2. PRINCIPII DE BAZĂ

2.1. Noțiuni de bază

Experiența arată că anumite materiale au proprietatea de a prezenta sub acțiunea unui câmp luminos o polarizare care are o dependență neliniară de amplitudinea câmpului, aceasta conducând la așa numitele procese sau fenomene optice neliniare.

Această proprietate a mediilor își are originea fizică în structura microscopică a materialului, adică natura atomilor sau moleculelor care-l constituie, structura cristalină etc. Ca atare, o descriere riguroasă a fenomenelor respective necesită recurgerea la mecanica cuantică. Studiile respective conduc la faptul că extrema diversitate a proprietăților microscopice ale mediilor se traduce printr-o neîncetată înmulțire a fenomenelor optice neliniare. Pentru cei care se ocupă de aplicații mulțumirea este foarte mare, ordinul de mărime al acestor procese variind considerabil de la un material la altul, deoarece numărul efectelor neliniare simple este, de fapt, relativ restrâns. Datorită acestui fapt se asigură explicarea cât de cât exactă a proceselor respective.

Fenomenele optice neliniare sunt explicate prin extensia noțiunii de propagare liniară a câmpului electromagnetic în substanță. Aceasta se bazează pe folosirea ecuațiilor lui Maxwell macroscopice în care polarizația electrică este exprimată cu ajutorul unei dezvoltări în puteri a amplitudinii câmpurilor existente în mediu sau, mai exact, a componentelor polarizației ca produse ale acestor câmpuri. Prin analogie cu modul de descriere a proprietăților liniare ale unui mediu utilizând o singură mărime, *susceptibilitatea liniară*, proprietățile neliniare ale unui mediu sunt caracterizate printr-*un anumit număr de susceptibilități optice neliniare*. Astfel, ținându-se seama de structura mediului și de forma câmpului electric care-l traversează, substanța mediului va putea da naștere la un anumit număr de efecte neliniare. Corespondența existentă între natura proceselor și structura susceptibilităților permite o descriere globală și universală a fenomenelor optice neliniare. La această descriere participă atât mecanica cuantică, cât și electromagnetismul clasic. Mecanica cuantică ne furnizează cadrul adecvat pentru estimarea cantitativă a susceptibilităților și pentru interpretarea fizică a neliniarității, pe când electromagnetismul clasic ne permite să descriem sub o formă macroscopică propagarea și interacția undelor între ele și cu mediul.

Modelul simplu al originii neliniarității optice se bazează pe faptul că un mediu poate fi esențialmente considerat ca un ansamblu de particule încărcate (ioni și electroni), care supuse la un câmp electric se pot deplasa și, anume, particulele cu sarcini pozitive în sensul câmpului electric, iar cele cu sarcini negative în sens opus. După natura mediului, lucrurile se petrec în mod diferit. În cazul unui mediu conductor, electronii se pot deplasa traversând materialul atâta timp cât câmpul electric este aplicat, dând naștere la un curent electric (Anexa a II a). În cazul unui dielectric, care este cel mai mult folosit în optică, particulele încărcate sunt legate puternic unele de altele, legăturile lor prezenând o anumită *elasticitate*. În dielectric, prezența câmpului electric face ca sarcinile electrice să aibă numai o mișcare tranzitorie și să se îndepărteze puțin față de poziția lor inițială. Aceste mici deplasări elementare, ale sarcinilor pozitive într-o parte și ale celor negative în partea opusă, fac ca in substanță să apară momente dipolare electrice induse. Cu alte cuvinte, efectul câmpului electric asupra unui mediu dielectric conduce la inducerea unei polarizații.

O undă laser corespunde, în cele mai frecvente cazuri, la un câmp electromagnetic oscilant cu o frecvență cuprinsă în gama de la $10^{13}\,\mathrm{Hz}$ la $10^{15}\,\mathrm{Hz}$. Sub acțiunea câmpului electric al unei astfel de unde, sarcinile unui dielectric sunt supuse la o mișcare oscilantă de aceeași frecvență, dând naștere la un ansamblu de dipoli oscilanți. Acțiunea câmpului magnetic al undei asupra particulelor încărcate este mult mai slabă, de ordinul lui $\alpha = \dfrac{v}{c} = \dfrac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 \hbar c}$ (α fiind constanta structurii fine) și poate fi neglijată (Anexa I-a). În plus, trebuie să ținem seama de faptul că ionii pozitivi au adesea o masă considerabil superioară masei electronilor și, ca atare, este posibil să se considere că numai electronii, în primă aproximație, sunt animați de o mișcare.

Astfel, în general, răspunsul unui electron la un câmp electric optic corespunde celui al unei particule într-un potențial anarmonic, a cărui extensie spațială nu poate fi infinită. O astfel de descriere se poate face cu ajutorul unui model simplu în care un electron de masă m și de sarcină $-e$ este legat de o “inimă” ionică prin intermediul unui “resort”, dipolii fiind orientați în direcția câmpului electric. Evoluția deplasării, x, de la echilibru a electronului sub influența câmpului electric $E(t)$ este guvernată de o ecuație de tipul:

$$\frac{\mathrm{d}^2 x}{\mathrm{d}t^2} + \Gamma \frac{\mathrm{d}x}{\mathrm{d}t} + \omega_0 x^2 + \left(\zeta^{(2)} x^2 + \zeta^{(3)} x^3 + \ldots\right) = -\frac{e}{m} E(t), \tag{2.1}$$

unde ω_0 este *frecvența de rezonanțăș a electronului* și $\dfrac{\Gamma}{2}$ este *gradul său de amortizare*, care este legat de radiația dipolară. Al doilea membru din ecuația (2.1) reprezintă forța lui Coulomb care se exercită asupra electronului prin câmpul electric, adică, forța care induce oscilația sa.

