$\overline{E}_n$ fiind o mărime reală, componentele de frecvență pozitivă și negativă sunt complex conjugate, una rezultând din cealaltă. Prin urmare, se va utiliza de asemenea o altă notație pentru amplitudinea $E_{n,j}^0$ și conjugata sa:

$$E_{n,j}^0 = E_j^0(\omega_n); \quad E_{n,j}^{0*} = E_j^0(-\omega_n), \tag{2.51}$$

care este o notație comodă, cu toate că frecvența ω_n ar fi un parametru ci nu un argument care reflectă o veritabilă dependență funcțională. Aceasta ne va permite să rescriem relația (2.48) sub forma compactă:

$$\overline{E}(\overline{r},t) = \sum_n \sum_{j=x,y,z} E_j^0(\omega_n)\overline{u}_j \exp\left[-i\left(\omega_n t - \overline{k}_n \overline{r}\right)\right] \tag{2.52}$$

unde suma se face asupra valorilor pozitive și negative ale lui n, cu convenția

$$\omega_{-n} = -\omega_n; \quad \overline{k}_{-n} = -\overline{k}_n. \tag{2.53}$$

Un material neliniar se manifestă prin faptul că prezintă o polarizație electrică, care este o funcție neliniară de câmpul electric total. Această *polarizație electrică* este presupusă *locală*, adică *are o valoare într-un punct al spațiului care depinde numai de valoarea câmpului în acel punct*. Se presupune că polarizația electrică neliniară admite o dezvoltare într-o serie de puteri după componentele câmpului electric. În condițiile amintite, polarizația electrică a mediului apare ca o sumă de componente Fourier spațiale și temporale, combinații liniare ale componentelor Fourier de câmp electric, pe care o reperăm în mod colectiv printr-un indice r care ia, de asemenea, valori pozitive și negative:

$$\overline{\mathbf{P}}(\overline{r},t) = \sum_r \sum_{j=x,y,z} \mathrm{P}_j^0(\omega_r)\overline{u}_j \exp\left[-i\left(\omega_r t - \overline{K}_r \overline{r}\right)\right]. \tag{2.54}$$

Este de remarcat că avem vectorul $\overline{K}_r$ și nu $\overline{k}_r$, acest vector caracterizând dependența spațială a componentelor polarizației. S-a făcut această alegere, deoarece $\overline{K}_r$ nu este *apriori* legat de frecvența ω_r printr-o relație de dispersie de tipul celei dintre $\overline{k}_n$ și ω_n.

Neliniaritățile de ordinul p ale materialului (mediului) sunt caracterizate prin termenii $\mathrm{P}_j^0(\omega_r)$ din această sumă și implică un produs de p componente ale câmpului electric. De asemenea, termenii $\mathrm{P}_j^0(\omega_r)$ se notează prin $\mathrm{P}_j^{0(p)}(\omega_r)$. Atunci, relația dintre polarizația neliniară $\mathrm{P}_j^{0(p)}(\omega_r)$ și acele p componente ale câmpului electric, se exprimă cu ajutorul *tensorului de susceptibilitate neliniar de ordinul* p, $\chi^{(p)}$, prin:

$$\mathrm{P}_{\mathrm{j}}^{0(\mathrm{p})}(\omega_r) = \varepsilon_0 \sum_{n_1,\ldots,n_p} \sum_{j_1,\ldots,j_p} \chi_{j,j_1,\ldots,j_p}^{(p)}\left(\omega_r;\omega_{n_1},\ldots,\omega_{n_p}\right) E_{j_1}^0\left(\omega_{n_1}\right)\ldots E_{j_p}^0\left(\omega_{n_p}\right), \tag{2.55}$$

unde suma este restrânsă la indicii n_k care verifică următoarele două relații

$$\omega_r = \sum_{k=1}^{p} \omega_{n_k} \tag{2.56}$$

și $$\overline{K}_r = \sum_{k=1}^{p} \overline{k}_{n_k} . \qquad (2.57)$$

Din relația (2.56) rezultă că *polarizația neliniară conține componente de frecvență care sunt absente în câmpul electric incident*. Deci, câmpurile electrice radiate de dipolii induși în mediu (material) pot să conducă la generarea de noi unde. Expresia (2.57) reflectă faptul că *o componentă a polarizației de ordinul* r *nu oscilează în orice material (mediu) cu aceeași fază*. Produsul câmpurilor laser care induc polarizația reflectă variația spațială a acestei faze. Deci, este natural ca ea să fie descrisă de vectorul de undă $\overline{K}_r$ egal cu suma vectorilor de undă ai laserilor implicați în expresia (2.56).

