

ΑΡΧΕΣ ΤΗΣ ΜΗ ΓΡΑΜΜΙΚΗΣ ΟΠΤΙΚΗΣ

Τμήμα Ηλεκτρονικών Μηχανικών Τ.Ε. του
Τεχνολογικού Εκπαιδευτικού Ιδρύματος
Κρήτης



ΤΕΧΝΟΛΟΓΙΚΟ
ΕΚΠΑΙΔΕΥΤΙΚΟ
ΙΔΡΥΜΑ ΚΡΗΤΗΣ

Διπλωματική εργασία των φοιτητών

Αγαθοκλέους Θεόφιλος

Περικλεούς Τζούλια

Χαραλάμπους Σωτήρης

Επιβλέπων καθηγητής

Πλιάκης Δημήτριος

Χανιά 2013

ΑΡΧΕΣ ΤΗΣ ΜΗ ΓΡΑΜΜΙΚΗΣ ΟΠΤΙΚΗΣ

Πρόλογος

Το λέιζερ αποτελεί σίγουρα μια από της μεγαλύτερες ανακαλύψεις στην ιστορία της επιστήμης. Η άφιξή του, πριν από 25 χρόνια, δημιούργησε πολλούς καινούργιους συναρπαστικούς τομείς, ανάμεσα στους οποίους η μη-γραμμική οπτική αναμφίβολα κατέχει το ευρύτερο πεδίο εφαρμογής και τους πιο ισχυρούς υποστηρικτές. Ο τομέας του λέιζερ ξεκίνησε με το πειραματικό έργο του P.A. Franken και των συνεργατών του στην οπτική γένεση δεύτερης αρμονικής το 1961 και το θεωρητικό έργο του N.Bloembergen και των συνεργατών του στη ανάμιξη οπτικών κυμάτων, το 1962. Από τότε, ο τομέας του λέιζερ έχει αυξηθεί με τόσο γρήγορο ρυθμό που σήμερα έχει ήδη βρει εφαρμογές σε σχεδόν όλους τους τομείς της επιστήμης.

Η ευρεία έκταση της μη-γραμμικής οπτικής είναι κάτι σαφώς πολύ συναρπαστικό, αλλά παράλληλα καθιστά το πεδίο δύσκολο να κατανοηθεί. Το απέραντο ποσοστό γνώσης που δημιουργήθηκε στο πέρασμα των χρόνων βρίσκεται σκορπισμένο παντού στη βιβλιογραφία. Οι αρχάριοι στον τομέα της μη-γραμμικής οπτικής συχνά δυσκολεύονται να εξοικειωθούν με τα διάφορες πτυχές του τομέα. Ακόμα και αυτοί που εργάζονται στον τομέα της μη-γραμμικής οπτικής, κάποιες φορές μπορεί να έχουν δυσκολίες στο να εντοπίσουν κάποιες στοιχειώδεις πληροφορίες για κάποια υπο-περιοχή του τομέα, με την οποία δεν είναι εξοικειωμένοι. Ένα βιβλίο στη μη-γραμμική οπτική που να προσφέρει μια ξεκάθαρη εισαγωγή για όλους τους κλάδους του τομέα αυτού, είναι σίγουρο πως είναι αναγκαίο.

Στην πραγματικότητα, υπάρχουν ήδη μερικά βιβλία στο θέμα της μη γραμμικής οπτικής. Το πιο έγκυρο, αυτό του N.Bloembergen, θέτει τις βάσεις για τη μη γραμμική οπτική. Παρόλα αυτά, εφόσον το βιβλίο γράφτηκε το 1965, είναι πλέον απαρχαιωμένο, όπως και το βιβλίο των S.A. Akhmanov και R.V. Khokhlov που γράφτηκε το 1964 (μεταφράστηκε στα αγγλικά το 1972). Ανάμεσα στα υπόλοιπα βιβλία που μπορεί κανείς να βρει στις περισσότερες ακαδημαϊκές βιβλιοθήκες, υπάρχουν μερικά, που περιέχουν μόνο τα στοιχειώδη και με περιορισμένη έκταση και άλλα τείνουν να επικεντρώνονται σε συγκεκριμένα θέματα της μη γραμμικής οπτικής. Τα πρακτικά από συνέδρια ίσως παρέχουν μια ευρύτερη προοπτική, αλλά συνήθως είναι πολύ προχωρημένα και στερούνται συνοχής. Αυτό που χρειάζεται είναι ένα βιβλίο, που όχι μόνο θα παρουσιάζει

λογικά τις βασικές αρχές της μη γραμμικής οπτικής, αλλά επίσης θα περιγράψει συστηματικώς τις υπο-περιοχές του πεδίου. Αυτό το βιβλίο στοχεύει στο να ικανοποιήσει αυτή την ανάγκη.

Η σύνταξη ενός βιβλίου που να καλύπτει ολόκληρη τη θεματολογία της μη γραμμικής οπτικής σε βάθος από ένα μόνο συγγραφέα είναι αδύνατη. Αυτό το βιβλίο υπολείπεται λεπτομερειών στην περιγραφή μερικών θεματολογιών. Επιπλέον, προκειμένου να περιοριστεί το μέγεθος του βιβλίου, έχουν παραληφθεί πολλοί τομείς. Μερικοί από αυτούς είναι οι μη γραμμικές οπτικές διεγέρσεις που προκαλούνται από σύγκρουση, οι πολλές οπτικές σταθερές λειτουργίες, οι διακλαδώσεις και το χάος, οι κβαντικές στατιστικές της μη γραμμικής οπτικής, και πολλά μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα. Γράφοντας αυτό το βιβλίο, προτιμήθηκε να δοθεί έμφαση στα βασικά στοιχεία, καθώς και στην αλληλεπίδραση μεταξύ θεωρίας και πειράματος. Φυσικές έννοιες σχολιάζονται σε βάθος σε θεωρητικές παρουσιάσεις, παρόλο που οι εξισώσεις δεν μπορούν συνήθως να αποφευχθούν σε επεξηγήσεις που παρουσιάζονται προσεκτικά και με λεπτομέρεια. Στην απεικόνιση μιας συγκεκριμένης διαδικασίας, δίνεται μια σύντομη περιγραφή της πειραματικής συνθήκης, για να δοθεί στους αναγνώστες μια ρεαλιστική εικόνα. Οι πηγές στο τέλος κάθε κεφαλαίου συμπληρώνουν τις λεπτομέρειες που παραλείπονται στο κείμενο, αλλά κάθε λίστα με πηγές είναι σκοπίμως σύντομη.

Αυτό το βιβλίο αναπτύχθηκε από μεταπτυχιακό πρόγραμμα Φυσικής στην σύγχρονη οπτική, που έχω διδάξει πολλές φορές στο Berkeley. Η απογοητευτική εμπειρία της επιλογής κατάλληλου υλικού με ώθησε στο να γράψω αυτό το βιβλίο. Επομένως, αυτό το βιβλίο γράφτηκε σε επίπεδο, το οποίο απευθύνεται σε φοιτητές Φυσικής μεταπτυχιακού επιπέδου. Με μερική προσπάθεια, οι φοιτητές της χημείας και της μηχανικής που αποσκοπούν σοβαρά στην εκμάθηση της μη-γραμμικής οπτικής, θα μπορούν επίσης να κατανοήσουν το περιεχόμενο του βιβλίου χωρίς ιδιαίτερη δυσκολία. Επίσης, το βιβλίο μπορεί να αποτελέσει χρήσιμη αναφορά για επαγγελματίες στην ανασκόπηση του τομέα τους.

Το βιβλίο ξεκινά με μια γενική εισαγωγή και συνεχίζει με μια περιγραφή των βασικών αρχών στα Κεφάλαια 2 και 3. Τα ηλεκτρο-οπτικά και μαγνητο-οπτικά φαινόμενα εξετάζονται στο Κεφάλαιο 4, ως ειδικά μη-γραμμικά οπτικά φαινόμενα, και τα αντίστροφα φαινόμενά τους σχολιάζονται στο Κεφάλαιο 5. Τα πιο γνωστά φαινόμενα της μη γραμμικής οπτικής δεύτερης τάξης, σχολιάζονται στα Κεφάλαια 6 έως 9 και τα φαινόμενα μη γραμμικής οπτικής τρίτης τάξης σχολιάζονται στα Κεφάλαια 10 ως 17. Κατά τον σχολιασμό, η παραμετρική μετατροπή στο Κεφάλαιο 9 αντιμετωπίστηκε ως το

αντίστροφο μιας διαδικασίας μίξης. Η εξαναγκασμένη σκέδαση φωτός παρουσιάζεται στα Κεφάλαια 10 με 11 να συμπεριφέρεται σαν μια παραμετρική διαδικασία, από την γενικότερη σκοπιά συζευγμένου κύματος, παρόλο που συχνά θεωρείται ως μια διαδικασία 2 φωτονίων που καταλήγει σε διέγερση του υλικού. Παρόλο που το πρώτο μισό του βιβλίου καταπιάνεται με τον παραδοσιακό είδος της μη γραμμικής οπτικής, το δεύτερο μισό του βιβλίου σχολιάζει συγκεκριμένη θεματολογία. Τα κεφάλαια 13,15 και 18 μέχρι 28 επικεντρώνονται στο σχολιασμό πολλών μη γραμμικών οπτικών φαινομένων και εφαρμογών, οι οποίες έχουν γοητεύσει τους ερευνητές τα τελευταία χρόνια. Σε πολλούς από αυτούς τους τομείς, νέα αποτελέσματα και ανακαλύψεις συνεχίζουν να αναφέρονται συχνά σε συνέδρια και επιστημονικά έντυπα. Μερικά σημεία του κειμένου, αναπόφευκτα θα θεωρηθούν απαρχαιωμένα αργά ή γρήγορα, ελπίζοντας όμως, ότι οι βασικές αρχές θα παραμένουν πάντα ίδιες.