Dacă neglijăm, în primul rând, termenii $\zeta^{(2)} x^2 + \zeta^{(3)} x^3 + \ldots$ și considerăm răspunsul armonic la un câmp laser monocromatic de forma (Anexa a II a)

$$E(x,t) = E^0(x) \exp[-i\omega t] + \text{c.c.}, \tag{2.2}$$

unde ω este frecvența optică (a câmpului optic) și c.c. reprezintă complex conjugata. Introducând expresia (2.2) în ecuația (2.1) și căutând pentru x soluția forțată la frecvența ω, se obține:

$$x(t) = -\frac{eE^0(x)}{m}\frac{\exp[-i\omega t]}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\Gamma\omega} + \text{c.c.}, \tag{2.3}$$

acest regim forțat fiind atins după o fază tranzitorie de durată Γ^{-1}, care reprezintă răspunsul mediului la o excitație laser. În aproximația de cvasi-rezonanță, $|\omega - \omega_0| << \omega_0$, relația (2.3) devine:

$$x(t) = -\frac{eE^0(x)}{2m\omega_0}\frac{\exp[-i\omega t]}{\Delta + i\dfrac{\Gamma}{2}} + \text{c.c.}, \tag{2.4}$$

unde $\Delta = \omega - \omega_0$ este dezacordul la rezonanță între frecvența laser, ω și frecvența de rezonanță, ω_0. Atunci polarizația electrică indusă în mediu este dată de expresia:

$$P = -Nex \tag{2.5}$$

unde N este densitatea de dipoli pe unitatea de volum. Din ecuațiile (2.4) și (2.5) se observă că *polarizația electrică* este proporțională cu amplitudinea $E^0(x)$ a câmpului electric. Această proprietate se poate explica cu ajutorul susceptibilității lineare:

$$\chi^{(1)} = \chi'^{(1)} + \chi''^{(1)}, \tag{2.6}$$

deoarece

$$P(x,t) = \varepsilon_0\chi^{(1)}E^0(x)\exp[-i\omega t] + \text{c.c.}, \tag{2.7}$$

rezultând

$$\chi'^{(1)} = \frac{-Ne^2}{2\varepsilon_0 m\omega_0}\frac{\Delta}{\Delta^2 + \left(\dfrac{\Gamma}{2}\right)^2} \tag{2.8a}$$

și

$$\chi''^{(1)} = \frac{Ne^2}{2\varepsilon_0 m\omega_0}\frac{\dfrac{\Gamma}{2}}{\Delta^2 + \left(\dfrac{\Gamma}{2}\right)^2}. \tag{2.8b}$$

Dipolii electrici oscilanți la frecvența laser vor radia în mediu un câmp de frecvență ω și, astfel, vor modifica propagarea undei laser. Ținând seama de expresia inducției electrice $D = \varepsilon_0 E + P$, se observă că permitivtatea relativă a mediului este $1 + \chi^{(1)}$, astfel încât indicele de refracție este egal cu partea reală a lui $\left(1 + \chi^{(1)}\right)^{1/2}$. Pierderile în mediu sunt și ele descrise de partea imaginară $\chi''^{(1)}$ a susceptibilității, după cum rezultă din expresia densității de putere medii, $\mathcal{P}_d$, transferată de câmp către dipoli:

$$\mathcal{P}_p = \left\langle E(x,t)\cdot\frac{\partial P(x,t)}{\partial t}\right\rangle = 2\varepsilon_0\omega\chi''^{(1)}\left|E^0(x)\right|^2, \tag{2.9}$$

care este proporțională cu componenta polarizației oscilante în cuadratură cu câmpul laser. După cum rezultă din expresiile (2.8a) și (2.8b), părțile reală și imaginară ale susceptibilității liniare sunt în raportul $-2\frac{\Delta}{\Gamma}$. Aceasta ne arată că departe de orice rezonanță a unei substanțe (mediu), aceasta se comportă ca un mediu pur dispersiv (fără absorbție). Mărimile $\chi'^{(1)}$ și $\chi''^{(1)}$ sunt reprezentate în figura 2.1 în funcție de dezacordul la rezonanță Δ. Alurile dispersivă, $\chi'^{(1)}$, și lorentziană, $\chi''^{(1)}$, sunt caracteristice răspunsului liniar al mediului în vecinătatea rezonanței. Se observă că semilărgimea dispersiei și lorentzienei este egală cu gradul relaxării dipolului.

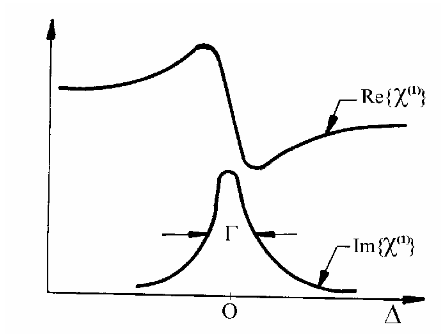

Fig. 2.1.

În fizică, în general, dependența liniară a unei mărimi în funcție de o alta este o aproximație care rămâne valabilă numai în interiorul unui domeniu particular al variației parametrilor. În cazul studiat, amplitudinea mișcării particulelor încărcate în interiorul dielectricului nu poate fi considerată ca liniară în câmp decât atunci când deplasarea particulelor este mică. Pentru deplasări de la echilibru mai importante, forța de revenire devine în mod semnificativ neliniară în x astfel încât să mențină mișcarea electronilor în vecinătatea "inimei" ionice. În modelul considerat, această nelinearitate este considerată ținând seama de termenii anarmonici $\zeta^{(2)}x^2 + \zeta^{(3)}x^3 + \ldots$, unde $\zeta^{(j)}$ sunt constante (v. ecuația (2.1)). Pe figura 2.2 se observă că răspunsul electronilor dă naștere la o polarizație electrică indusă care poate fi considerată ca fiind liniară (într-o bună aproximație), deoarece valoarea câmpului electric este mică. În figura 2.3 avem un răspuns al electronilor care dă naștere la o polarizație electrică indusă neliniară, valoarea câmpului electric fiind mare (depășind limitele corespunzătoare linearității). O analiză spectrală a polarizației electrice induse, corespunzătoare cazului din figura 2.3, arată că în afara componentei principale care oscilează la frecvența laser ω, polarizația electrică a mediului conține și componente corespunzătoare frecvențelor $2\omega, 3\omega, \ldots$, precum și o componentă de frecvență nulă (componentă continuă). Fenomenul respectiv este

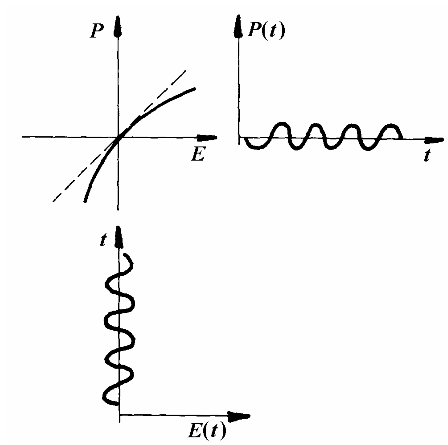

Fig. 2.2.

analog cu efectul de distorsionare a semnalelor de un circuit electronic al cărui răspuns nu este perfect liniar. Ținând seama de faptul că teoria electromagnetismului ne arată că un dipol electric oscilant radiază un câmp la frecvența sa de oscilație, rezultă că și componenta de polarizație electrică oscilând la frecvența 2ω va radia un câmp la dublul frecvenței laserului (procesul neliniar de generare a armonicei a doua) ș.a.m.d.