B. Proprietățile susceptibilităților neliniare

Cunoașterea proprietăților de simetrie ale susceptibilităților neliniare este utilă deoarece, adesea, este posibil să se reducă în mod considerabil numărul de termeni de care depind. În cele ce urmează enumerăm proprietățile respective.

a. Susceptibilitățile neliniare sunt mărimi reale, relațiile (2.51) și (2.55) conducând la

$$\chi^{(p)}\left(-\omega_r ;-\omega_{n_1},...,-\omega_{n_p}\right)=\chi^{(p)}\left(\omega_r ;\omega_{n_1},...,\omega_{n_p}\right). \qquad (2.58)$$

Această proprietate permite să se elimine jumătate din termenii expresiei (2.55).

b. Simetria intrinsecă de permutare. Indicii de sumare n_k și j_k care figurează în ecuația (2.55) fiind identici muți ecuația (2.55) rămâne neschimbată când are loc orice permutare de tipul:

$$\begin{aligned} &n_k \leftrightarrow n_l ;\\ &j_k \leftrightarrow j_l . \end{aligned} \qquad (2.59)$$

Ca atare, este util de a pune prin convenție:

$$\chi^{(p)}_{j,...,j_l...j_m...}\left(\omega_r ;\omega_{n_k},...,\omega_{n_l},...\right)=\chi^{(p)}_{j,...j_m...j_l...}\left(\omega_r ;\omega_{n_l},...,\omega_{n_k},...\right) \qquad (2.60)$$

De fapt, relația (2.60) rezultă din alegerea definiției susceptibilităților și nu dintr-o proprietate fundamentală.

c. Simetria de inversie. Mediile (materiale) numite *centro-simetrice posedă simetrie de inversie* când constituenții elementari, responsabili de răspunsul neliniar, sunt în mod global sau individual invarianți prin paritate (adică, la schimbarea direcțiilor spațiului $\overline{r} \rightarrow -\overline{r}$). În cazul unor astfel de materiale *polarizația* trebuie ca în mod necesar *să-și schimbe semnul* când *câmpul electric își schimbă semnul*. Aceasta rezultă din faptul că două direcții opuse sunt în mod riguros echivalente. Aceasta implică inexistența puterilor pare ale câmpului electric în dezvoltarea (2.55) a polarizării. În concluzie, *într-un mediu (material) care possedă simetrie de inversie susceptibilitățile neliniare de ordin par sunt toate nule*. Ca atare, neliniaritatea nenulă de ordinul cel mai jos este cea de ordinul trei. Din această simetrie este de remarcat că, în general, orice simetrie spațială a mediului (materialului) neliniar se reflectă la nivelul susceptibilităților.

d. În cazul unui mediu neliniar fără pierderi (mediu pur dispersiv) la proprietățile amintite anterior se mai adaugă două: 1°. *Toate susceptibilitățile neliniare sunt pur reale, realitatea susceptibilităților exprimându-se prin*:

$$\chi^{(p)}_{j,\dots,j_l\dots}\left(\omega_r;\omega_{n_1},\dots,\omega_{n_l},\dots,\omega_{n_p}\right)=\chi^{(p)}_{j,\dots j_l\dots}\left(\omega_{n_j};-\omega_{n_1},\dots,-\omega_r,\dots,-\omega_{n_p}\right) \quad (2.61)$$

2°. *Există o simetrie completă de permutare care exprimă că toate frecvențele susceptibilităților pot fi permutate din moment ce se permută în același mod indicii asociați coordonatelor carteziene.* Această proprietate adaugă la simetria intrinsecă de permutare (2.60), relațiile de tipul:

$$\chi^{(p)}_{j,\dots,j_l\dots}\left(\omega_r;\omega_{n_1},\dots,\omega_{n_l},\dots,\omega_{n_p}\right)=\chi^{(p)}_{j_l,\dots j,\dots}\left(-\omega_{n_j};\omega_{n_1},\dots,-\omega_r,\dots,\omega_{n_p}\right) \quad (2.62)$$

și (2.61), aceasta rezultând din (2.62) și (2.58).

e. Simetria lui Kleinman. Deoarece toate frecvențele implicate într-un proces neliniar (ale câmpului electric și polarizației) sunt situate foarte departe de orice frecvență de rezonanță a materialului, aceasta conduce la două consecințe importante: 1°. *Materialul se comportă ca un mediu fără pierderi*, astfel încât se aplică proprietățile de simetrie amintite mai înainte și 2°. *se poate considera, într-o bună aproximație că susceptibilitățile neliniare sunt independente de frecvență*. Consecința 2°, combinată cu relațiile (2.60) și (2.61) exprimă *simetrie Kleinman*, conform căreia *susceptibilitățile nelineare sunt invariante la o permutare oarecare a indicilor coordonatelor carteziene fără a schimba frecvențele*.

C. Ecuația undelor neliniară pentru fiecare componentă de frecvență

Din cele prezentate anterior, s-a constatat că relația constitutivă (2.55) dintre *polarizația neliniară* și *componentele carteziene ale câmpului electric* caracterizează complet *răspunsul neliniar al mediului* (*materialului*) supus la un câmp electric.

Ținând seama de faptul că obiectul de studiu principal al opticii neliniare este câmpului electric însuși, care se propagă traversând mediul neliniar, propagarea acestuia este posibilă ținând seama de cuplajul dintre undele luminoase și polarizația pe care ele o induc. Acest cuplaj este descris cu ajutorul unei ecuații de unde neliniară care rezultă din ecuațiile lui Maxwell, unde polarizația joacă rolul unui termen sursă (2.38).