Ως συνεισφορά στην επέτειο των 25 χρόνων από την ανακάλυψη του λέιζερ, αυτό το βιβλίο γράφτηκε για να παρουσιάσει ένα κομμάτι του πνευματικού πλούτου που έχει δημιουργήσει το λέιζερ. Είμαι βαθιά υποχρεωμένος στον καθηγητή Bloembergen για την εισαγωγή που μου έκανε στη μη γραμμική οπτική, κατά τη διάρκεια των αρχικών του βημάτων ανάπτυξης. Η διδασκαλία και η καθοδήγησή του, μου έχουν προσφέρει τη μεγαλύτερη ικανοποίηση που έχω βιώσει στον ερευνητικό τομέα τα τελευταία 20 χρόνια. Θα ήθελα να εκφράσω την ευγνωμοσύνη μου σε όλους μου τους φίλους και τους συναδέλφους που στηρίζανε την προσπάθειά μου να γράψω αυτό το βιβλίο. Θερμές ευχαριστίες στον S.J. Gu, του οποίου η κριτική κατά τη διάρκεια της ανάγνωσης του χειρόγραφου οδήγησε σε πολλές αλλαγές και διορθώσεις. Επίσης ευχαριστώ τους T. F. Heinz, X. D. Zhu, M. Mate, Y. Twu και πολλούς άλλους για την συμβολή τους στις διορθώσεις και στην βελτίωση του χειρόγραφου. Με σεβασμό στην προετοιμασία του χειρόγραφου, είμαι περισσότερο ευγνώμων στη Rita Jones, η οποία όχι μόνο δακτυλογράφησε ολόκληρο το χειρόγραφο, αλλά βοήθησε και στήριξε το έργο με κάθε πιθανό τρόπο. Χωρίς την αφοσιωμένη της προσπάθεια, η ολοκλήρωση αυτού του βιβλίου δεν θα ήταν δυνατή. Τέλος, η γυναίκα μου Hsiao-Lin αξίζει την θερμότερη εκτίμησή μου. Η υπομονή, η κατανόηση και το κουράγιο της με βοήθησαν με πολλές λεπτομέρειες, δίνοντάς μου πίστη και δύναμη στην πορεία συγγραφής αυτού του βιβλίου.

Y.R. Shen

Berkeley California

April 1984

<u>ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΑ</u>	<u>ΣΕΛ.</u>
1. Εισαγωγή	5-18
2. Μη γραμμικές οπτικές επιδεκτικότητες	19-51
3. Γενική περιγραφή της κυματικής διάδοσης σε μη γραμμικά μέσα	52-62
4. Ηλεκτρο-οπτικά και Μαγνητο-οπτικά φαινόμενα	63-66
5. Οπτική ανόρθωση και μαγνητισμός επαγόμενου πεδίου	67-77
6. Γένεση αθροίσματος συχνοτήτων	78-97
7. Γένεση αρμονικών	98-122
8. Γένεση διαφοράς συχνοτήτων	123-132
9. Παραμετρική ενίσχυση και ταλάντωση	133-163
10. Εξαναγκασμένη σκέδαση Raman	161-211
11. Εξαναγκασμένη σκέδαση φωτός	212-228
12. Απορρόφηση δυο φωτονίων	229-237

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 1 - Εισαγωγή

Η Φυσική θα ήταν ανιαρή και η ζωή πολύ πιο ελλιπής εάν όλα τα φυσικά φαινόμενα γύρω μας ήταν γραμμικά. Ευτυχώς, ζούμε σε ένα μη γραμμικό κόσμο. Και ενώ η γραμμικότητα ομορφαίνει τη Φυσική, η μη γραμμικότητα παρέχει ενθουσιασμό στον τομέα της Φυσικής. Αυτό το βιβλίο αφιερώνεται στη μελέτη των μη γραμμικών ηλεκτρομαγνητικών φαινομένων στο πεδίο της οπτικής, τα οποία συνήθως συμβαίνουν με τη χρήση ακτινών λέιζερ μεγάλης έντασης. Οι συνέπειες της μη γραμμικής στον ηλεκτρισμό και το μαγνητισμό είναι γνωστά από την εποχή του Maxwell. Ο κορεσμός του μαγνητισμού σε ένα σιδηρομαγνήτη, η εκφόρτιση ενός ηλεκτρικού αερίου, η ανόρθωση των ραδιοκυμάτων, και τα ηλεκτρικά χαρακτηριστικά των p-n επαφών, είναι μόνο μερικά από τα γνωστά παραδείγματα. Παρόλα αυτά, στον τομέα της οπτικής, η μη γραμμική οπτική έγινε θέμα μεγάλου κοινού ενδιαφέροντος, μόνο μετά την ανακάλυψη του λέιζερ. Από τότε έχει συμβάλλει αρκετά στην ανανέωση της παλιάς επιστήμης της οπτικής.

1.1 Ιστορικό υπόβαθρο

Το πείραμα γένεσης δεύτερης αρμονικής των Franken κ.α.¹, σηματοδότησε τη γέννηση του τομέα της μη γραμμικής οπτικής. Οι ερευνητές αυτοί, κατάφεραν να διαδώσουν μια δέσμη λέιζερ ρουμπινιού στα 6942 Å, μέσω ενός κρυστάλλου χαλαζία και παρατήρησαν την υπεριώδη ακτινοβολία από τον κρύσταλλο στα 3471 Å. Η ιδέα του Franken ήταν απλή. Η αρμονική παραγωγή ηλεκτρομαγνητικών κυμάτων σε μικρές συχνότητες ήταν γνωστή από πολύ καιρό πριν. Η αρμονική παραγωγή οπτικών κυμάτων ακολουθεί την ίδια αρχή και θα έπρεπε να είναι επίσης παρατηρήσιμο. Εν τούτοις, μια συνηθισμένη πηγή φωτός είναι πολύ αδύναμη για ένα τέτοιο πείραμα. Γενικά, χρειάζεται ένα ηλεκτρικό πεδίο με ένταση περίπου 1kV/cm για την επαγωγή μη γραμμικής απόκρισης σε ένα μέσο. Αυτό αντιστοιχεί σε μια δέσμη έντασης περίπου 2,5 kW/cm². Επομένως, απαιτείται μια δέσμη λέιζερ για την παρατήρηση της αρμονικής οπτικής παραγωγής.

Η παραγωγή δεύτερης αρμονικής είναι το πρώτο μη γραμμικό οπτικό φαινόμενο που παρατηρήθηκε ποτέ, στο οποίο ένα συμφασικό σήμα εισόδου παράγει συμφασικό σήμα εξόδου. Όμως, η μη γραμμική οπτική καλύπτει ένα ευρύτερο πεδίο. Καταπιάνεται γενικότερα με τη μη γραμμική αλληλεπίδραση του φωτός με την ύλη και εμπερικλείει

προβλήματα, όπως αλλαγές στις οπτικές ιδιότητες ενός μέσου, που προκαλούνται από το φως. Η παραγωγή δεύτερης αρμονικής τότε, δεν είναι το πρώτο μη γραμμικό οπτικό αποτέλεσμα που παρατηρήθηκε ποτέ. Η οπτική άντληση είναι σίγουρα ένα μη γραμμικό οπτικό φαινόμενο ευρέως γνωστό πριν την έλευση του λέιζερ. Η διέγερση συντονισμού της οπτικής άντλησης προκαλεί ανακατανομή των πληθυσμών και αλλάζει τις ιδιότητες ενός υλικού. Λόγω της ενίσχυσης που προκαλείται από τον συντονισμό, ακόμα και ένα αδύναμο φως αρκεί για να διαταράξει ισχυρά το σύστημα του υλικού και να κάνει το φαινόμενο εύκολα ανιχνεύσιμο. Μικρής ισχύος CW ατομικές λυχνίες χρησιμοποιήθηκαν στα αρχικά πειράματα οπτικής άντλησης σε ατομικά συστήματα. Η οπτική άντληση είναι επίσης ένα από τα πιο αποδοτικά συστήματα για τη δημιουργία ενός αντεστραμμένου πληθυσμού σε ένα σύστημα λέιζερ.

Γενικά, ωστόσο, η παρατήρηση μη γραμμικών οπτικών φαινομένων απαιτεί την εφαρμογή ακτινών λέιζερ. Πολυάριθμα μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα ανακαλύφθηκαν από το 1961, τα όποια όχι μόνο ενίσχυσαν εξαιρετικά τη γνώση μας για την αλληλεπίδραση του φωτός με την υλη, άλλα επίσης δημιούργησαν μια επαναστατική αλλαγή στην τεχνολογία της οπτικής. Κάθε μη γραμμική οπτική διαδικασία μπορεί να αποτελείται από δυο μέρη. Το έντονο φως αρχικά διεγείρει μια μη γραμμική απόκριση σε ένα υλικό, και μετά το υλικό αντιδρώντας, αλλάζει τα οπτικά πεδία με μη γραμμικό τρόπο. Το πρώτο διέπεται από τις καταστατικές εξισώσεις και το τελευταίο από την εξίσωση του Maxwell.

Σε αυτό το σημείο κάποιος μπορεί να ρωτήσει: είναι όλα τα υλικά βασικώς μη γραμμικά? Η απάντηση είναι 'ναι'. Ακόμα και στην περίπτωση του κενού αέρος, τα φωτόνια μπορούν να αλληλεπιδράσουν μέσω της πόλωσης κενού. Η μη γραμμικότητα είναι παρόλα αυτά, τόσο μικρή που με τις υπάρχουσες διαθέσιμες πηγές φωτός, η σκέδαση φωτονίου-φωτονίου και άλλα μη γραμμικά φαινόμενα στο κενό είναι ακόμα δύσκολο να παρατηρηθούν². Συνεπώς, από πρακτικής απόψεως, το κενό μπορεί να θεωρηθεί ως γραμμικό. Κατά την παρουσία ύλης, η μη γραμμικότητα ενισχύεται έντονα από την αλληλεπίδραση του φωτός με την υλη. Τότε, τα φωτόνια μπορούν να αλληλεπιδράσουν πολύ πιο αποτελεσματικά μέσω της πόλωσης του υλικού.

