline{E}=\frac{1}{\varepsilon_0}\rho^{(1)}(\omega);\\&\frac{\partial\overline{v}^{(2)}(2\omega)}{\partial t}=-i\,2\omega\,\overline{v}^{(2)}=-\left(\overline{v}^{(1)}\cdot\nabla\right)-\frac{e}{m}\overline{v}^{(1)}\times\overline{B}.\end{aligned} \tag{II.86}$$

Densitatea de curent de al doilea ordin este atunci dată de

$$\overline{J}^{(2)}(2\omega)=\frac{i\rho^{(0)}}{2\omega}\left[\frac{e^2}{m^2\omega^2}\left(\overline{E}\cdot\nabla\right)\overline{E}+\frac{ie^2}{m^2\omega}\overline{E}\times\overline{B}\right]+\frac{\varepsilon_0 e}{im\omega}\left(\nabla\cdot\overline{E}\right)\overline{E}\,. \tag{II.87}$$

Ultimul termen din relația (II.87) are următoarea expresie:

$$\begin{aligned}&\frac{\varepsilon_0 e}{im\omega}\left(\nabla\cdot\overline{E}\right)\overline{E}=-\frac{e}{m\omega^2}\left[\nabla\cdot\left(\rho^{(0)}\overline{v}^{(1)}\right)\right]\overline{E}=\\&=\frac{ie^2}{m^2\omega^3}\left[\nabla\cdot\left(\rho^{(0)}\overline{E}\right)\right]\overline{E}=\frac{ie^2}{m^2\omega^3}\left[\frac{\nabla\cdot\left(\rho^{(0)}\overline{E}\right)}{1-\omega_p^2/\omega^2}\right]\cdot\overline{E}\end{aligned} \tag{II.88}$$

---

(2) N. Bloembergen, R. K. Chang, S. S. Yho, and C. H. Lee, *Phys. Rev.* **174**, 813, (1968)

unde $\omega_p = \left(\rho^{(0)} e / \varepsilon_0 m\right)^{1/2}$ este frecvența de rezonanță a plasmei. Cu relația (II.88), $\overline{B} = \frac{c}{i\omega} \nabla \times \overline{E}$ și relația vectorială $\overline{E} \times \left(\nabla \times \overline{E}\right) + \left(\overline{E} \cdot \nabla\right)\overline{E} = \frac{1}{2} \nabla\left(\overline{E} \cdot \overline{E}\right)$, densitatea de curent exprimată prin (II.87) poate fi scrisă sub forma:

$$\overline{J}^{(2)}(2\omega) = \frac{i\rho^{(0)} e^2}{4m^2\omega^3} \nabla\left(\overline{E} \cdot \overline{E}\right) + \frac{i e^2}{m^2\omega^3} \left[\nabla \cdot \left(\rho^{(0)} \overline{E}\right)\right] \cdot \overline{E} =$$

$$= \frac{i\rho^{(0)} e^2}{4m^2\omega^3} \nabla\left(\overline{E} \cdot \overline{E}\right) + \frac{i e^2}{m^2\omega^3} \left[\frac{\nabla\rho^{(0)} \cdot \overline{E}}{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}}\right] \overline{E}. \tag{II.89}$$

Ecuația (II.87) arată explicit că avem termenul Lorentz, pe de o parte, însă, există și un termen care depinde de variația spațială a lui $\overline{E}$, pe de altă parte. E_i apar din neuniformitatea plasmei. Într-o plasmă uniformă, $\nabla\rho^{(0)} = 0$ și deci, $\nabla\overline{E} = 0$ din formula (II.88). Aceasta înseamnă că $\overline{k} \perp \overline{E}$ și, prin urmare, $\left(\overline{E} \cdot \nabla\right)\overline{E}$ se anulează de asemenea. Termenul Lorentz este atunci singurul termen în $\overline{J}^{(2)}(2\omega)$.

Densitatea de curent indusă $\overline{J}^{(2)}(2\omega)$ acționează acum ca sursă pentru generarea armonicii a doua. Într-o plasmă uniformă, cu un singur fascicul de pompaj, $\overline{J}^{(2)}(2\omega) \alpha\, \overline{E} \times \overline{B}$ este numai de-a lungul direcției de propagare a fasciculului, Deoarece un curent oscilant nu radiază longitudinal, nu este de așteptat generarea armonicii a doua coerente de la volumul plasmei uniforme. În volumul plasmei neuniforme sau la suprafața limită a unei plasme uniforme, însă, este posibil să aibă loc generarea armonicii secunde prin neanularea lui $\nabla\rho^{(0)}$.

Ecuația (II.88) arată că atunci când $\nabla\rho^{(0)} \neq 0$, răspunsul neliniar al mediului $\overline{J}^{(2)}(2\omega)$ este mult sporit dacă ω este apropiată de rezonanța plasmei. Ca principiu general, răspunsul neliniar al unui mediu este sporit la rezonanță când câmpul care vine *lovește* rezonant mediul. Este, totuși, de sperat ca să ne aștemptăm la o intensificare a armonicii a doua la rezonanță. Răspunsul armonicii a doua este conținut în $\overline{J}^{(2)}(2\omega)$. La $2\omega \Rightarrow \omega_p$, densitatea de curent va excita câmpul longitudinal la 2ω în mod rezonant.

După cum se observă din relațiile (II.87) și (II.89), densitatea de curent $\overline{J}^{(2)}(2\omega)$ depinde exclusiv de variația spațială a lui $\overline{E}$. De fapt, folosind identități vectoriale, expresia lui $\overline{J}^{(2)}(2\omega)$ din (II.87) sau (II.89), poate fi pusă sub forma[3]:

$$\overline{J}^{(2)}(2\omega) = c\,\nabla \times (\ldots) - i2\omega\nabla \cdot (\ldots) \tag{II.90}$$

Comparând-o cu (II.87) recunoaștem că cei doi termeni din expresia lui $\overline{J}^{(2)}(2\omega)$ reprezintă contribuția dipolului magnetic, respectiv al cvadripolului. Nu există

[3] P. S. Pershan, *Phys. Rev.* **130**, 919 (1963)

indusă polarizație de dipol electric în plasmă. De asemenea, polarizația de cvadripol electric indusă depinde de gradientul câmpului electric și, prin urmare, nu există într-un volum de plasmă uniformă.

Modelul electronului liber este aplicabil la un număr de probleme reale. În primul rând, el poate descrie neliniaritățile datorită plasmei în metale și semiconductoare. Generarea armonicii secunde din suprafețele metalice este ușor observabilă[(4)]. Atunci, cu unele modificări care pot avea loc în distribuția sarcinii nete, neanularea lui ∇p ș.a. pot conduce la neliniarități optice care pot fi descrise cu modelul electronului liber. Au fost observate diferite efecte optice neliniare în plasme gaz. Modelul electronului liber poate fi folosit și pentru a descrie observarea efectelor neliniare într-un cristal în regiunea X[(5)]. Energia de legătură a electronului este mult mai mică decât energia fotonului razelor X ca și prin urmare, electronii în cristal vor răspunde la radiațiile X ca și cum ar fi liberi.

[(4)] N. Bloembergen, R. K. Chang, s. S. Yha, and C. H. Lee, *Phys. Rev*. **174**, 813, (1968)
[(5)] P. E. Eisenberger and S. L. McCall, *Phys. Rev. Lett*. **26**, 684 (1971)