Forma ecuației de undă neliniară se obține plecând de la ecuațiile lui Maxwell care descriu propagarea undelor într-un mediu material. În cazul unui mediu nemagnetic, în care densitățile de sarcină și de curent sunt nule (cazul unui mediu optic) avem: $\nabla\overline{D}=\nabla\overline{B}=0$, $\nabla\times\overline{E}+\frac{\partial\overline{B}}{\partial t}=0$ și $\nabla\times\overline{B}=\mu_0\left(\frac{\partial\overline{D}}{\partial t}\right)=$ $=\mu_0\frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon_0\overline{E}+\overline{P}\right)=\frac{1}{c^2}\frac{\partial\overline{E}}{\partial t}+\frac{1}{\varepsilon_0c^2}\frac{\partial\overline{P}}{\partial t}$. Aplicând rotorul ecuației $\nabla\times\overline{E}+\frac{\partial\overline{B}}{\partial t}=0$ și ținând seama de $\nabla\times\overline{B}=\frac{1}{c^2}\frac{\partial\overline{E}}{\partial t}+\frac{1}{\varepsilon_0c^2}\frac{\partial\overline{P}}{\partial t}$, precum și de $\nabla\times\nabla\times\overline{E}=\nabla\left(\nabla\overline{E}\right)-$ $-\nabla^2\overline{E}$, rezultă:

$$\nabla^2\overline{E}-\frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\overline{E}}{\partial t^2}=\frac{1}{\varepsilon_0c^2}\frac{\partial^2\overline{P}}{\partial t^2}, \quad (2.38\text{ bis})$$

care este identică cu ecuația (2.38).

Pentru calculele efective, este comod de a efectua o descompunere Fourier *temporală* a câmpului electric și a polarizației mediului, făcând distincție între părțile liniară și neliniară ale acesteia. Presupunând că avem un mediu (material) izotrop, caracterizat printr-o susceptibilitate liniară $\chi^{(1)}$ pur reală (adică, se neglijează absorbția liniară, fenomen pe care îl cercetăm totdeauna în mod sistematic minimalizându-l în aplicații), pentru fiecare componentă de frecvență $\overline{P}(\omega)$ a polarizației avem:

$$\overline{P}(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega)\overline{E}(\omega) + \overline{P}_{NL}(\omega), \tag{2.63}$$

unde polarizația neliniară $\overline{P}^{NL}(\omega)$ este definită prin

$$\overline{P}_{NL}(\omega) = \sum_{r}\sum_{p>1}\sum_{j} P_j^{0(p)}(\omega_r)\overline{u}_j \exp\left[i\overline{K}_r\overline{r}\right]\delta(\omega - \omega_r), \tag{2.64}$$

unde δ reprezintă distribuția Dirac și $\overline{E}(\omega)$ nu trebuie confundat cu $\overline{E}^0(\omega)$, care nu conține dependența spațială rapidă a câmpului. Introducând expresia (2.63) în (2.38 bis), rezultă:

$$\nabla^2\overline{E}(\omega) + n^2(\omega)\frac{\omega^2}{c^2}\overline{E}(\omega) = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\overline{P}^{NL}(\omega), \tag{2.65}$$

unde $n(\omega) = \left[1 + \chi^{(1)}(\omega)\right]^{1/2}$ este indicele de refracție al mediului la frecvența ω și c este viteza luminii în vid.

Ecuația (2.65) este numită, de fapt, *ecuația undelor neliniară*, deoarece cu aceasta se lucrează. Se observă că ea are forma ecuației undelor obișnuite pentru un mediu de indice de refracție $n(\omega)$

$$\nabla^2\overline{E}(\omega) + n^2(\omega)\frac{\omega^2}{c^2}\overline{E}(\omega) = 0\,,$$

însă, posedând un termen sursă proporțional cu polarizația neliniară a mediului, $-\dfrac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\overline{P}_{NL}(\omega)$. Produsele amplitudinilor câmpurilor conținute în polarizația neliniară, $\overline{P}_{NL}(\omega)$, descriu interacția dintre undele laser prezente în mediul neliniar, coeficienții de cuplaj dintre unde fiind proporționali cu susceptibilitățile neliniare ale materialului. Datorită acestor termeni de interacție a mai multor unde, propagarea câmpurilor într-un mediu neliniar trebuie să fie descrisă de un sistem de ecuații cuplate de tipul (2.65), al căror număr este, în general, superior numărului de unde laser incidente.

După dependența lor spațială și temporală, componentele polarizației $P_j^{0(p)}(\omega_r)$ pot, efectiv, să dea naștere la două tipuri de procese în mediul neliniar: 1°–modificarea propagării undelor laser incidente (prin schimbarea indicelui de refracție, modificarea intensității) și 2°–generarea de noi componente Fourier ale câmpului pornind de la undele incidente (amestec de frecvență, efect Raman stimulat, conjugare de fază etc.).