1,2 Οι εξισώσεις του Maxwell σε μη γραμμικά μέσα

Όλα τα ηλεκτρομαγνητικά φαινόμενα διέπονται από τις εξισώσεις του Maxwell για ηλεκτρικά και μαγνητικά πεδία $E(r,t)$ και $B(r,t)$.

$$\begin{aligned}
\nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\
\nabla \times \mathbf{B} &= \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}, \\
\nabla \cdot \mathbf{E} &= 4\pi\rho, \\
\nabla \cdot \mathbf{B} &= 0
\end{aligned} \tag{1.1}$$

Όπου τα $\mathbf{J}(\mathbf{r},t)$ και $\rho(\mathbf{r},t)$ είναι η πυκνότητα του ηλεκτρικού ρεύματος και του ηλεκτρικού φορτίου αντίστοιχα. Αυτά, σχετίζονται με την αρχή διατήρησης του φορτίου

$$\nabla \cdot \mathbf{J} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \tag{1.2}$$

Συχνά, μπορούμε να αναπτύξουμε το \mathbf{J} και το ρ σε σειρές πολυπόλων³:

$$\begin{aligned}
\mathbf{J} &= \mathbf{J}_0 + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + c \nabla \times \mathbf{M} + \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \cdot \mathbf{Q}) + \dots, \\
\rho &= \rho_0 - \nabla \cdot \mathbf{P} - \nabla (\nabla \cdot \mathbf{Q}) + \dots.
\end{aligned} \tag{1.3}$$

Εδώ, το \mathbf{P} , \mathbf{M} , \mathbf{Q} , ... είναι αντιστοίχως η ηλεκτρική πόλωση, η μαγνήτιση, η ηλεκτρική τετραπολική πόλωση, κ.τ.λ. Παρόλα αυτά, όπως οι Landau και Lifshitz⁴ έδειξαν, δεν έχει πραγματικά νόημα στην οπτική περιοχή, να οριστούν το \mathbf{J} και το ρ σε όρους πολυπόλων, επειδή οι συνήθεις ορισμοί των πολυπόλων είναι μη φυσικοί. Σε πολλές περιπτώσεις, για παράδειγμα στα μέταλλα και στους ημιαγωγούς, είναι πιο βολικό να χρησιμοποιηθούν το \mathbf{J} και το ρ απευθείας ως πηγαίοι όροι στην εξίσωση του Maxwell ή να χρησιμοποιηθεί μια γενική ηλεκτρική πόλωση \mathbf{P} που ορίζεται από τη σχέση

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}_{dc} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \tag{1.4}$$

όπου το \mathbf{J}_{dc} είναι η dc πυκνότητα του ρεύματος. Σε άλλες περιπτώσεις, το μαγνητικό δίπολο και πολυπόλα υψηλότερης τάξης μπορούν να αγνοηθούν. Τότε, η γενική ηλεκτρική πόλωση \mathbf{P} μετατρέπεται σε ηλεκτρο-δίπολο πόλωση \mathbf{P} . Η διαφορά μεταξύ του \mathbf{P} και \mathbf{P} είναι ότι το \mathbf{P} είναι μη τοπική συνάρτηση του πεδίου, ενώ το \mathbf{P} είναι τοπική. Σε αυτό το

βιβλίο, υποθέτουμε την προσέγγιση ηλεκτρικού διπόλου, όπου το $\mathbf{P}=\mathbf{P}$, εκτός και αν δηλωθεί διαφορετικά.

Με το (1.2) και το (1.4), η εξίσωση του Maxwell εμφανίζεται με την ακόλουθη μορφή:

$$\begin{aligned}\nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{B} &= \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}) + \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}_{dc}, \\ \nabla \cdot (\mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}) &= 0, \\ \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0\end{aligned}\quad (1.5)$$

όπου το \mathbf{P} είναι τώρα ο μόνος πηγαίος όρος που αλλάζει με το χρόνο. Γενικά, το \mathbf{P} είναι μια συνάρτηση του \mathbf{E} που περιγράφει πλήρως την ανταπόκριση της ύλης στο πεδίο, και είναι συχνά γνωστή ως η καταστατική εξίσωση. Εάν μπορούσαμε απλά να γράφαμε την καταστατική εξίσωση και να βρούμε τη λύση για το απορρέον σύνολο των εξισώσεων Maxwell με τις κατάλληλες συνοριακές συνθήκες, τότε όλα τα οπτικά φαινόμενα, θα ήταν προβλέψιμα και ευκόλως κατανοητά. Δυστυχώς αυτό είναι σπανίως πιθανόν. Πρέπει να καταφύγουμε σε εύλογες προσεγγίσεις, από φυσικής απόψεως, για να γίνουν εφικτές οι μαθηματικές λύσεις των εξισώσεων. Εδώ είναι που η φυσική μπαίνει στο παιχνίδι.

Συνήθως, η πόλωση \mathbf{P} είναι μια σύνθετη μη γραμμική συνάρτηση του \mathbf{E} . Στην περίπτωση της γραμμικής σχέσης ωστόσο, το \mathbf{P} παίρνει μια απλή γραμμική μορφή

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt' \quad (1.6)$$

όπου το $\chi^{(1)}$ είναι η γραμμική επιδεικτικότητα. Εάν το \mathbf{E} είναι ένα μονόχρωμο επίπεδο κύμα με $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t)$, τότε ο μετασχηματισμός Fourier του (1.6) αποδίδει την γνωστή σχέση:

$$\begin{aligned}\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{P}(\mathbf{k}, \omega) \\ &= \chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega)\end{aligned}\quad (1.7)$$

με

$$\chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(\mathbf{r}, t) \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + i\omega t) d\mathbf{r} dt. \quad (1.8)$$

Η γραμμική διηλεκτρική σταθερά $\epsilon(\mathbf{k}, \omega)$ σχετίζεται με το $\chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega)$ με τη σχέση:

$$\epsilon(\mathbf{k}, \omega) = 1 + 4\pi\chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega). \quad (1.9)$$

Στην προσέγγιση ηλεκτρικού διπόλου, το $\chi^{(1)}(\mathbf{r}, t)$ είναι ανεξάρτητο από το \mathbf{r} , οπότε και το $\chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega)$, αλλά και το $\epsilon(\mathbf{k}, \omega)$ είναι και τα δυο ανεξάρτητα από το \mathbf{k} .

Στη περίπτωση της μη γραμμικότητας, που το \mathbf{E} είναι επαρκώς αδύναμο, η πόλωση \mathbf{P} ως συνάρτηση του \mathbf{E} μπορεί να αναπτυχθεί σε μια σειρά δυνάμεων του \mathbf{E} :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = & \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t') d\mathbf{r}' dt \\ & + \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(2)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1; \mathbf{r} - \mathbf{r}_2, t - t_2) : \mathbf{E}(\mathbf{r}_1, t_1) \\ & \times \mathbf{E}(\mathbf{r}_2, t_2) d\mathbf{r}_1 dt_1 d\mathbf{r}_2 dt_2 \\ & + \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(3)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1; \mathbf{r} - \mathbf{r}_2, t - t_2; \\ & \quad \mathbf{r} - \mathbf{r}_3, t - t_3) : \mathbf{E}(\mathbf{r}_1, t_1) \\ & \times \mathbf{E}(\mathbf{r}_2, t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}_3, t_3) d\mathbf{r}_1 dt_1 d\mathbf{r}_2 dt_2 d\mathbf{r}_3 dt_3 + \dots \quad (1.10) \end{aligned}$$

όπου το $\chi^{(n)}$ είναι η μη γραμμική ευαισθησία νιοστής τάξεως. Εάν το \mathbf{E} μπορεί να εκφραστεί ως ένα σύνολο μονόχρωμων επίπεδων κυμάτων

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_i \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega), \quad (1.11)$$

τότε, όπως και στη γραμμική περίπτωση, ο μετασχηματισμός Fourier δίνει

$$\mathbf{P}(\mathbf{k}, \omega) = \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) + \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{k}, \omega) + \dots \quad (1.12)$$

με

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) &= \chi^{(1)}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega), \\ \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{k}, \omega) &= \chi^{(2)}(\mathbf{k} = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j, \omega = \omega_i + \omega_j) : \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j), \\ \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{k}, \omega) &= \chi^{(3)}(\mathbf{k} = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j + \mathbf{k}_l, \omega = \omega_i + \omega_j + \omega_l) \\ & \quad : \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j) \mathbf{E}(\mathbf{k}_l, \omega_l), \end{aligned} \quad (1.13)$$

και

$$\begin{aligned}
\chi^{(n)}(\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \dots + \mathbf{k}_n, \omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) \\
= \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(n)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_1, t - t_1; \dots; \mathbf{r} - \mathbf{r}_n, t - t_n) \\
\times e^{-i[\mathbf{k}_1(\mathbf{r}-\mathbf{r}_1) - \omega_1(t-t_1) + \dots + \mathbf{k}_n(\mathbf{r}-\mathbf{r}_n) - \omega_n(t-t_n)]} d\mathbf{r}_1 dt_1 \dots d\mathbf{r}_n dt_n
\end{aligned} \quad (1.14)$$

Ξανά, στην προσέγγιση ηλεκτρικού διπόλου, το $\chi^{(n)}(\mathbf{r}, t)$ είναι ανεξάρτητο του \mathbf{r} ή το $\chi^{(n)}(\mathbf{k}, \omega)$ ανεξάρτητο του \mathbf{k} .

Οι γραμμικές και μη γραμμικές επιδεικτικότητες χαρακτηρίζουν τις οπτικές ιδιότητες ενός μέσου. Εάν το $\chi^{(n)}$ είναι γνωστό για ένα δεδομένο μέσο, τότε τουλάχιστον βάσει αρχής, τα νιοστής τάξεως μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα σε ένα υλικό, μπορούν να προβλεφτούν από την εξίσωση του Maxwell (1.5). Φυσικώς, το $\chi^{(n)}$ σχετίζεται με την μικροσκοπική δομή του μέσου και μπορεί να εκτιμηθεί σωστά μόνο με πλήρεις κβαντομηχανικούς υπολογισμούς. Παρόλα αυτά, χρησιμοποιούνται συνήθως απλά μοντέλα για την απεικόνιση της πηγής που προκαλεί την οπτική μη γραμμικότητα και κάποιες χαρακτηριστικές ιδιότητες του $\chi^{(n)}$. Σε αυτό το σημείο, εξετάζουμε το μοντέλο μη αρμονικού ταλαντωτή και το μοντέλο αερίων ελεύθερου ηλεκτρονίου.