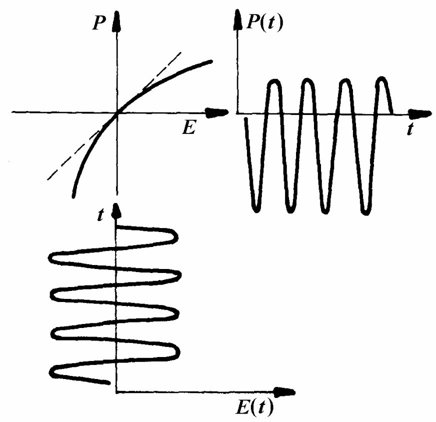

Fig. 2.3.

Rezultă că dacă se ține seama de existența termenilor nearmonici, ecuația de mișcare (2.1) nu mai are o soluție generală. Însă, când termenii respectivi sunt suficienți de mici față de componenta armonică, ecuația (2.1) poate fi rezolvată prin metoda perturbației efectuând o dezvoltare a soluției $x(t)$ în puteri ale amplitudinii câmpului electric. Aceasta conduce la o expresie a polarizației electrice a mediului admițând, de asemenea, o dezvoltare în puteri ale lui E , de tipul[(1)]:

$$P = \varepsilon_0 \left(\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \ldots\right), \qquad (2.10)$$

dacă susceptibilitățile electrice sunt toate reale. În expresia (2.10), $\chi^{(1)}$ reprezintă susceptibilitatea electrică liniară discutată anterior, în timp ce mărimile $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \ldots$ sunt numite susceptibiități neliniare ale mediului de ordinele 2, 3... .

Pentru a se evalua ordinul de mărime al câmpului electric necesar pentru a se manifesta proprietățile neliniare ale atomilor sau moleculelor, vom ține seama de cele discutate anterior și, anume, de faptul că neliniaritatea asociată termenilor anarmonici apare când câmpul laser nu este complet neglijabil față de câmpul intra-atomic, E_a (exemplificat pentru cazul cel mai simplu, în formula (1.16)), care este responsabil de legătura dintre electroni și "inima" ionică. Astfel, expresia (2.10) se poate scrie sub forma:

$$P = \xi^{(1)} \frac{E}{E_a} + \xi^{(2)} \left(\frac{E}{E_a}\right)^2 + \xi^{(3)} \left(\frac{E}{E_a}\right)^3 + \ldots, \qquad (2.11)$$

în care coeficienții $\xi^{(j)}$ sunt toți de același ordin de mărime. Ținând seama de expresia (1.15), se observă că un câmp electric de amplitudine E_a corespunde la o

---

(1) N. Bloemberg, *Nonlinear optics and spectroscopy* (Nobel lecture), Review of Modern Physics, **54**, 685-695, (1982).

În anul 1981, profesorul Nicolas Bloemberg de la Harvard University, Cambridge, MA, U.S.A. și profesorul Arthur Leonard Schawlow de la Stanford University, Stanford, CA, U.S.A., au primit Premiul Nobel în Fizică *pentru contribuția lor la dezvoltarea spectroscopiei laser.*

intensitate laser incidentă $I = \dfrac{c\varepsilon_0}{2} E_a^2 \approx 4 \cdot 10^{20} \dfrac{\mathrm{W}}{\mathrm{m}^2}$. Astfel de intensități se pot obține cu lasere funcționând în impulsuri. Însă, pentru a fi valabilă dezvoltarea în serie considerată, intensitatea radiației laser incidente trebuie să fie de ordinul a $10^{13} \dfrac{\mathrm{W}}{\mathrm{m}^2}$ și chiar mai mică. De fapt, experiența ne arată că nu este necesar să dispunem de intensități laser atât de ridicate pentru a observa cele mai multe fenomene optice neliniare. Una din cauzele care conduc la aceasta, o constituie faptul că atunci când dipolii induși oscilează toți de o manieră coerentă, adică, posedă o anumită relației de fază între ei, câmpurile pe care le radiază în mod individual pot, în anumite cazuri, să interfere în mod constructiv și să conducă la un câmp având o intensitate considerabil mai mare decât cea a aceluiași număr de dipoli care radiază de o manieră incoerentă. În *Optica neliniară*, condiția de a obține o astfel de interferență constructivă poartă numele de *condiție de acord de fază*.

În plus, se constată că intensitatea cerută pentru a observa anumite fenomene neliniare poate fi încă redusă cu mai multe ordine de mărime când una sau mai multe dintre frecvențele laser implicate sunt apropiate de frecvențele de rezonanță ale dipolilor oscilanți. Aici este vorba de *fenomenul de exaltare rezonantă a neliniarităților*. Pe figura 2.1 este în mod clar vizibilă exaltarea răspunsului unui mateial în vecinătatea unei rezonanțe. În Optica neliniară, exaltarea rezonantă este exploatată în două moduri: (1) – prin observarea fenomenelor neliniare la puteri laser mai slabe, crescându-le considerabil câmpul lor de aplicații și eficacitatea lor și (2) – prin faptul că fenomenele optice neliniare rezonante sunt la baza spectroscopiei optice neliniare, care furnizează informații asupra structurii materiei ce sunt inaccesibile spectroscopiei optice liniare convenționale.