În plus, se ajunge chiar ca numărul de astfel de unde generate să devină suficient de intense pentru ca ele, la rândul lor, să dea naștere la noi câmpuri, care la rândul lor .... ș.a.m.d. Deci, numărul de ecuații neliniare cuplate de care trebuie să ținem seama poate deveni considerabil de mare.

D. Simplificarea sistemului de ecuații neliniare cuplate

Existența unui număr mare de ecuații neliniare cuplate de care ar trebui să ținem seama îngreunează studiile efectuate. Din fericire, în cea mai mare parte a situațiilor de interes practic, există mai mulți factori care contribuie la micșorarea numărului de ecuații neliniare cuplate. Astfel, considerând că simplificarea relației constitutive (2.55) a fost deja efectuată cu ajutorul relațiilor de simetrie expuse în §2.2.4.B, vom trece în revistă câteva criterii de considerat când se face o analiză concretă a unei situații, înainte de a trece la rezolvarea unui sistem de ecuații neliniare cuplate în număr foarte mare.

a. *Exaltarea (creșterea mare) rezonantă a neliniarităților* este un fenomen adesea foarte selectiv în frecvență. Ținând seama de acest fenomen, numărul de componente ale tensorilor susceptibilității neliniare care au o valoare neneglijabilă poate fi foarte restrâns și, astfel, are loc o reducere semnificativă a numărului de ecuații neliniare cuplate.

b. *Condiția de acord de fază* este un fenomen prin care câmpurile radiate de cei N_{dipoli} (numărul de dipoli) ai mediului material interferă sub o formă constructivă, adică, defazajul în cazul propagării descrisă de vectorul de undă $\overline{K}_r$ compensează exact diferența de fază dintre dipolii legați de propagarea undelor laser incidente, descrisă de vectorul de undă $\overline{K}_r$.

Din cele expuse până acum, intensitatea câmpului radiat de componenta de polarizație $P_j^{0(p)}(\omega_r)$ depinde în mod esențial de relația de fază între cei N_{dipoli} ai mediului (materialului). Câmpul total radiat de mediul neliniar este, într-adevăr, egal cu suma câmpurilor emise de fiecare din dipolii săi, care oscilează cu o fază care depinde de câmpul electric la care ei sunt supuși. S-a arătat că variația spațială a acestei faze este descrisă de vectorul de undă $\overline{K}_r$ asociat componentei de polarizare $P_j^{0(p)}(\omega_r)$. În paralel cu aceasta, relația de dispersie a materialului $k(\omega)$, care include modificarea indicelui neliniar datorită câmpurilor prezente în mediu, impune o relație univocă între frecvența ω și modulul vectorului de undă, $\overline{k}$, al oricărui câmp care se propaga în mediu. În acest mod, câmpul de frecvență ω_r, emis de componenta de polarizație $P_j^{0(p)}(\omega_r)$, va suferi în mod necesar un defazaj la propagarea caracterizată de vectorul de undă $\overline{k}_r$ de modul $k(\omega_r)$. În mod asemănător, modulul vectorului de undă $\overline{K}_r$, în măsura în care suma vectorilor de undă ai laserilor incidenți (v. relația (2.57)) depinde sub o formă indirectă de relația de dispersie. Cu alte cuvinte, este necesar ca acești vectori de undă să verifice relația:

$$\overline{k}_r = \overline{K}_r = \sum_{k=1}^{p} \overline{k}_{m_k} \ . \tag{2.66}$$

În cazul în care această condiție, numită *condiție de acord de fază*, este realizată, amplitudinea câmpului electric emis este de N_{dipoli} ori mai mare și intensitatea acestuia de N_{dipoli}^2 ori mai mare, decât cea care corespunde la fiecare dipol. Dacă nu este realizată *condiția de acord de fază*, dipolii radiază într-un mod necoerent și intensitatea câmpului emis de material (mediu) este numai de N_{dipoli} ori mai mare decât cea a unui dipol individual. *În aplicațiile existente, deoarece fiecare dipol are o contribuție foarte slabă* (§2.1), *această diferență între factorii* N_{dipoli} *și* N_{dipoli}^2 *conduce la rezultatul că un proces neliniar să nu fie eficace decât dacă este verificată condiția de acord de fază*. În cele ce urmează, se va constata că această condiție de acord de fază este verificată când ecuația (2.66) va fi cu termeni de ordinul $\frac{1}{L}$, unde L reprezintă talia zonei de interacție dintre câmp și materialul neliniar.