1.3 Μοντέλο μη αρμονικού ταλαντωτή

Σε αυτό το μοντέλο, μια ουσία αποτελείται από ένα σύνολο N κλασσικών μη αρμονικών ταλαντωτών ανά μονάδα όγκου. Ο ταλαντωτής περιγράφει φυσικώς ένα ηλεκτρόνιο προσκολλημένο σε έναν πυρήνα ή μια υπέρυθρα-ενεργη μοριακή δόνηση. Η εξίσωση της κίνησης κατά την παρουσία κάποιας κινητήριας δύναμης είναι

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \Gamma \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x + ax^2 = F. \quad (1.15)$$

Εξετάζουμε εδώ την απόκριση του ταλαντωτή σε ένα εφαρμοσμένο πεδίο με Fourier συνιστώσες στις συχνότητες $\pm \omega_1$ και $\pm \omega_2$:

$$F = \frac{q}{m} [E_1(e^{-i\omega_1 t} + e^{i\omega_1 t}) + E_2(e^{-i\omega_2 t} + e^{i\omega_2 t})]. \quad (1.16)$$

Ο μη αρμονικός όρος ax^2 στην εξίσωση (1.15) θεωρείται αρκετά μικρός ώστε να μπορεί να αντιμετωπιστεί σαν διατάραξη στην διαδοχική προσέγγιση εξεύρεσης λύσης:

$$x = x^{(1)} + x^{(2)} + x^{(3)} + \dots \quad (1.17)$$

Η επαγωγική ηλεκτρική πόλωση είναι απλά

$$\mathbf{P} = Nq\mathbf{x}. \quad (1.18)$$

Η λύση πρώτης τάξεως μπορεί να βρεθεί από την γραμμικοποιημένη εξίσωση της (1.15):

$$\begin{aligned} \mathbf{x}^{(1)} &= \mathbf{x}^{(1)}(\omega_1) + \mathbf{x}^{(1)}(\omega_2) + \text{c.c.} \\ \mathbf{x}^{(1)}(\omega_i) &= \frac{(q/m)E_i}{(\omega_0^2 - \omega_i^2 - i\omega_i\Gamma)} e^{-i\omega_i t} \end{aligned} \quad (1.19)$$

όπου το c.c. είναι συζυγής μιγαδικός. Τότε, η λύση δεύτερης τάξης εξασφαλίζεται από το (1.15) με την προσέγγιση του $a\mathbf{x}^2$ από το $a\mathbf{x}^{(1)2}$.

$$\begin{aligned} \mathbf{x}^{(2)} &= \mathbf{x}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) + \mathbf{x}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) + \mathbf{x}^{(2)}(2\omega_1) + \mathbf{x}^{(2)}(2\omega_2) + \mathbf{x}^{(2)}(0) + \text{c.c} \\ \mathbf{x}^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2) &= \frac{-2a(q/m)^2 E_1 E_2}{(\omega_0^2 - \omega_1^2 - i\omega_1\Gamma)(\omega_0^2 - \omega_2^2 \mp i\omega_2\Gamma)} \\ &\quad \times \frac{1}{[\omega_0^2 - (\omega_1 \pm \omega_2)^2 - i(\omega_1 \pm \omega_2)\Gamma]} e^{-i(\omega_1 \pm \omega_2)t} \\ \mathbf{x}^{(2)}(2\omega_i) &= \frac{-a(q/m)^2 E_i^2}{(\omega_0^2 - \omega_i^2 - i\omega_i\Gamma)^2 (\omega_0^2 - 4\omega_i^2 - i2\omega_i\Gamma)} e^{-i2\omega_i t} \\ \mathbf{x}^{(2)}(0) &= -a\left(\frac{q}{m}\right)^2 \frac{1}{\omega_0^2} \left(\frac{1}{\omega_0^2 - \omega_1^2 - i\omega_1\Gamma} + \frac{1}{\omega_0^2 - \omega_2^2 - i\omega_2\Gamma} \right) \end{aligned} \quad (1.20)$$

Με διαδοχικές επαναλήψεις, μπορούν να εξασφαλιστούν λύσεις μεγαλύτερης τάξεως. Όπως φαίνεται από τη λύση δεύτερης τάξεως, συνιστώσες νέας συχνότητας της πόλωσης στο $\omega_1 \pm \omega_2$, $2\omega_1$, $2\omega_2$ και στο 0 εμφανίζονται μέσω τετραγωνικής αλληλεπίδρασης του πεδίου με τον ταλαντωτή, μέσω του μη αρμονικού όρου. Οι ταλαντώμενες συνιστώσες πόλωσης θα εκπέμψουν ακτινοβολία και θα δημιουργήσουν νέα ηλεκτρομαγνητικά κύματα στο $\omega_1 \pm \omega_2$, $2\omega_1$ και στο $2\omega_2$.

Οπότε, η γένεση συχνότητας αθροίσματος και διαφοράς και η γένεση δεύτερης αρμονικής εξηγούνται με ευκολία. Η εμφάνιση της συνιστώσας πόλωσης μηδενικής συχνότητας είναι γνωστή ως οπτική ανόρθωση. Γενικά, συνιστώσες της συχνότητας στο $\omega = n_1\omega_1 \pm n_2\omega_2$, με τα n_1 και n_2 να είναι ακέραιοι, αναμένονται σε λύσεις ανώτερης τάξης. Σε αυτό το μοντέλο, η μη αρμονικότητα a προσδιορίζει την ισχύ της μη γραμμικής αλληλεπίδρασης. Η αντιμετώπιση του $a\mathbf{x}^2$ ως μια μικρή διαταραχή στον προηγούμενο

υπολογισμό, ισοδυναμεί με την υπόθεση ότι το E είναι μικρό και το P μπορεί να αναπτυχθεί σε μια σειρά δυνάμεων του E. Μπορούμε να δώσουμε μια πρόχειρη εκτίμηση ως προς το πώς η μη γραμμική πόλωση θα πρέπει να μειώνεται με αύξουσα τάξη. Υποθέτοντας την περίπτωση όπου δεν έχουμε συντονισμό με το $\omega_0 \gg \omega_1$ και το ω_2 , βρίσκουμε από το (1.19) και το (1.20),

$$\left| \frac{P^{(2)}}{P^{(1)}} \right| \sim \left| \frac{qaE}{m\omega_0^4} \right|, \quad (1.21)$$

Για ένα ηλεκτρόνιο δεσμευμένο από ένα πυρήνα, εάν το x είναι τόσο μεγάλο που η αρμονική δύναμη $m\omega_0^2 x$ και η μη αρμονική δύναμη max^2 να έχουν μέγεθος ίδιας τάξεως, τότε και οι δύο θα έχουν μέγεθος ίδιας τάξεως, όσο η συνολική δεσμευμένη δύναμη στο ηλεκτρόνιο $|qE_{at}|$:

$$|qE_{at}| \sim m\omega_0^2 x \sim max^2 \quad \text{ή} \quad |qE_{at}| \sim \frac{m\omega_0^4}{a}. \quad (1.22).$$

Η εξίσωση (1.21) τότε γίνεται

$$\left| \frac{P^{(2)}}{P^{(1)}} \right| \sim \left| \frac{E}{E_{at}} \right|. \quad (1.23)$$

Στην πραγματικότητα, μπορεί να αποδειχθεί γενικώς ότι

$$\left| \frac{P^{(n+1)}}{P^{(n)}} \right| \sim \left| \frac{E}{E_{at}} \right| \quad (1.24)$$

έτσι ώστε $|E/E_{at}|$ να δρα σαν παράμετρος επέκτασης στον υπολογισμό της διαταραχής. Συνήθως, $E_{at} \sim 3 \times 10^8$ V/cm. Το πεδίο E για μια δέσμη λέιζερ των $2,5\text{-W/cm}^2$ είναι μόνο 30 V/cm με το $|E/E_{at}| \sim 10^{-7}$. Η μη γραμμική πόλωση είναι πολύ πιο αδύναμη από τη γραμμική πόλωση. Αυτό δείχνει ότι η παρατήρηση ενός μη γραμμικού οπτικού φαινομένου απαιτεί υψηλής έντασης δέσμες λέιζερ.

Η σχέση (1.24) παρόλα αυτά, ισχύει μόνο για οπτικές συχνότητες μακριά από το συντονισμό. Κοντά στις συχνότητες συντονισμού, οι παρονομαστές συντονισμού μπορούν να αυξήσουν δραστικά το λόγο $|P^{(n+1)}/P^{(n)}|$. Συνεπώς, τα μη γραμμικά φαινόμενα, μπορούν να ανιχνευθούν με πολύ πιο αδύναμη ένταση φωτός. Η οπτική άντληση είναι ένα τέτοιο

παράδειγμα. Με την ενίσχυση λόγω συντονισμού, μπορεί ακόμα να ισχύσει ότι $|P^{(n+1)}/P^{(n)}| > 1$. Όταν ισχύει αυτό, το ανάπτυγμα της διαταραχής δεν είναι πλέον σε ισχύ, και η πλήρης μη γραμμική έκφραση για το P ως συνάρτηση του E πρέπει να συμπεριληφθεί στην εξίσωση. Το πρόβλημα τότε εμπίπτει στο πεδίο της δυνατής αλληλεπίδρασης του φωτός με την ύλη.