Modelul oscilatorului anarmonic are avantajul că sugerează foarte bine înțelegerea nelinearităților optice din punct de vedere fizic. Totuși, acest model își are limitele sale. De exemplu, în cele prezentate am vorbit numai de cazul frecvențelor optice apropiate de domeniul vizibil, considerând că avem drept componentă dominantă a răspunsului mediului mișcarea electronilor. La frecvențe joase (infraroșu îndepărtat și microunde), mișcarea ionilor devine mai importantă (vibrațiile și rotațiile moleculare în fluide, vibrațiile matricelor ionice în solide) și poate juca un rol important în răspunsul mediului.

De fapt, pentru a calcula sub o formă fiabilă susceptibilitățile neliniare este strict necesar să se apeleze la mecanica cuantică, aceasta furnizându-ne cadrul adecvat.

De asemenea, se menționează faptul că în cazul unui mediu neliniar realist, dezvoltările în puteri ale câmpului electric trebuie să țină seama de caracterul vectorial al acestuia (adică, de starea de polarizare a acestuia), de dependența de frecvență și de caracterul tensorial al susceptibilităților.

2.2. Formalismul Opticii neliniare

Formalismul *Opticii neliniare* ne furnizează elementele de bază care vor fi utile pentru explicarea cantitativă a diferitelor procese neliniare studiate.

2.2.1. Ecuațiile lui Maxwell în cazul mediilor neliniare

Se știe că propagarea luminii este guvernată de *ecuațiile lui Maxwell*. Câmpul electromagnetic în spațiu este descris de vectorii câmp electric $(\overline{E})$ și inducție magnetică $(\overline{B})$. Pentru a ține seama de interacția luminii cu materia (mediul în care se propagă) este convenabil să se introducă și vectorii inducție electrică $(\overline{D})$ și câmp magnetic $(\overline{H})$. Acești patru vectori sunt legați, *în medii liniare*, prin *ecuațiile lui Maxwell*:

$$\nabla \times \overline{E} + \frac{\partial \overline{B}}{\partial t} = 0\,; \tag{2.12 a}$$

$$\nabla \times \overline{H} - \frac{\partial \overline{D}}{\partial t} = \overline{J}_l\,; \tag{2.12 b}$$

$$\nabla \vec{D} = \rho_l\,; \tag{2.12 c}$$

$$\nabla \vec{B} = 0\,, \tag{2.12 d}$$

unde ρ_l (densitatea sarcinilor electrice libere) și $\overline{J}_l$ (densitatea de curent electric) joacă rolul de surse ale câmpului electromagnetic.

La ecuațiile lui Maxwell (2.12) se adaugă relațiile constitutive care caracterizează proprietățile electromagnetice ale mediului prin intermediul permitivității (constantei dielectrice) ε și a permeabilității μ:

$$\overline{D} = \varepsilon\,\overline{E} = \varepsilon_0\overline{E} + \overline{P}\,; \tag{2.13}$$

$$\overline{B} = \mu\,\overline{H} = \mu_0\left(\overline{H} + \overline{M}\right), \tag{2.14}$$

unde $\overline{P}$ este *polarizarea electrică* și $\overline{M}$ – *magnetizația*; iar, ε_0 și μ_0 sunt *constanta electrică*[(2)], respectiv, *constanta magnetică*[(2)].

În *Optică*, cel mai adesea, ne interesează materialele nemagnetice pentru care $\mu = \mu_0$. Atunci, permitivitatea (constanta dielectrică) rămâne singura mărime care determină proprietățile optice ale materialelor. Astfel, materialele (sau fenomenele de studiat) se pot clasifica în: *anizotrope* ($\overline{\overline{\varepsilon}}$ este un tensor de rangul 2) – *izotrope* (ε este un scalar); *neomogene* ($\varepsilon = \varepsilon(\overline{r})$) – *omogene* ($\varepsilon$ nu depinde de $\overline{r}$); *absorbante* (ε este complex) – *neabsorbante* (ε este real); *dispersive*

[(2)] Începând cu anul 1998, ε_0 poartă numele de *constanta electrică* (înainte se numea *permitivitatea vidului*) și μ_0 poartă numele de *constanta magnetică* (înainte se numea *permeabilitatea vidului*). Pentru o documentare completă se recomandă articolul: Peter J. Mohr and Barry N. Taylor, *CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 1988*, Review of Modern Physics, **72**(2), 351-495, April 2000.

(ε depinde de frecvență, $\varepsilon = \varepsilon(\omega)$ [3]) – *nedispersive* (ε nu depinde de ω); neliniare (ε depinde de câmpurile $\overline{E}$ sau $\overline{H}$) – *liniare* (ε nu depinde de câmpuri).

Adesea, în paralel cu *permitivitatea* se introduce *susceptibilitatea electrică* χ:

$$\overline{P} = \varepsilon_0 \chi \overline{E} . \tag{2.15}$$

Ecuațiile (2.13) și (2.15) conduc la relația:

$$\varepsilon = \varepsilon_0 (1 + \chi). \tag{2.16}$$

În cazul mediilor liniare conductoare, la ecuațiile (2.12), (2.13) și (2.14) se mai adaugă relația:

$$\overline{J} = \sigma \overline{E} , \tag{2.17}$$

unde σ este *conductivitatea electrică*, sau

$$\overline{J} = \sigma\left(\overline{E} + \overline{E}_i\right), \tag{2.18}$$

când $\overline{E}_i \neq \overline{0}$, $\overline{E}_i$ fiind *intensitatea câmpului electric imprimat*.

Apariția laserilor capabili să producă fascicule de lumină suficient de intense a impus să se țină seama de dependența caracteristicilor optice ale mediului de intensitatea câmpului undei luminoase care se propagă în mediu. Aceasta conduce la faptul că în locul *relațiilor constitutive liniare* (2.13) și (2.14) vom avea *relațiilor constitutive neliniare.* Neliniaritatea *ecuațiilor constitutive* antrenează, în mod natural, nelinearitatea oricărui sistem de ecuații care descrie propagarea undelor luminoase în mediu. Această nelinearitate conduce la abandonarea principiului de suprapunere pentru undele luminoase. Acum, undele luminoase care se propagă în mediu interacționează unele cu altele, ceea ce se manifestă în proprietățile opticii neliniare de *împrăștiere*, *refracție* și *absorbție neliniare*.