Astfel, rezultă că va fi posibil să eliminăm din sistemul de ecuații neliniare cuplate toate componentele polarizației care nu satisfac în mod evident condiția de acord de fază. În particular, toate componentele de polarizație asociate cu un vector de undă $\overline{K}_r$, având un modul foarte diferit de $\frac{n(\omega_r)\omega_r}{c}$ vor fi tot timpul neglijate. Aici, $\frac{n(\omega_r)\omega_r}{c}$ este valoarea așteptată în absența procseului neliniar pentru un câmp de frecvență ω_r și care diferă puțin când sunt luate în seamă efectele de indice neliniar.

c. *Limita unei interacții neliniare slabe* face ca ecuațiile de evoluție ale câmpurilor incidente să poată fi neglijate, în timp ce ecuațiile noilor câmpuri generate devin în general liniare, neglijându-se termenii proporționali cu a doua sau mai multe câmpuri recent generate, de amplitidini slabe. Aceasta are loc când ne aflăm în situația în care procesele neliniare sunt suficient de slabe, existând posibilitatea de a neglija modificarea amplitudinii câmpurilor incidente de mare intensitate în decursul propagării lor în mediul (materialul) neliniar.

d. *Aproximația anvelopei lent variabile*, este aproape întotdeauna verificată în optică. Astfel, se constată că în cea mai mare parte a situațiilor fizice, ecuația undelor (2.65) poate fi readusă de la o ecuație diferențială de ordinul doi la o ecuație diferențială de primul ordin. Această operație se face căutând soluția sau printr-o metodă de tipul *variația constantei*. Deoarece undele laser incidente, precum și polarizația neliniară au o structură de tip undă plană, este natural să se caute să se descrie câmpurile $\overline{E}(\omega_r)$ sub forma unui produs de o funcție anvelopă $\overline{E}^0(\omega_m)$ și de o undă plană soluție a ecuației omogene asociată la (2.65):

$$\overline{E}(\omega_m) = \overline{E}^0(\omega_m)\overline{u}\exp\left[i\overline{k}_r \cdot \overline{r}\right], \tag{2.67}$$

unde vectorul de undă $\overline{k}_r$ are modulul

$$\left|\overline{k}_r\right| = n(\omega_r)\frac{\omega_r}{c} \tag{2.68}$$

și este orientat după direcția de propagare a câmpului $\overline{E}(\omega_r)$. Notația generică $\overline{E}(\omega_r)$ se folosește pentru a desemna în mod global câmpurile laser incidente și noile câmpuri generate plecând de la acestea prin interacție neliniară.

Cu convenția dată de (2.67) și (2.68), dependența spațială rapidă (la scara lungimii de undă optice) a câmpului $\overline{E}(\omega_r)$ este conținută în mod complet în exponențiala complexă a ecuației(2.67), în timp ce funcția anvelopă descrie evoluția la scară mare a câmpului sub efectul cuplajului neliniar. Ca atare, este posibil ca în ecuația (2.65) să se neglijeze derivata a doua a anvelopei $\overline{E}^0(\omega_r)$, adică:

$$\left|\nabla^2 \overline{E}^0(\omega_r)\right| << \left|\left[\overline{k}_r \cdot \nabla\right]\overline{E}^0(\omega_r)\right|. \tag{2.69}$$

Acest procedeu de calcul poartă numele de *aproximația anvelopei lent variabilă*, care, substituită în ecuația (2.65) o transformă într-o ecuație care se referă la funcția anvelopă:

$$\left[\overline{k}_r \cdot \nabla\right] E^0(\omega_r)\overline{u} = \frac{i\,\omega_r^2}{2\varepsilon_0 c^2}\overline{P}_{NL}(\omega = \omega_r)\exp\left[-i\,\overline{k}_r \cdot \overline{r}\right], \tag{2.70}$$

sau, cu alte cuvinte, ecuația diferențialei de al doilea ordin (2.65) este redusă la o ecuație diferențială de primul ordin (2.70).

Aproximația (2.69) este întotdeauna verificată în optică. Interpretarea conform căreia funcția anvelopă $\overline{E}^0(\omega_r)$ variază foarte lent la scare lungimilor de undă din optică, ne permite să identifcăm în mod clar fenomenele fizice eventuale pe care aproximația anvelopei lent variabilă le face să dispară din sistem. După Shen[9], condiția de aproximație a anvelopei lent variabile conduce la neglijarea componentei câmpului electric radiat de polarizație în direcția opusă vectorului de undă $\overline{k}_r$, câmp care este întotdeauna neglijabil, deoarece el nu satisface condiția de acord de fază. În aplicațiile practice, pentru a se descrie procesele neliniare se utilizează întotdeauna ecuația (2.70), mai curând decât ecuația (2.65).

2.3. Interpretarea cuantică a proceselor neliniare

Descrierea proceselor neliniare cu ajutorul tensorilor de susceptibilitate și ecuațiilor de undă neliniare prezintă un dublu avantaj: - este generală și – rezonabil de simplă de manipulat din punct de vedere tehnic. Însă, datorită caracterului foarte formal, această descriere maschează adesea conținutul fizic al proceselor și permite destul de dificil să se determine parametrii sau condițiile experimentale care permit optimizarea eficacității. În practică, descrierea fizică a unui proces neliniar intervine în general când se calculează polarizația neliniară a mediului . Un astfel de calcul necesită deseori cuantificarea gradelor de libertate interne ale constituenților elementari ai materialului (atomi, molecule), responsabili de răspunsul său neliniar. Cuantificarea radiației electromagnetice este în ceea ce o privește mult mai puțin sistematică. Într-adevăr, optica neliniară se bazează în mod esențial pe utilizarea surselor laser de puteri medii și ridicate și, deci, pe fluxuri de fotoni foarte importante, astfel încât caracterul cuantic al radiației electromagnetice nu este în general aparent. De exemplu, un laser în infraroșu cu puterea de 1W corespunde la

---

[9] Y.R. Shen, The principles of nonlinear optics, Wiley, New York, (1984)

un flux de 10^{19} fotoni/s. Aceasta este, de fapt, rațiunea pentru care procesele neliniare sunt aproape întotdeauna descrise prin considerarea câmpului ca fiind o mărime clasică.