1.4 Ελεύθερα ηλεκτρόνια στα αέρια

Ένα απλό, αλλά ρεαλιστικό μοντέλο για την απεικόνιση της μη γραμμικότητας σε ένα μέσο είναι το μοντέλο ελεύθερων ηλεκτρονίων στα αέρια. Περιγράφει όπως πρέπει τις οπτικές ιδιότητες του πλάσματος ενός ηλεκτρονίου. Η απλοποιημένη εκδοχή του μοντέλου ξεκινά με την εξίσωση της κίνησης ενός ηλεκτρονίου

$$\frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} = -\frac{e}{m} \left(\mathbf{E} + \frac{1}{c} \mathbf{v} \times \mathbf{B} \right). \quad (1.25)$$

Η απόσβεση εδώ θεωρείται αμελητέα για λόγους απλούστευσης. Είναι ξεκάθαρο, ότι, ο μόνος μη γραμμικός όρος σε αυτή την εξίσωση είναι ο όρος της δύναμης Lorentz. Εφόσον το $v \ll c$ σε ένα πλάσμα, η δύναμη Lorentz είναι πολύ πιο αδύναμη από τη δύναμη Coulomb και τότε το $(e/mc)v \times B$ στην (1.25) μπορεί να αντιμετωπιστεί σαν μια διατάραξη στην διαδοχική προσέγγιση της λύσης. Για

$$\mathbf{E} = \mathcal{E}_1 e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - i\omega_1 t} + \mathcal{E}_2 e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - i\omega_2 t} + \text{c.c.},$$

έχουμε

$$\begin{aligned} \mathbf{r}^{(1)}(\omega_i) &= \frac{e}{m\omega_i^2} \mathcal{E}_i e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}^{(0)} - i\omega_i t} + \text{c.c.}, \\ \mathbf{r}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) &= \frac{-ie^2}{m^2 \omega_1 \omega_2 (\omega_1 + \omega_2)^2} \\ &\quad \times [\mathcal{E}_1 \times (\mathbf{k}_2 \times \mathcal{E}_2) + \mathcal{E}_2 \times (\mathbf{k}_1 \times \mathcal{E}_1)] \\ &\quad \times e^{i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}^{(0)} - i(\omega_1 + \omega_2)t} + \text{c.c.}, \end{aligned} \quad (1.26)$$

και ούτω κάθε εξής. Για ένα ομοιογενές πλάσμα με πυκνότητα ηλεκτρονικού φορτίου ρ , η πυκνότητα του ρεύματος δίνεται από

$$\begin{aligned} \mathbf{J} &= \mathbf{J}^{(1)} + \mathbf{J}^{(2)} + \dots \\ &= \rho \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{r}^{(1)} + \mathbf{r}^{(2)} + \dots) \end{aligned} \quad (1.27)$$

Με, για παράδειγμα,

$$\mathbf{J}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \rho \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{r}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2),$$

και ούτω κάθε εξής. Αυτό δείχνει με σαφήνεια, πώς ένα αέριο ηλεκτρονίου μπορεί να συμπεριφερθεί μη γραμμικά στο εισερχόμενο φως μέσω του όρου Lorentz.

Σε μια πιο αυστηρή αντιμετώπιση ενός αερίου ηλεκτρονίου, πρέπει επίσης να λάβουμε υπόψη μας τις χωρικές μεταβολές της πυκνότητας ρ του ηλεκτρονίου και της ταχύτητας \mathbf{v} . Δυο εξισώσεις, η εξίσωση της κίνησης και η εξίσωση συνέχειας,⁵ είναι τώρα αναγκαίες για την περιγραφή του πλάσματος ηλεκτρονίου:

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\frac{\nabla p}{m\rho} - \frac{e}{m} \left(\mathbf{E} + \frac{1}{c} \mathbf{v} \times \mathbf{B} \right)$$

και

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}) = 0 \quad (1.28)$$

Όπου το p είναι η πίεση και το m είναι η μάζα του ηλεκτρονίου. Ο όρος μεταβολής της πίεσης στην εξίσωση της κίνησης είναι υπεύθυνος για τη διασπορά του πλάσματος συντονισμού, αλλά στην πιο κάτω $\nabla p = 0$ εξίσωση υποθέτουμε ότι για λόγους απλούστευσης. Τότε, συνδυάζοντας την με την εξίσωση (1.28), έχουμε το σετ των εξισώσεων του Maxwell.

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \\ \nabla \times \mathbf{B} - \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} &= \frac{4\pi \mathbf{J}}{c} = \frac{4\pi \rho \mathbf{v}}{c}, \\ \nabla \cdot \mathbf{E} &= 4\pi (\rho - \rho^{(0)}), \end{aligned}$$

και

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (1.29)$$

Θεωρούμε εδώ ότι υπάρχει ένα σταθερό υπόβαθρο θετικού φορτίου στο πλάσμα για να εξασφαλιστεί η ουδετερότητα φορτίου στην απουσία εξωτερικής διατάραξης. Διαδοχικές

προσεγγίσεις μπορούν να χρησιμοποιηθούν για να βρεθεί το \mathbf{J} σαν συνάρτηση του \mathbf{E} από το (1.28) και το (1.29). Έστω⁶

$$\begin{aligned}\boldsymbol{\rho} &= \boldsymbol{\rho}^{(0)} + \boldsymbol{\rho}^{(1)} + \boldsymbol{\rho}^{(2)} + \dots, \\ \mathbf{v} &= \mathbf{v}^{(1)} + \mathbf{v}^{(2)} + \dots, \\ \text{και} \\ \mathbf{j} &= \mathbf{j}^{(1)} + \mathbf{j}^{(2)} + \dots\end{aligned}\quad (1.30)$$

$$\begin{aligned}\text{με} \\ \mathbf{j}^{(1)} &= \boldsymbol{\rho}^{(0)} \mathbf{v}^{(1)} \\ \text{και} \\ \mathbf{j}^{(2)} &= \boldsymbol{\rho}^{(0)} \mathbf{v}^{(2)} + \boldsymbol{\rho}^{(1)} \mathbf{v}^{(1)}.\end{aligned}\quad (1.31)$$

Θα βρούμε μια έκφραση για το $\mathbf{j}^{(2)}(2\omega)$ σαν παράδειγμα, υποθέτοντας ότι

$$\mathbf{E} = \boldsymbol{\mathcal{E}} \times \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t) \quad . \text{ Αντικαθιστώντας την (1.30) στο (1.28) και το}$$

(1.29) έχουμε

$$\begin{aligned}\frac{\partial \mathbf{v}^{(1)}(\omega)}{\partial t} &= -i\omega \mathbf{v}^{(1)} = -\frac{e}{m} \mathbf{E}, \\ \frac{\partial \boldsymbol{\rho}^{(1)}(\omega)}{\partial t} &= -i\omega \boldsymbol{\rho}^{(1)} = -\nabla \cdot (\boldsymbol{\rho}^{(0)} \mathbf{v}^{(1)}) \\ \nabla \cdot \mathbf{E} &= 4\pi \boldsymbol{\rho}^{(1)}(\omega), \\ \frac{\partial \mathbf{v}^{(2)}(2\omega)}{\partial t} &= -i2\omega \mathbf{v}^{(2)} = -(\mathbf{v}^{(1)} \cdot \nabla) \mathbf{v}^{(1)} - \frac{e}{mc} \mathbf{v}^{(1)} \times \mathbf{B}.\end{aligned}\quad (1.32)$$

Η πυκνότητα του φορτίου δεύτερης τάξεως δίνεται τότε από:

$$\begin{aligned}\mathbf{J}^{(2)}(2\omega) &= \frac{i\rho^{(0)}}{2\omega} \left[\frac{e^2}{m^2\omega^2} (\mathbf{E} \cdot \nabla) \mathbf{E} + \frac{ie^2}{m^2\omega c} \mathbf{E} \times \mathbf{B} \right] \\ &+ \frac{e}{i4\pi m\omega} (\nabla \cdot \mathbf{E}) \mathbf{E}.\end{aligned}\quad (1.33)$$

Ο τελευταίος όρος στην (1.33) έχει τις πιο κάτω ιδιότητες:

$$\begin{aligned}
\frac{e}{i4\pi m\omega}(\nabla \cdot \mathbf{E})\mathbf{E} &= -\frac{e}{m\omega^2}[\nabla \cdot (\rho^{(0)}\mathbf{v}^{(1)})]\mathbf{E} \\
&= \frac{ie^2}{m^2\omega^3}[\nabla \cdot (\rho^{(0)}\mathbf{E})]\mathbf{E} \\
&= \frac{ie^2}{m^2\omega^3}\left[\frac{\nabla\rho^{(0)} \cdot \mathbf{E}}{1 - \omega_p^2/\omega^2}\right]\mathbf{E}
\end{aligned} \tag{1.34}$$

Όπου το $\omega_p=(4\pi\rho^{(0)}e/m)^{1/2}$ είναι η συχνότητα συντονισμού του πλάσματος. Με την (1.34), η $\mathbf{B} = (c/i\omega)\nabla \times \mathbf{E}$ και η σχέση των διανυσμάτων $\mathbf{E} \times (\nabla \times \mathbf{E}) + (\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E} = \frac{1}{2}\nabla(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E})$, η τρέχουσα πυκνότητα του φορτίου στην (1.33) μπορεί να γραφτεί ως:

$$\begin{aligned}
\mathbf{J}^{(2)}(2\omega) &= \frac{i\rho^{(0)}e^2}{4m^2\omega^3}\nabla(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) + \frac{ie^2}{m^2\omega^3}[\nabla \cdot (\rho^{(0)}\mathbf{E})]\mathbf{E} \\
&= \frac{i\rho^{(0)}e^2}{4m^2\omega^3}\nabla(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) + \frac{ie^2}{m^2\omega^3}\left[\frac{\nabla\rho^{(0)} \cdot \mathbf{E}}{1 - \omega_p^2/\omega^2}\right]\mathbf{E}.
\end{aligned} \tag{1.35}$$

Η εξίσωση (1.33) δείχνει σαφώς ότι εκτός από τον όρο Lorentz, υπάρχουν επίσης όροι που σχετίζονται με τη μεταβολή του \mathbf{E} στον χώρο. Στην πραγματικότητα προκύπτουν από την ανομοιομορφία του πλάσματος. Σε ένα ομοιόμορφο πλάσμα, το $\nabla\rho^{(0)} = 0$ και τότε το $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ από το (1.34). Αυτό σημαίνει ότι το \mathbf{k} είναι κάθετο στο \mathbf{E} και συνεπώς το $(\mathbf{E} \cdot \nabla)\mathbf{E}$ επίσης μηδενίζεται. Ο όρος Lorentz είναι τότε ο μόνος όρος στο $\mathbf{J}^{(2)}(2\omega)$.