Când câmpurile undelor luminoase incidente sunt suficient de puternice, deplasările electronilor sunt mari, aceștia ajungând în regiunea anarmonică a potențialului.

Polarizația care ia naștere în acest regim de lucru conține componente care depind de puterea a doua și puteri mai înalte ale câmpurilor undelor incidente. Câmpurile secundare radiate de polarizația indusă pot acum conține frecvențe care sunt diferite de cele ale câmpurilor incidente și dau naștere la efecte neliniare.

Toate fenomenele electromagnetice sunt guvernate de ecuațiile lui Maxwell pentru câmpurile electric $\overline{E}(\overline{r},t)$ și inducția magnetică $\overline{B}(\overline{r},t)$:

$$\nabla \times \overline{E} + \frac{\partial \overline{B}}{\partial t} = 0 ; \tag{2.19a}$$

$$\nabla \times \left(\frac{\overline{B}}{\mu_0}\right) - \varepsilon_0 \frac{\partial \overline{E}}{\partial t} = \overline{J} ; \tag{2.19b}$$

$$\varepsilon_0 \nabla \overline{E} = \rho ; \tag{2.19c}$$

---

[3] Afirmând aceasta se înțelege că se poate descompune câmpul electromagnetic în componente spectrale ai căror vectori de câmp se scriu: $\overline{E}(\omega)$, $\overline{D}(\omega)$ etc. În cazul unui mediu dispersiv în care $\varepsilon = \varepsilon(\omega)$, ecuația (2.13) poate fi înțeleasă ca o relație între aceste componente spectrale: $\overline{D}(\omega) = \varepsilon(\omega)\overline{E}(\omega)$.

$$\nabla \overline{B} = 0, \tag{2.19d}$$

unde $\overline{J}(\overline{r}, t)$ și $\rho(\overline{r}, t)$ sunt *densitățile de curent*, și, respectiv *de sarcină*, care sunt legate prin *legea* (sau *teorema generală*) de conservare a sarcinii electrice: $\nabla \overline{J} + \dfrac{\partial \rho}{\partial t} = 0$.

Câmpurile sursă $\overline{J}(\overline{r}, t)$ și $\rho(\overline{r}, t)$ se pot dezvolta în serii de multipoli[4, 5]:

$$\overline{J} = \overline{J}_l + \frac{\partial \overline{P}}{\partial t} + \nabla \times \overline{M} + \frac{\partial}{\partial t}\left(\nabla \overline{\overline{Q}}\right) + \ldots \tag{2.20}$$

și, respectiv

$$\rho = \rho_l - \nabla \overline{P} - \nabla\left(\nabla \overline{\overline{Q}}\right) + \ldots, \tag{2.21}$$

relații în care $\overline{P}$ este *polarizație electrică*, $\overline{M}$ - *magnetizația*, $\overline{Q}$ - *polarizația de cvadripol electric*[6] ș.a.m.d. Cu toate acestea, după cum se accentuează de către Landau și Lifschitz[7], nu este, în realitate, semnificativ ca în regiunea optică să se exprime $\overline{J}$ și ρ în funcție de multipoli, deoarece definițiile uzuale ale multipolilor sunt nefizice. În multe cazuri, de exemplu, este convenabil să se folosească $\overline{J}$ și ρ direct ca termeni sursă în ecuațiile lui Maxwell sau să se folosească o polarizație electrică generalizată $\overline{\mathbf{P}}$ definită prin

$$\overline{J} = \overline{J}_l + \frac{\partial \overline{\mathbf{P}}}{\partial t}, \tag{2.22}$$

unde $\overline{J}_l$ este *densitatea de curent electric*. În multe cazuri, dipolul magnetic și *multipolii* de ordin mai înalt pot fi neglijați. Atunci, $\overline{\mathbf{P}}$ generalizat se reduce la polarizația de dipol electric $\overline{\mathbf{P}}$. Diferența dintre $\overline{\mathbf{P}}$ și $\overline{\mathrm{P}}$ este aceea că $\overline{\mathbf{P}}$ este o *funcție nelocală de câmp*, iar $\overline{\mathrm{P}}$ este o *funcție locală de câmp*.

În cele ce urmează se va presupune *aproximația de dipol electric*:

$$\overline{\mathbf{P}} = \overline{\mathrm{P}}, \tag{2.23}$$

în cazul în care nu se specifică altfel.

Ținând seama de expresia (2.22) și considerând că $\rho_l = 0$, ecuațiile lui Maxwell apar sub forma:

$$\nabla \times \overline{E} + \frac{\partial \overline{B}}{\partial t} = 0; \tag{2.24a}$$

---

(4) J. A. Jackson, *Classical electrodynamics*, Mc Graw-Hill, New York, (1975), p. 739

(5) W. K. H. Panofsky and P. Phillips, *Classical electricity and magnetism*, Adison-Wesley, Reading, Mass., (1962), p. 131

(6) H. C. Dehmelt și H. Kruger, *Zeits. f. Phys.*, **130**, 371 și 385, (1951)
H. C. Dehmelt, *Zeits. f. Phys.*, **130**, 480, (1951)
J. M. Kellogg, I. I. Rabi, N. F. Ramsay Jr. and J. R. Zacharias, *Phys. Rev.*, **55**, 318L, (1939); **57**, 677, (1940)

(7) L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Electrodynamics in continuous media*, Pergamon Press, New York, (1960), p. 252

$$\nabla\times\left(\frac{\overline{B}}{\mu_0}\right)-\frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon_0\overline{E}\right)=\overline{J}_l+\frac{\partial\overline{\mathbf{P}}}{\partial t}\,; \tag{2.24b}$$

$$\nabla\left(\varepsilon_0\nabla\overline{E}+\overline{\mathbf{P}}\right)=0\,; \tag{2.24c}$$

$$\nabla\overline{B}=0\,, \tag{2.24d}$$

unde $\overline{\mathbf{P}}$ este acum termenul sursă variabil în timp. În general, $\overline{\mathbf{P}}$ este o funcție de $\overline{E}$ care *descrie complet răspunsul mediului la câmp* și este adesea cunoscută ca *ecuație constitutivă*.