Cu toate acestea, reprezentarea efectelor neliniare în funcție de schimburi elementare de fotoni între unde (procesul de difuzie) via mediu (material) sau transferuri de energie între undă și mediu (procesele de absorbție și de emisie de fotoni) este totdeauna extrem de sugestivă și permite, în general, de a desăvârși cunoașterea sa și intuiția sa cu privire la efectul studiat. Interesul unei astfel de reprezentări este întărită prin faptul că ea nu necesită în mod expres un recurs explicit la electrodinamica cuantică sau la teoria difuziei, deoarece ea se obține adesea prin simpla inspectare a calculului polarizației neliniare efectuat în cadrul electrodinamicii clasice. În cele ce urmează se dau câteva reguli practice care ne permit să legăm descrierile clasică și cuantică ale proceselor studiate.

2.3.1. Condițiile de a obține o descriere cuantică a unui proces neliniar

Descrierea complet cuantică a unui proces neliniar este în principiu posibilă totdeauna, oricare ar fi sistemul studiat. Însă, din punct de vedere practic există situații care se pretează mai bine decât altele la o asemenea descriere. Pot exista situații care în aparență sunt complexe, dar se pretează ușor la o tratare cuantică și reciproc, situații simple a căror tratare cuantică este foarte complexă. De exemplu, din prima categorie fac parte anumite procese neliniare ajutate prin ciocniri între două specii gazoase, iar din a doua, difuzia Rayleigh stimulată.

Descrierea cuantică a proceselor neliniare se adeverește, în general, a fi delicată, fără însă ca aceasta să se refere la toate cazurile. Aceasta se petrece, datorită următoarelor:

a) Numărul sau complexitatea elementelor care intervin în răspunsul neliniar al materialului este foarte important. Acest lucru are loc mai ales când în procesul neliniar studiat intervine un mecanism de relaxare legat de cuplajul sistemului cu rezervorul, caz în care calculele de efectuat sunt complexe. În cazul relaxării datorită cuplajului atomilor sau moleculelor cu câmpul electromagnetic al vidului (emisia spontană), lucrurile se simplifică deoarece procesele de emisie de fotoni se pot trata simultan, fără mari dificultăți, cu interacția dintre mediu și undele incidente;

b) Câmpurile implicate în procesul neliniar fiind numeroase, este necesar să se țină seama de un număr considerabil de diagrame pentru calculul amplitudinilor de tranziție asociate procesului neliniar;

c) Câmpul electric posedând o structură spațială complexă, noțiunea de foton este inadecvată pentru a descrie efectul neliniar. Ca exemplu avem cazul procesului de autofocalizare sau de filamentare a unui fascicul laser gaussian.

Pentru o înțelegere fizică a unui proces neliniar este suficient să ne limităm la reprezentarea grafică a acesteia, făcând să intervină exclusiv câmpurile prezente în mediu (undele incidente sau generate de interacția neliniară) și nivelele de energie ale constituenților elementari (atomi, molecule) ai mediului neliniar. De asemenea, nu se consideră decât situațiile în care câmpurile laser pot fi asimilate într-o bună aproximație cu unde plane. Atunci, asemenea procese pot fi descrise la nivel cuantic cu ajutorul unei hamiltoniene în care intervin numai gradele de libertate interne ale atomilor sau moleculelor și modurile cuantice ale câmpului electromagnetic corespunzător laserilor incidenți și câmpurilor generate prin interacția neliniară.

2.3.2. Noțiuni privind procesele de interacție dintre fotoni și atomi[10]

Se consideră cazul în care constituenții elementari ai mediului responsabili de răspunsul neliniar sunt atomi la care structura nivelelor de energie este cunoscută și este descrisă cu ajutorul unui hamiltonian atomic, $\mathscr{H}_{\text{int}}$, care acționează asupra gradelor de libertate interne ale atomului (sau moleculei). În aproximația dipolar electrică, hamiltonianul $\mathscr{H}$ care descrie dinamica sistemului format de atomi și câmpul $\overline{E}$ are expresia:

$$\hat{\mathscr{H}} = \frac{\hat{\overline{P}}^2}{2M} + \hat{\mathscr{H}}_{\text{int}} + \hat{\mathscr{H}}_R - \hat{\overline{\mu}}_e \cdot \hat{\overline{E}}\left(\hat{\overline{R}}\right), \tag{2.71}$$