Η πυκνότητα του επαγωγικού ρεύματος $\mathbf{J}^{(2)}(2\omega)$ θα πρέπει τώρα να δρα σαν μια πηγή για την δημιουργία δεύτερης αρμονικής στο πλάσμα. Σε ένα ομοιόμορφο πλάσμα με μονή δέσμη αντλίας, το $\mathbf{J}^{(2)}(2\omega) \propto \mathbf{E} \times \mathbf{B}$ είναι μόνο κατά μήκος της διεύθυνσης διάδοσης της δέσμης. Εφόσον ένα ρεύμα ταλάντωσης δεν μπορεί να εκπέμψει κατά μήκος, δεν αναμένεται σύμφωνη γένεση δεύτερης αρμονικής κατά μήκος του άξονα της δέσμης διάδοσης από τον συνολικό όγκο ενός ομοιόμορφου πλάσματος. Στον όγκο ενός ανομοιόμορφου πλάσματος ή στην συνοριακή επιφάνεια ενός ομοιόμορφου πλάσματος, παρόλο που, είναι πιθανόν να βρεθεί γένεση δεύτερης αρμονικής από τον μη μηδενισμό του $\nabla\rho^{(0)}$.

Η εξίσωση (1.35) δείχνει πως όταν $\nabla\rho^{(0)} \neq 0$ η μη γραμμική απόκριση της ύλης $\mathbf{J}^{(2)}(2\omega)$ ενισχύεται σε μεγάλο βαθμό εάν το ω είναι κοντά στον συντονισμό του

πλάσματος. Από την γενική αρχή, η μη γραμμική απόκριση ενός μέσου ενισχύεται συντονιστικά όταν το επερχόμενο πεδίο κτυπά τον συντονισμό του μέσου. Θα έπρεπε επίσης να αναμένεται μια ενίσχυση συντονισμού στην γένεση δεύτερης αρμονικής όταν το 2ω είναι σε συντονισμό. Στην πραγματικότητα, αυτό εμφανίζεται από την απόκριση του πεδίου δεύτερης αρμονικής στο $J^{(2)}(2\omega)$. Όσο το $2\omega \rightarrow \omega_p$, η πυκνότητα του ρεύματος θα διεγείρει το διαμήκες κύμα στο 2ω συντονιστικά.

Όπως φαίνεται στο (1.33) ή στο (1.35), η πυκνότητα του ρεύματος $J^{(2)}(2\omega)$ εξαρτάται αποκλειστικά από την χωρική μεταβολή του E . Στην πραγματικότητα, χρησιμοποιώντας ταυτότητες διανυσμάτων, η έκφραση του $J^{(2)}(2\omega)$ στην (1.33) ή στην (1.35) μπορεί να γίνει στη μορφή⁷ $\mathbf{J}^{(2)}(2\omega) = c \nabla \times (\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) - i2\omega \mathbf{E} \cdot \mathbf{E}$. Συγκρίνοντάς το με το (1.3), αναγνωρίζουμε ότι οι δύο όροι στο $J^{(2)}(2\omega)$ αντιπροσωπεύουν τη συμβολή του μαγνητικού διπόλου και του ηλεκτρικού τετρα-πόλου, αντίστοιχα. Δεν προκαλείται πόλωση ηλεκτρικού διπόλου σε ένα πλάσμα. Επίσης, η ηλεκτρική τετρα-πολική πόλωση που προκαλείται, εξαρτάται από την διεύθυνση του ηλεκτρικού πεδίου, και συνεπώς δεν μπορεί να εμφανιστεί στον όγκο ενός ομοιόμορφου πλάσματος.

Το μοντέλο ελεύθερου ηλεκτρονίου, μπορεί εδώ να εφαρμοστεί σε έναν αριθμό πραγματικών προβλημάτων. Πρώτον, μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να περιγράψει τις οπτικές μη γραμμικότητες, λόγω πλάσματος στα μέταλλα και στους ημιαγωγούς. Η παραγωγή δεύτερης αρμονικής από μεταλλικές επιφάνειες είναι ήδη ορατή.⁶ Τότε, με κάποια τροποποίηση, έτσι ώστε να ληφθεί υπόψη η καθαρή διανομή φορτίου, ο μη μηδενικός όρος $\nabla \cdot \mathbf{E}$, και ούτω κάθε εξής, μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί για την περιγραφή οπτικών μη γραμμικοτήτων ενός πλάσματος αερίου. Πολλά μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα σε πλάσμα αερίου έχουν παρατηρηθεί. Αυτά θα συζητηθούν με παραπάνω λεπτομέρεια στο Κεφάλαιο 28. Το μοντέλο έχει επίσης χρησιμοποιηθεί για την περιγραφή της παρατήρησης μη γραμμικών φαινομένων σε κρυστάλλους στην X-ray περιοχή.⁸ Η δεσμευμένη ενέργεια των ηλεκτρονίων είναι πολύ πιο αδύναμη από την X-ray ενέργεια των φωτονίων και ως αποτέλεσμα, τα ηλεκτρόνια σε κρυστάλλους θα αποκριθούν στις ακτίνες X-ray σα να ήταν ελεύθερα.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters & G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* 7, 118 (1961).
2. Δες για παράδειγμα, G. Rosen & F.C. Whitmore, *Phys. Rev.* 137B, 1357 (1965).
3. J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (McGraw-Hill, New York, 1975), 2nd ed., p. 739, W.K. H. Panofsky & M. Phillips, *Classical Electricity and Magnetism* (Addison-Wesley, Reading, Mass, 1962), p. 131.
4. L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Electrodynamics in Continuous Media* (Pergamon Press, New York, 1960), p. 252.
5. J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (McGraw-Hill, New York, 1975), 2nd ed., p. 469.
6. N. Bloembergen, R. K. Chang, S.S. Jha, and C. H. Lee, *Phys.Rev* 174, 813 (1968).
7. P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 130, 919 (1963).
8. P. E. Eisenberger & S.L. McCall, *Phys. Rev. Lett* 26, 684 (1971).

Βιβλιογραφία

- Bloembergen, N., *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
- Bloembergen, N., *Rev. Mod. Phys.* 54, 685 (1982).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 2 – ΜΗ ΓΡΑΜΜΙΚΕΣ ΟΠΤΙΚΕΣ ΕΠΙΔΕΚΤΙΚΟΤΗΤΕΣ

Για μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα χαμηλής τάξης, οι μη γραμμικές πολώσεις και οι μη γραμμικές επιδεκτικότητες χαρακτηρίζουν τη μη γραμμική οπτική απόκριση ενός μέσου σε σταθερή κατάσταση και διέπουν τη μη γραμμική κυματική διάδοση στο μέσο αυτό. Μέσα από το Κεφάλαιο 1 κατέστη φανερό, πώς μπορεί να υπολογιστεί η μη γραμμική απόκριση για δυο ιδανικά συστήματα. Στο Κεφάλαιο 2 γίνεται μια εκτενέστερη συζήτηση για τις μη γραμμικές επιδεκτικότητες, ξεκινώντας από τη μικροσκοπική θεωρία.

2.1 Μορφοποίηση πίνακα πυκνότητας

Οι οπτικές μη γραμμικές επιδεκτικότητες αποτελούν χαρακτηριστικές ιδιότητες ενός μέσου και εξαρτώνται από την λεπτομερή ηλεκτρονική και μοριακή δομή του μέσου. Για να βρεθούν οι μικροσκοπικές εκφράσεις για τις μη γραμμικές επιδεκτικότητες, απαιτείται υπολογισμός μέσω κβαντικής μηχανικής¹. Ο φορμαλισμός του πίνακα πυκνότητας είναι πιθανώς η πιο βολική λύση για έναν τέτοιο υπολογισμό και είναι σίγουρα η σωστότερη, σε περιπτώσεις χαλάρωσης διεγέρσεων².

Θέτουμε ως ψ την κυματική συνάρτηση του υλικού συστήματος υπό την επίδραση ηλεκτρομαγνητικού πεδίου. Κατόπιν, ο τελεστής του πίνακα πυκνότητας καθορίζεται ως ο μέσος συνόλου του προϊόντος των διανυσμάτων κατάστασης ket και bra

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi| \quad (2.1)$$

και ο μέσος συνόλου της φυσικής ποσότητας P δίνεται από τη σχέση

$$\begin{aligned} \langle\mathbf{P}\rangle &= \overline{\langle\psi|\mathbf{P}|\psi\rangle} \\ &= \text{Tr}(\rho\mathbf{P}) \end{aligned} \quad (2.2)$$

Για τον υπολογισμό μας εδώ, το P αντιστοιχεί στην ηλεκτρική πόλωση. Από τον ορισμό της ρ στη (2.1) και από την εξίσωση Schrödinger για $|\psi\rangle$, μπορούμε να εξάγουμε την εξίσωση κίνησης για ρ ,

$$\frac{\partial\rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}, \rho], \quad (2.3)$$

γνωστή και ως εξίσωση Liouville. Η Χαμιλτονιανή \mathcal{H} αποτελείται από 3 μέρη:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{int}} + \mathcal{H}_{\text{random}}. \quad (2.4)$$

Στην ημικλασική προσέγγιση, η H_0 είναι η Χαμιλτονιανή του αδιατάρακτου συστήματος με ιδιοκαταστάσεις $|n\rangle$ και ιδιοενέργειες E_n , έτσι ώστε η $H_0 |n\rangle = E_n |n\rangle$, H_{int} να είναι η Χαμιλτονιανή αλληλεπίδρασης, η οποία θα περιγράψει την αλληλεπίδραση του φωτός με το υλικό και η H_{random} να είναι η Χαμιλτονιανή που περιγράφει την τυχαία διαταραχή στο σύστημα, που προκαλείται από θερμικές δεσμεύσεις του συστήματος. Η Χαμιλτονιανή αλληλεπίδρασης στην προσέγγιση του ηλεκτρικού διπόλου δίνεται από τη σχέση $H_{\text{int}} = e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$. (2.5)