Dacă s-ar putea putea scrie exact relațiile constitutive și s-ar găsi soluția pentru setul rezultat de ecuații Maxwell, cu condițiile la limită corespunzătoare, atunci toate fenomenele optice ar putea fi prezise și ușor de înțeles. Din nefericire, acest lucru este rareori posibil. Pentru a se construi soluția matematică a ecuațiilor care se pot obține, se fac aproximații rezonabile din punct de vedere fizic.

2.2.2. Ecuația undelor neliniară

Ecuația undelor liniară se obține plecând de la ecuațiile (2.12), în care se presupune că $\overline{J}_l=\overline{0}$ și $\rho_l=0$ și de la relațiile constitutive (2.13) și (2.14), obținându-se:

$$\Delta\overline{E}-\frac{1}{\mathrm{v}^2}\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2}=0\,, \tag{2.25}$$

unde

$$\frac{1}{\mathrm{v}^2}=\varepsilon\mu\,. \tag{2.26}$$

Tratarea clasică a interacțiilor undelor în medii neliniare în optică pornește de la ecuațiile lui Maxwell. Teoria clasică este o teorie fenomenologică, aceasta presupunând existența fenomenelor neliniare rezultată din experiență și construind o descriere teoretică cu ajutorul unor presupuneri rezonabile. Nu se face nici o presupunere asupra posibilităților microscopice, adică, asupra posibilităților de la nivel atomic.

Se presupune că mediul optic are următoarele proprietăți: (1) nu conține sarcini libere $\left(\rho_l=0\right)$; (2) nu poate fi magnetizat $\left(\overline{M}=\overline{0}\right)$; și (3) este dielectric perfect $\left(\sigma=0\right)$.

Din presupunerile făcute rezultă că inducția $\overline{B}_m$ în substanță este identică inducției $\overline{B}$ în vid. Astfel, ecuațiile lui Maxwell sunt:

$$\nabla\times\overline{E}+\frac{\partial\overline{B}_m}{\partial t}=0\,; \tag{2.27a}$$

$$\nabla\times\left(\frac{\overline{B}}{\mu_0}\right)-\varepsilon_0\frac{\partial\overline{E}_m}{\partial t}=\overline{J}\,; \tag{2.27b}$$

$$\nabla\overline{E}_m=0\,; \tag{2.27c}$$

$$\nabla\overline{B}_m=0\,, \tag{2.27d}$$

iar ecuațiile constitutive au forma:

$$\overline{J}_l = 0 \tag{2.28}$$

$$\overline{B}_m = \overline{B} \tag{2.29}$$

$$\overline{E}_m = \overline{E} + \frac{1}{\varepsilon_0}\overline{\mathrm{P}}, \tag{2.30}$$

$\overline{E}_m$ fiind câmpul electric în substanță și $\overline{B}_m$ - inducția magnetică în substanță.

Polarizația electrică $\overline{\mathrm{P}}$ a mediului se despică într-o parte care depinde liniar de $\overline{E}$ și o parte care depinde neliniar de $\overline{E}$, adică:

$$\overline{\mathrm{P}} = \overline{\mathrm{P}}_L + \overline{\mathrm{P}}_{NL} = \varepsilon_0\chi_L\overline{E} + \overline{\mathrm{P}}_{NL} \tag{2.31}$$

pentru *medii izotrope*, respectiv

$$\overline{\mathrm{P}} = \varepsilon_0\underline{\overline{\overline{\chi_L}}}\,\overline{E} + \overline{\mathrm{P}}_{NL} \tag{2.32}$$

în *medii anizotrope*.

Se presupune, în continuare, că suntem în cazul mediilor izotrope și, de asemenea, că $\overline{\mathrm{P}}_L$ și $\overline{\mathrm{P}}_{NL}$ sunt paralele la câmpul intern. Acum, introducând relațiile constitutive (2.30), (2.29) și (2.28) în ecuacuațiile lui Maxwell (2.27), ținând seama de formula (2.31), se obțin următoarele ecuații pentru câmpul electromagnetic:

$$\nabla\times\overline{E} + \frac{\partial\overline{B}}{\partial t} = 0\,; \tag{2.33a}$$

$$\nabla\times\left(\frac{\overline{B}}{\mu_0}\right) - \varepsilon\frac{\partial\overline{E}}{\partial t} = \frac{\partial\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t}\,; \tag{2.33b}$$

$$\nabla\left(\overline{E} + \frac{1}{\varepsilon_0}\overline{\mathrm{P}}\right) = 0\,; \tag{2.33c}$$

$$\nabla\overline{B} = 0, \tag{2.33d}$$

unde s-a introdus permitivitatea (2.16)

$$\varepsilon = \varepsilon_0(1+\chi_L). \tag{2.16 bis}$$

Aplicând rotorul ecuației (2.33a), se obține:

$$\nabla\times\nabla\times\overline{E} + \frac{\partial}{\partial t}\nabla\times\overline{B} = 0,$$

relație care, ținând seama de ecuație (2.33b) devine:

$$\nabla\cdot\nabla\overline{E} - \Delta\overline{E} = -\mu_0\frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon\frac{\partial\overline{E}}{\partial t} + \frac{\partial\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t}\right)$$

sau

$$\nabla\times\nabla\times\overline{E} + \mu_0\varepsilon\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2} = -\mu_0\frac{\partial^2\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2} \tag{2.34}$$

pentru un *mediul izotrop*.

Din relația (2.33c), ținând seama de formula (2.31), rezultă:

$$\varepsilon_r\nabla\overline{E} + \frac{1}{\varepsilon_0}\nabla\overline{\mathrm{P}}_{NL} = 0, \tag{2.35}$$

unde $\varepsilon_r = 1+\chi_L$.

Dacă $\nabla\overline{E} = -\frac{1}{\varepsilon}\nabla\overline{\mathrm{P}}_{NL} = 0$, ecuația (2.34) ia forma

$$\Delta\overline{E} - \mu_0\varepsilon\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2}. \tag{2.36}$$

Deoarece

$$\mu_0\varepsilon = \mu_0\varepsilon_0\varepsilon_r = \frac{n^2}{c^2} = \frac{1}{\mathrm{v}^2}, \tag{2.37}$$

în loc de (2.36) putem scrie

$$\Delta\overline{E} - \frac{1}{\mathrm{v}^2}\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2}, \tag{2.38}$$

aceasta fiind *ecuația undelor neliniară* sau *ecuația undelor într-un mediu izotrop neliniar*.