unde $\hat{\overline{P}}$ și $\hat{\overline{R}}$ sunt operatorii impuls și poziție ale atomului de masă M și $\hat{\overline{\mu}}_e$ este operatorul moment dipolar electric. Câmpul electromagnetic fiind cuantificat în etalonarea Coulomb, hamiltonianul de radiație $\hat{\mathscr{H}}_R$ și operatorul câmp electric $\overline{E}$ se exprimă în funcție de operatorii $\hat{a}_n^+$ și $\hat{a}_n$ care descriu crearea și anihilarea de fotoni în modul n al câmpului electromagnetic, caracterizat prin frecvența ω_n, vectorul de undă $\overline{k}_n$ și polarizarea $\overline{u}_n$:

$$\hat{\mathscr{H}}_R = \sum_n \hbar\omega_n \left(\hat{a}_n^+ \hat{a}_n + \frac{1}{2} \right); \tag{2.72}$$

$$\hat{\overline{E}}(r) = \sum_n i \sqrt{\frac{\hbar\omega_n}{2\varepsilon_0 \mathcal{V}}} \left\{ \hat{a}_n \overline{u}_n \exp\left[i\overline{k}_n \overline{r}\right] - \hat{a}_n^+ \overline{u}_n \exp\left[-i\overline{k}_n \overline{r}\right] \right\}, \tag{2.73}$$

unde $\mathcal{V}$ este volumul de cuantificare al câmpului și unde suma nu se face decât asupra modurilor câmpului electromagnetic al laserilor incidenți și câmpurilor generate de interacția neliniară. Compararea ecuațiilor (2.73), (2.49) și (2.50) face să apară o corespondență între reprezentările clasice și cuantice ale câmpului electric: *la amplitudinea complexă E_n^0 a câmpului clasic corespunde operatorul de anihilare $\hat{a}_n$, în timp ce operatorul de creare $\hat{a}_n^+$ este asociat la complexul conjugat E_n^{0*} al câmpului electric.*

Se reține, în general, ca bază a stărilor sistemului {atom + câmp} ansamblul ket-urilor de forma:

$$\left| \overline{p}; \hat{a}; n_1, n_2, \ldots \right\rangle \tag{2.74}$$

descriind un atom de impuls $\overline{p}$ în starea internă $|a\rangle$ și un câmp cuantic caracterizat prin n_1 fotoni în modul 1, n_2 fotoni în modul 2 etc... Din expresia (2.71) a hamiltonianului sistemului {atom + câmp} rezultă clar că aceste stări sunt cuplate între ele prin termenul $-\hat{\overline{\mu}}_e \hat{\overline{E}}\left(\overline{R}\right)$ care descrie interacția dintre dipolul atomic și

---

[10] Claude Cohen – Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, Processus d'interaction entre photons et atoms, Inter Edition/Edition du CNRS, Paris, (1988)

câmpul electric. Mai exact, ecuația (2.73) arată că numai stările diferind printr-un singur foton sunt cuplate direct prin hamiltonianul de interacție $-\hat{\bar{\mu}}_e \hat{\bar{E}}(\bar{R})$. O altă proprietate importantă a interacției atom – radiație este că ea conservă energia și impulsul total al sistemului {atom + câmp}, care sunt definite prin:

$$\hat{\mathscr{H}}_{tot} = \frac{\hat{\bar{P}}^2}{2M} + \hat{\mathscr{H}}_{\text{int}} + \hat{\mathscr{H}}_R ; \tag{2.75}$$

$$\hat{\bar{P}}_{tot} = \hat{\bar{P}} + \sum_n \hbar \bar{k}_n \hat{a}_n^+ \hat{a}_n . \tag{2.76}$$

În expresia (2.76) se recunoaște expresia $\hbar\bar{k}_n$ care corespunde impulsului fotonului de vector de undă $\bar{k}_n$. Astfel, un proces de absorbție a unui foton al modului n de către un atom va face ca impulsul acestuia să treacă de la $\bar{p}$ la $\bar{p} + \hbar\bar{k}_n$, în timp ce un proces de emisie îl va face să treacă de la $\bar{p}$ la $\bar{p} - \hbar\bar{k}_n$.

Orice efect neliniar corespunde la un proces de interacție între fotoni și atomi. Electrodinamica cuantică permite să se calculeze amplitudinea probabilității asociate la asemenea procese. Mai exact, aceasta descrie evoluția sistemului {atom + câmp} sub efectul hamiltonianului de cuplaj $-\hat{\bar{\mu}}_e \hat{\bar{E}}(\bar{R})$ tratându-l pe acesta din urmă ca o mică perturbare a hamiltonianului (2.75). În acest mod, amplitudinea de probabilitate este calculată sub forma unei serii de perturbație la care fiecare termen poate fi reprezentat cu ajutorul unei diagrame. Aceste diagrame sunt constituite pe de o parte din nivelele atomice și de pe altă parte din săgețile care descriu succesiunea de absorbții și de emisii de fotoni (lungimea săgeților fiind proporțională cu energia fotonilor), așa cum ele figurează în termenul considerat. De exemplu, considerând amplitudinea de probabilitate p_{fi}^0 pentru un sistem care efectuează o tranziție de la starea inițială $|i\rangle = |a; n_1, n_2\rangle$ la o stare finală $|b; n_1 - 1, n_2 + 1\rangle$, unde, pentru a simplifica lucrurile, nu ținem seama de impulsul atomului. Cele două stări diferind prin doi fotoni și acțiunea hamiltonianului de interacție $-\hat{\bar{\mu}}_e \hat{\bar{E}}(\bar{R})$ asupra unei stări schimbând numărul de fotoni cu o singură unitate, o astfel de amplitudine de probabilitate nu va apare la un ordin mai jos decât al doilea ordin de perturbație. Astfel, se va obține un termen de forma:

$$p_{fi}^0 \propto \langle b; n_1 - 1, n_2 + 1 | \hat{a}_2^+ \hat{\bar{\mu}}_e \hat{\bar{u}}_2 \exp\left[-i\bar{k}_2 \bar{r}\right] c; n_1 - 1, n_2 \rangle$$
$$\langle c; n_1 - 1, n_2 | \hat{a}_1 \hat{\bar{\mu}}_e \bar{u}_1 \exp\left[i\bar{k}_1 \bar{r}\right] | a; n_1, n_2 \rangle, \tag{2.77}$$

unde $\bar{r}$ reprezintă poziția centrului de masă atomică. Citind acest termen de la dreapta la stânga observăm că el corespunde absorbției unui foton din modul 1 cu trecerea atomului în nivelul intermediar $|c\rangle$, urmată de emisia stimulată a unui foton în modul 2 cu trecerea atomului în nivelul intern $|b\rangle$. Acest proces este reprezentat în figura 2.6, unde se observă că absorbția unui foton din modul 1 este urmată de emisia stimulată a unui foton în modul 2 și că energia totală a sistemului

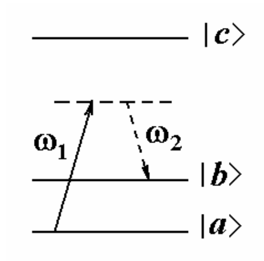

Fig. 2.6.

{atom + câmp} este conservată în cursul acestui proces, câmpul transferând o parte din energia sa atomului.

Diagramele cuantice de forma celei date în figura 2.6 nu reflectă decât parțial realitatea unui proces neliniar, deoarece: - aceste diagrame se schimbă după etalonarea aleasă pentru cuantificarea câmpului electromagnetic (aici, etalonarea Coulomb) și n-au, deci, în mod individual o semnificație fizică veritabilă (în schimb, probabilitatea totală a procesului este invariantă la etalonare); - reprezentarea prin diagramă a amplitudinilor de tranziție cuantice în funcție de absorbții și de emisii succesive ale fotonilor privilegiază noțiunea de schimb de energie dintre câmp și mediul difuzor și nu ține seama sub o formă explicită de faza undelor implicate, care este conținută în fotonii exponențiali din formula (2.77). Ori, se știe că faza diferiților termeni ai dezvoltării în serie a unei amplitudini de tranziție are o influență fundamentală asupra valorii probabilității de tranziție. Este vorba de fenomenul bine cunoscut de interferență cuantică între amplitudinile de tranziție pentru procesele asociate acelorași stări inițială și finală.

În cadrul Opticii neliniare se pot distinge două tipuri de interferențe cuantice, anume, interferențe cuantice care se produc la nivel microscopic și interferențele cuantice care se produc la nivel macroscopic.

În cazul *interferențelor cuantice la nivel microscopic*, studiul răspunsului neliniar al unui constituent elementar unic al materialului putând face să apară amplitudinea de probabilitate ca o sumă de mai mulți termeni, asociați fiecare la o diagramă de tipul celei din figura 2.6, este necesar să se considere că procesul neliniar este descris sub o formă globală de ansamblul acestor diagrame, la care trebuie să se asocieze în mod obligatoriu faza lor pentru a obține o descriere completă a procesului. În practică, prezența mai multor diagrame care interferă este adesea asociată la ordinul în care se înlănțuiesc procesele de absorbție și de emisie a fotonilor, la numărul acestor procese, precum și la diferite stări de energie intermediare de tipul $\left|c\right\rangle$, ca în ecuația (2.77). Cu toate aceste greutăți, exaltarea rezonantă a amplitudinilor de probabilitate permite adesea să se neglijeze contribuția unui mare număr de diagrame.

Când se consideră *interferențele cuantice la nivel macroscopic*, se ține seama de faptul că un proces neliniar se produce când propagarea câmpurilor laser traversează un mediu de talie macroscopică, rezultând, deci, suma contribuțiilor unui număr considerabil al constituenților elementari ai materialului. Din punct de vedere cuantic, modul în care se adună aceste contribuții este descris de amplitudinile de tranziție asociate la fiecare dintre constituenți elementari. Există două fenomene care pot influența interferența dintre aceste amplitudini: - faptul că faza diferitelor amplitudini de probabilitate poate varia de la un constituent la altul (de exemplu, dacă răspunsul neliniar este datorat la două tipuri de constituenți) și – faptul că stările inițială și finală ale proceselor cuantice care contribuie la răspunsul neliniar al mediului pot fi diferite, astfel că amplitudinile de probabilitate asociate nu pot să interfere.