Εδώ, μελετάται, μόνο η ηλεκτρονική συνεισφορά στις επιδεκτικότητες. Όσον αφορά στην ιονική συνεισφορά, θα έπρεπε να αντικαταστήσουμε το $e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$ με το $\sum_i q_i \mathbf{R}_i \cdot \mathbf{E}$, με q_i και \mathbf{R}_i να είναι το φορτίο και η θέση του ιόντος, αντίστοιχα. Η H_{random} είναι υπεύθυνη για τις χαλαρώσεις των υλικών διεγέρσεων ή με άλλα λόγια, για την επαναφορά της χαλάρωσης της διαταραγμένης ρ , στη θερμική της ισορροπία. Τότε, μπορούμε να εκφράσουμε την (2.3) ως εξής^{3,4}:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{int}}, \rho] + \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{\text{relax}} \quad (2.6)$$

$$\left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{\text{relax}} \equiv \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}_{\text{random}}, \rho]. \quad (2.7)$$

με

Εάν οι ιδιοκαταστάσεις $|n\rangle$ χρησιμοποιηθούν τώρα ως διανύσματα βάσης στον υπολογισμό και το $|\psi\rangle$ γραφτεί ως γραμμικός συνδυασμός του $|n\rangle$, δηλαδή, $|\psi\rangle = \sum_n a_n |n\rangle$, τότε το φυσικό νόημα των στοιχείων ρ του πίνακα γίνεται σαφές. Το διαγώνιο στοιχείο του πίνακα $\rho_{nn} \equiv \langle n | \rho | n \rangle = \overline{|a_n|^2}$ αναπαριστά τον πληθυσμό του συστήματος σε κατάσταση $|n\rangle$, ενώ το εκτός διαγωνίου στοιχείο $\rho_{nn'} \equiv \langle n | \rho | n' \rangle = \overline{a_n a_{n'}^*}$ δείχνει ότι η κατάσταση του συστήματος έχει μια σύμφωνη ανάμιξη των $|n\rangle$ και $|n'\rangle$. Στην τελευταία περίπτωση, αν η σχετική φάση του a_n και $a_{n'}$ είναι τυχαία (ή ασύμφωνη), τότε $\rho_{nn'} = 0$, μέσω του μέσου συνόλου. Επομένως, η θερμική ισορροπία $\rho_{nn}^{(0)}$ δίνεται από τη θερμική κατανομή του πληθυσμού, για παράδειγμα, την κατανομή Boltzman, στην περίπτωση ατόμων ή μορίων και $\rho_{nn}^{(0)} = 0$ για $n \neq n'$.

Μπορούμε να χρησιμοποιήσουμε ένα απλό φυσικό επιχειρήμα για να βρούμε μια πιο σαφή έκφραση για το $(\partial \rho / \partial t)_{\text{relax}}$. Η χαλάρωση του πληθυσμού είναι αποτέλεσμα των μεταβάσεων ανάμεσα σε καταστάσεις που προκαλούνται από την αλληλεπίδρασή τους με το απόθεμα θερμότητας. Έστω $W_{n \rightarrow n'}$ ως ο λόγος μετάβασης από $|n\rangle$ σε $|n'\rangle$. Τότε ο λόγος αποκατάστασης για έναν πλεονάζων πληθυσμό σε $|n\rangle$ θα πρέπει να είναι

$$\left(\frac{\partial \rho_{nn}}{\partial t}\right)_{\text{relax}} = \sum_{n'} [W_{n' \rightarrow n} \rho_{n'n'} - W_{n \rightarrow n'} \rho_{nn}]. \quad (2.8)$$

Στη θερμική ισορροπία έχουμε

$$\frac{\partial \rho_{nn}^{(0)}}{\partial t} = \sum_{n'} [W_{n' \rightarrow n} \rho_{n'n'}^{(0)} - W_{n \rightarrow n'} \rho_{nn}^{(0)}] = 0. \quad (2.9)$$

Επομένως, η (2.8) μπορεί επίσης να γραφτεί ως

$$\frac{\partial}{\partial t} [(\rho_{nn})_{\text{relax}} - \rho_{nn}^{(0)}] = \sum_{n'} [W_{n' \rightarrow n} (\rho_{n'n'} - \rho_{n'n'}^{(0)}) - W_{n \rightarrow n'} (\rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)})]. \quad (2.10)$$

Η χαλάρωση των εκτός διαγωνίου στοιχείων είναι πιο περίπλοκη². Σε απλές περιπτώσεις, παρόλα αυτά, αναμένουμε ότι η συμφωνία φάσης θα φθίνει εκθετικά προς το μηδέν. Τότε, έχουμε, για $n \neq n'$

$$\left(\frac{\partial \rho_{nn'}}{\partial t}\right)_{\text{relax}} = -\Gamma_{nn'} \rho_{nn'} \quad (2.11)$$

με $\Gamma_{nn'}^{-1} = \Gamma_{n'n}^{-1} = (T_2)_{nn'}$ να είναι ο χαρακτηριστικός χρόνος χαλάρωσης μεταξύ των καταστάσεων $|n\rangle$ και $|n'\rangle$. Στο μαγνητικό συντονισμό, η χαλάρωση του πληθυσμού είναι γνωστή ως διαμήκης χαλάρωση, ενώ η χαλάρωση για τα στοιχεία εκτός διαγωνίου του πίνακα είναι γνωστή ως εγκάρσια. Σε μερικές περιπτώσεις, η διαμήκης χαλάρωση μιας κατάστασης, μπορεί να προσεγγιστεί μέσω της

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)})_{\text{relax}} = -(T_1)_n^{-1} (\rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)}). \quad (2.12)$$

Τότε, T_1 ονομάζεται ο χρόνος διαμήκους χαλάρωσης και αντίστοιχα, T_2 ονομάζεται ο χρόνος εγκάρσιας χαλάρωσης.

Επομένως, τουλάχιστον στη θεωρία, εάν H_0 , H_{int} και $(\partial \rho / \partial t)_{\text{relax}}$ είναι γνωστά, οι εξισώσεις Liouville της (2.6) μαζί με την (2.2) περιγράφουν πλήρως την απόκριση του μέσου στο εισερχόμενο πεδίο. Παρόλα αυτά, δεν είναι πιθανό, σε γενικές γραμμές, να συνδυαστούν οι (2.6) και (2.2) σε μια μόνο εξίσωση κίνησης για το $\langle P \rangle$. Μόνο σε ειδικές περιπτώσεις θα μπορούσε να γίνει κάτι τέτοιο. Σε αυτό το Κεφάλαιο, μελετάμε μόνο την περίπτωση απόκρισης σταθερής κατάστασης με $\langle P \rangle$ επεκτάσιμο σε δυναμοσειρές του E . Η απόκριση μετάβασης θα συζητηθεί στο Κεφάλαιο 21.

Προκειμένου να βρεθούν μη γραμμικές πολικότητες και μη γραμμικές επιδεκτικότητες διαφόρων τάξεων, χρησιμοποιούμε επέκταση διαταραχών στον υπολογισμό. Έστω

$$\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)} + \dots \text{ και } \langle P \rangle = \langle P^{(1)} \rangle + \langle P^{(2)} \rangle + \dots \quad (2.13)$$

$$\text{με } \langle P^{(n)} \rangle = \text{Tr}(\rho^{(n)} P) \quad (2.14)$$

όπου $\rho^{(0)}$ είναι ο τελεστής πυκνότητας του πίνακα για το σύστημα σε θερμική ισορροπία, υποθέτοντας ότι δεν υπάρχει μόνιμη πόλωση στο μέσο, έτσι ώστε να ισχύει $\langle P^{(0)} \rangle = 0$. Εισάγοντας τις σειρές επέκτασης της ρ στη (2.6) και συλλέγοντας όρους από την ίδια τάξη, με την H_{int} να χρησιμοποιείται ως διαταραχή πρώτης τάξης, τότε θα πρέπει να έχουμε

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho^{(1)}}{\partial t} &= \frac{1}{i\hbar} [(\mathcal{H}_0, \rho^{(1)}) + (\mathcal{H}_{\text{int}}, \rho^{(0)})] + \left(\frac{\partial \rho^{(1)}}{\partial t} \right)_{\text{relax}}, \\ \frac{\partial \rho^{(2)}}{\partial t} &= \frac{1}{i\hbar} [(\mathcal{H}_0, \rho^{(2)}) + (\mathcal{H}_{\text{int}}, \rho^{(1)})] + \left(\frac{\partial \rho^{(2)}}{\partial t} \right)_{\text{relax}}, \end{aligned} \quad (2.15) \text{ κ.ο.κ}$$

Ενδιαφερόμαστε εδώ για την απόκριση σε ένα πεδίο που να μπορεί να διασπαστεί σε συνιστώσες Fourier, $\mathbf{E} = \sum_i \mathcal{E}_i \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - i\omega_i t)$. Τότε, αφού $H_{\text{int}} = \sum_i H_{\text{int}}(\omega_i)$ και $\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_i) \propto \mathcal{E}_i \exp(-i\omega_i t)$, ο τελεστής $\rho^{(n)}$ μπορεί επίσης να επεκταθεί σε σειρές Fourier

$$\rho^{(n)} = \sum \rho^{(n)}(\omega_j).$$

Με $\partial \rho^{(n)}(\omega_j) / \partial t = -i\omega_j \rho^{(n)}(\omega_j)$, η (2.15) μπορεί τώρα να λυθεί λεπτομερώς, για $\rho^{(n)}(\omega_j)$ σε διαδοχικές τάξεις. Οι λύσεις πρώτης και δεύτερης τάξης είναι:

$$\begin{aligned} \rho_{nn'}^{(1)}(\omega_j) &= \frac{[\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_j)]_{nn'}}{\hbar(\omega_j - \omega_{nn'} + i\Gamma_{nn'})} (\rho_{n'n}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \\ \rho_{nn'}^{(2)}(\omega_j + \omega_k) &= \frac{[\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_j), \rho^{(1)}(\omega_k)]_{nn'} + [\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_k), \rho^{(2)}(\omega_j)]_{nn'}}{\hbar(\omega_j + \omega_k - \omega_{nn'} + i\Gamma_{nn'})} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= \frac{1}{\hbar(\omega_j + \omega_k - \omega_{nn'} + i\Gamma_{nn'})} \\
&\times \sum_{n''} \left\{ [\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_j)]_{nn''} \rho_{n''n'}^{(1)}(\omega_k) \right. \\
&\quad - \rho_{nn''}^{(1)}(\omega_k) [\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_j)]_{n''n'} \\
&\quad + [\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_k)]_{nn''} \rho_{n''n'}^{(1)}(\omega_j) \\
&\quad \left. - \rho_{nn''}^{(1)}(\omega_j) [\mathcal{H}_{\text{int}}(\omega_k)]_{n''n'} \right\}. \quad (2.16)
\end{aligned}$$