În cazul unui *mediu anizotrop*, avem:

$$\nabla\times\nabla\times\overline{E} + \mu_0\overline{\overline{\varepsilon}}\cdot\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2} = -\frac{\partial^2\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2}. \tag{2.39}$$

Ecuația (2.39) nu poate nu poate fi simplificată mai mult, deoarece atunci când $\nabla\overline{E}_m = 0$, în general, $\nabla\overline{E} \neq 0$. Aceasta înseamnă că vectorul $\overline{E}$ nu mai este perpendicular pe $\overline{k}$. Vectorul $\overline{E}_m$ dat de expresia (2.30) este perpendicular pe $\overline{k}$.

Dacă, în general:

$$\nabla\overline{E} = -\frac{1}{\varepsilon}\nabla\overline{\mathrm{P}}_{NL} \neq 0,$$

atunci

$$\nabla\times\nabla\times\overline{E} = \nabla\cdot\nabla\overline{E} - \Delta\overline{E} = -\frac{1}{\varepsilon}\nabla\cdot\nabla\overline{\mathrm{P}}_{NL} - \Delta\overline{E},$$

și ecuația (2.34) devine:

$$\Delta\overline{E} - \mu_0\varepsilon\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2} - \frac{1}{\varepsilon}\nabla\cdot\nabla\overline{\mathrm{P}}_{NL} \tag{2.40}$$

pentru *medii izotrope*.

Pentru *medii anizotrope*, ecuația (2.33c) conduce la

$$\overline{\overline{\varepsilon}}_r\nabla\overline{E} + \frac{1}{\varepsilon_0}\nabla\overline{\mathrm{P}}_{NL} = 0,$$

care, împreună cu expresia (2.39), în cazul general, ne dă:

$$\Delta\overline{E} - \mu_0\overline{\overline{\varepsilon}}\cdot\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2} - \frac{1}{\varepsilon}\nabla\cdot\nabla\overline{\mathrm{P}}_{NL}. \tag{2.41}$$

În continuare se va considera că avem un mediu izotrop în care $\overline{E}\perp\overline{k}$ (cazurile cele mai frecvente) și, astfel, se va folosi *ecuația undelor neliniară* (2.38).

Comparând ecuația undelor într-un mediu izotrop neliniar (2.38) cu ecuația undelor într-un mediu izotrop liniar (2.25), se observă că (2.38) poate fi considerată ca o ecuație de undă în care termenul $\mu_0\frac{\partial^2\overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2}$ acționează ca o sursă care radiază într-un mediu neliniar de indice de refracție n. Deoarece $\overline{\mathrm{P}}_{NL}$ și, prin urmare, sursa $\mu_0 \dfrac{\partial^2 \overline{\mathrm{P}}_{NL}}{\partial t^2}$ este o funcție neliniară de $\overline{E}$, ecuația (2.38) este o ecuație cu derivate parțiale neliniară în $\overline{E}$. Aceasta este ecuația de bază care fundamentează teoria opticii neliniare.

Există două căi apropiate pentru a rezolva ecuația de undă neliniară. Prima este o cale iterativă cunoscută sub numele de *aproximația Born*. Această metodă este adecvată când intensitatea luminii este suficient de mică astfel încât nelinearitatea este mică. În această aproximație, lumina care se propagă prin mediul neliniar este privită ca un proces de împrăștiere în care câmpul incident este împrăștiat de mediu.

Lumina împrăștiată este determinată din lumina incidentă în două trepte:
(1) Câmpul incident (împrăștiat) E_0 este folosit pentru a determina polarizația neliniară, P_{NL}, din care este determinată sursa de radiație:

$$S(E_0) = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathrm{P}_{NL}}{\partial t^2}\,; \tag{2.42}$$

(2) Câmpul radiat (împrăștiat) E_1 este determinat din sursa de radiație prin adăugarea undelor sferice asociate cu diferitele surse punctuale (difracția luminii).

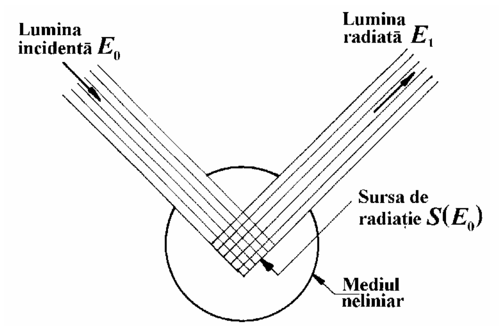

Fig. 2.4

În multe cazuri cantitatea de lumină împrăștiată este foarte mică, astfel încât considerarea luminii incidente este într-adevăr corespunzătoare primei aproximații Born. În acest caz, se admite un câmp inițial E_0 care conține una sau mai multe unde monocromatice de diferite frecvențe. Polarizația electrică neliniară P_{NL} este determinată de o expresie de forma (2.10) și funcția sursă $S(E_0)$ este evaluată folosind expresia (2.42). Deoarece $S(E_0)$ este o funcție neliniară, sunt create noi frecvențe. Sursa $S(E_0)$, prin urmare, emite un câmp optic E_1 cu frecvențe care nu sunt prezente în unda originară E_0. Acestea conduc la numeroase fenomene interesante care au fost utilizate pentru a construi aparate optice neliniare utile. Aproximația Born este ilustrată în figura 2.4. Se presupune că un câmp optic E_0 este incident pe un mediu neliniar confinat într-un volum oarecare (figura 2.4) și creează o sursă de radiație $S(E_0)$. Aceasta radiază un câmp optic E_1. Sursa de radiație corespunzătoare a lui E_1 va fi $S(E_1)$, care, la rândul său, radiază un câmp E_2 ş.a.m.d. Acest proces sugerează o soluție iterativă, prima treaptă a acestuia fiind cunoscută ca *prima aproximație Born*. A doua aproximație Born dezvoltă procesul printr-o iterație adițională etc. De fapt, procesul poate fi ilustrat prin figura 2.5. Sursa de radiație $S(E)$ din ecuația:

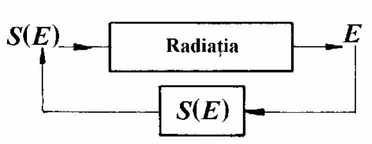

Fig. 2.5

$$\Delta E - \frac{1}{v^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -S(E)$$

este o funcție de câmpul E care, el însuși radiază.

A doua metodă de rezolvare a ecuației de undă neliniară este dată de *teoria undei cuplate*. În această teorie, *ecuația undei neliniară* este folosită pentru a stabili *ecuații cu derivate parțiale cuplate liniar*, acestea guvernând undele care interacționează. Această metodă constituie baza studiului cel mai avansat asupra interacțiilor undelor într-un mediu neliniar.

2.2.3. Energia câmpului electromagnetic. Vectorul lui Poynting

Presupunem că ne aflăm în cazul *mediilor liniare*. Schimbarea energiei electromagnetice înmagazinată într-un anumit volum $\mathcal{V}$ trebuie să fie egală cu fluxul de energie care intră în volumul $\mathcal{V}$ micșorat de lucrul pe care câmpul îl exercită asupra particulelor încărcate în volumul $\mathcal{V}$. O sarcină punctuală este supusă la forța lui Lorentz $q(\overline{E} + \overline{v} \times \overline{B})$, lucrul efectuat de câmpuri pe unitatea de timp fiind $q\overline{v}(\overline{E} + \overline{v} \times \overline{B}) = q\overline{v}\overline{E}$. În cazul unei distribuții continue a sarcinilor și curenților, lucrul câmpului pe unitatea de timp se scrie: $\overline{J}\,\overline{E}$ (energia disipată de căldura Joule).

Amplificând relația (2.12b) cu $\overline{E}$ și relația (2.12a) cu $\overline{H}$ și scăzând din primul rezultat pe al doilea, după ce ținem seama de identitatea

$$\nabla(\overline{E} \times \overline{H}) = \overline{H}(\nabla \times \overline{E}) - \overline{E}(\nabla \times \overline{H}),$$

obținem legea de conservare a energiei electromagnetice

$$\frac{\partial w}{\partial t} + \nabla \overline{S}_p = -\overline{J}\,\overline{E}, \tag{2.43}$$

unde

$$\frac{\partial w}{\partial t} = \overline{E}\,\frac{\partial \overline{D}}{\partial t} + \overline{H}\,\frac{\partial \overline{B}}{\partial t} \tag{2.44}$$

este *variația în timp a densității energiei electromagnetice* și

$$\overline{S}_p = \overline{E} \times \overline{H}$$

este *vectorul lui Poynting*, interpretat ca fluxul energiei electromagnetice pe unitatea de timp. Pentru un *mediu linier și nedisipativ*, relația (2.44) se integrează ușor obținând densitatea de energie electromagnetică:

$$w = \frac{1}{2}(\overline{E}\,\overline{D} + \overline{H}\,\overline{B}). \tag{2.45}$$

În cazul *mediilor neliniare*, înmulțind relația (2.24b) cu $\overline{E}$ și ecuația (2.24a) cu $\dfrac{\overline{B}}{\mu_0}$ și scăzând din primul rezultat pe al doilea, se obține

$$\nabla\left(\overline{E}\times\frac{\overline{B}}{\mu_0}\right)=-\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{1}{2}\varepsilon_0\overline{E}^2+\frac{1}{2\mu_0}\overline{B}^2\right)-\overline{J}\,\overline{E}-\overline{E}\,\frac{\partial\overline{\mathbf{P}}}{\partial t} \tag{2.46}$$

se observă că avem:

$$\nabla\cdot\overline{S}_p+\frac{\partial w}{\partial t}=-\overline{J}\,\overline{E}\,,$$

expresie asemănătoare cu (2.43), dacă

$$\frac{\partial w(\overline{r},t)}{\partial t}=\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{1}{2}\varepsilon_0\overline{E}^2+\frac{1}{2\mu_0}\overline{B}^2\right)+\overline{E}\,\frac{\partial\overline{\mathbf{P}}}{\partial t}\,, \tag{2.47}$$

unde $\overline{\mathbf{P}}$ este dată de o expresie de forma (2.10), care va fi dezvoltată ulterior.

2.2.4. Susceptibilități neliniare

A. Definiția formală a susceptibilităților neliniare

Susceptibilitățile joacă un rol cheie în Optica neliniară deoarece ele caracterizează complet modul în care polarizația electrică a mediului depinde de câmpul electric la care acesta este supus și care conțin toate procesele neliniare susceptibile de a se manifesta în mediul respectiv. Urmează să definim susceptibilitățile respective într-un cadru general față de cel considerat până acum. Se consideră un mediu neliniar care interacționează cu un câmp electric $\overline{E}$, care rezultă din suma discretă a undelor plane monocromatice $\overline{E}_n$ de vectori de undă $\overline{k}_n$ și de frecvențe ω_n:

$$\overline{E}(\overline{r},t)=\sum_{n>0}\overline{E}_n(\overline{r},t) \tag{2.48}$$

și vom distinge componentele de frecvență pozitivă și negativă ale undelor $\overline{E}_n$

$$\overline{E}_n(\overline{r},t)=\overline{E}_n^{+}(\overline{r},t)+\overline{E}_n^{-}(\overline{r},t) \tag{2.49}$$

cu

$$\overline{E}_n^{+}(\overline{r},t)=\sum_{j=x,y,z}E_{n,j}^{0}\overline{u}_j\,\exp\left[-i\left(\omega_n t-\overline{k}_n\overline{r}\right)\right]=\left(\overline{E}_n^{-}(\overline{r},t)\right)^{*}, \tag{2.50}$$

unde $\overline{u}_j$ este vectorul unitar marcând direcția de spațiu j, $(\;)^{*}$ este complex conjugata lui $(\;)$, $E_{n,j}^{0}$ este o mărime complexă al cărei modul este egal cu semiamplitudinea componentei de polarizare $\overline{u}_j$ a câmpului electric $\overline{E}_n$ [8].

---

[8] În cele ce urmează vom nota mărimile care variază rapid temporal (la frecvența optică) și/sau spațial (variația la scara lungimilor de undă din optică) prin $\overline{E}(\overline{r},t)$, de exemplu și funcțiile anvelope asociate, care variază mult mai lent prin $\overline{E}^{0}(\overline{r},t)$, de exemplu.