Χρησιμοποιούμε εδώ τον συμβολισμό $\text{Ann}' = \langle n|A|n' \rangle$. Λύσεις ανώτερων τάξεων μπορούν να εξαχθούν άμεσα και εύκολα, αν και η διαδικασία για την εξαγωγή τους είναι ανιαρή και χρονοβόρα. Κάθε φορά που εμφανίζονται διαγώνια στοιχεία $\rho_{mm}^{(n)}(0)$ κατά την παραγωγή, τότε προκύπτει συχνά η ανάγκη για περαιτέρω προσέγγιση στο $(\partial\rho_{mm}/\partial t)_{\text{relax}}$ της (2.8) για να βρεθεί μια λύση κλειστού τύπου. Σημειώνουμε επίσης, ότι η έκφραση $\rho_{nn'}^{(2)}(\omega_j + \omega_k)$ της (2.16) είναι έγκυρη, ακόμα και για $n = n'$, εφόσον $\omega_j + \omega_k \neq 0$, αφού ο όρος $(\partial\rho_{nn}^{(2)}/\partial t)_{\text{relax}}$ μπορεί να αγνοηθεί στον υπολογισμό.

2.2. Μικροσκοπικές εκφράσεις για μη γραμμικές επιδεκτικότητες

Οι πλήρεις μικροσκοπικές εκφράσεις για τις μη γραμμικές πολώσεις $\langle P^{(n)} \rangle$ και τις μη γραμμικές επιδεκτικότητες $\langle \chi^{(n)} \rangle$ έπονται των εκφράσεων της $\rho^{(n)}$. Με $\mathcal{H}_{\text{int}} = \mathbf{er} \cdot \mathbf{E}$ and $\mathbf{P} = -N\mathbf{er}$ στην (2.14) και (2.16), οι επιδεκτικότητες πρώτης και δεύτερης τάξης λαμβάνονται άμεσα, λόγω του παράγοντα ηλεκτρονικής συνεισφοράς και παρουσιάζονται εδώ σε σαφή Καρτεσιανή ταυνοστική συμβολογραφία:

$$\begin{aligned}
\chi_{ij}^{(1)}(\omega) &= \frac{P_i^{(1)}(\omega)}{E_j(\omega)} \\
&= N \frac{e^2}{\hbar} \sum_{gn} \left[\frac{(r_i)_{ng}(r_j)_{gn}}{\omega + \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} - \frac{(r_j)_{ng}(r_i)_{gn}}{\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} \right] \rho_g^{(0)}.
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2) &= \frac{P_i^{(2)}(\omega)}{E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)} \\
&= -N \frac{e^3}{\hbar^2} \sum_{g, n, n'} \left[\frac{(r_i)_{gn}(r_j)_{nn'}(r_k)_{n'g}}{(\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng})(\omega_2 - \omega_{n'g} + i\Gamma_{n'g})} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{(r_i)_{gn}(r_k)_{nn'}(r_j)_{n'g}}{(\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng})(\omega_1 - \omega_{n'g} + i\Gamma_{n'g})} \\
& + \frac{(r_k)_{gn'}(r_j)_{n'n}(r_i)_{ng}}{(\omega + \omega_{ng} + i\Gamma_{ng})(\omega_2 + \omega_{n'g} + i\Gamma_{n'g})} \\
& + \frac{(r_j)_{gn'}(r_k)_{n'n}(r_i)_{ng}}{(\omega + \omega_{ng} + i\Gamma_{ng})(\omega_1 + \omega_{n'g} + i\Gamma_{n'g})} \\
& - \frac{(r_j)_{ng}(r_i)_{n'n}(r_k)_{gn'}}{(\omega - \omega_{nn'} + i\Gamma_{nn'})} \left(\frac{1}{\omega_2 + \omega_{n'g} + i\Gamma_{n'g}} + \frac{1}{\omega_1 - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} \right) \\
& - \frac{(r_k)_{ng}(r_i)_{n'n}(r_j)_{gn'}}{(\omega - \omega_{nn'} + i\Gamma_{nn'})} \left(\frac{1}{\omega_2 - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} + \frac{1}{\omega_1 + \omega_{n'g} + i\Gamma_{n'g}} \right) \Big] \rho_g^{(0)}. \tag{2.17}
\end{aligned}$$

Υπάρχουν δυο όροι στο $\chi_{ij}^{(1)}$ και οκτώ όροι στο $\chi_{ijk}^{(2)}$. Ο υπολογισμός μπορεί να επεκταθεί ως την τρίτη τάξη για να βρεθεί το $\chi_{ijkl}^{(3)}$ ($\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$), το οποίο θα έχει 48 όρους. Η πλήρης έκφραση για το $\chi_{ijkl}^{(3)}$ δίνεται στη σχετική βιβλιογραφία⁵ και δεν θα παραχθεί εδώ. Για τη δομή συντονισμού του $\chi_{ijkl}^{(3)}$, παρόλα αυτά, γίνεται λόγος στο Κεφάλαιο 14. Σε μη περιπτώσεις μη συντονισμού, οι σταθερές απόσβεσης στους παρανομαστές στην (2.17) μπορούν να αγνοηθούν. Η επιδεκτικότητα δευτέρας τάξεως, μπορεί τότε να μειωθεί σε μια μορφή με έξι όρους, δηλώνοντας ότι οι δυο τελευταίοι όροι στην έκφραση $\chi_{ijk}^{(2)}$ της (2.17) γίνονται

$$\frac{(r_j)_{gn}(r_i)_{nn'}(r_k)_{n'g}}{(\omega_1 - \omega_{ng})(\omega_2 + \omega_{n'g})} + \frac{(r_k)_{gn}(r_i)_{nn'}(r_j)_{n'g}}{(\omega_1 + \omega_{n'g})(\omega_2 - \omega_{ng})}$$

Με το N να δηλώνει τον αριθμό των ατόμων ή των μορίων ανά μονάδα όγκου, οι εκφράσεις στη (2.17) είναι ουσιαστικά καταλληλότερες για αέρια ή μόρια υγρών ή στερεών και το $\rho_g^{(0)}$ δίνεται από την κατανομή Boltzmann. Για στερεά των οποίων οι ηλεκτρονικές ιδιότητες περιγράφονται από δομές ζώνης, οι ιδιοκαταστάσεις είναι καταστάσεις Bloch και το $\rho_g^{(0)}$ ανταποκρίνεται στην κατανομή Fermi. Η έκφραση για $\chi_{ij}^{(1)}$ και $\chi_{ijk}^{(2)}$ θα πρέπει τότε να τροποποιηθεί κατάλληλα. Αφού οι καταστάσεις ζωνών σχηματίζουν ουσιαστικά ένα συνεχές και ομοιογενές μέσο, οι σταθερές απόσβεσης στους

παρανομαστές συντονισμού μπορούν να αγνοηθούν. Στην προσέγγιση ηλεκτρικού διπόλου, όπου αγνοείται η εξάρτηση από κυματοδιάνυσμα φωτονίου, $\chi_{ijk}^{(2)}$ για τέτοια στερεά, έχει την μορφή³:

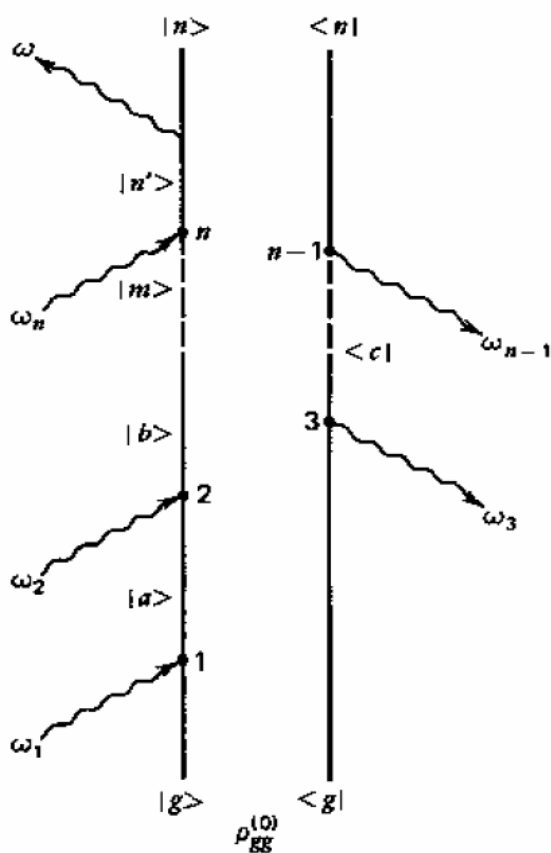
$$\begin{aligned}
\chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2) &= -\frac{e^3}{\hbar^2} \int d\mathbf{q} \sum_{v, c, c'} \left\{ \frac{\langle v, \mathbf{q} | r_i | c, \mathbf{q} \rangle \langle c, \mathbf{q} | r_j | c', \mathbf{q} \rangle \langle c', \mathbf{q} | r_k | v, \mathbf{q} \rangle}{[\omega - \omega_{cv}(\mathbf{q})][\omega_2 - \omega_{c'v}(\mathbf{q})]} \right. \\
&\quad + \frac{\langle v, \mathbf{q} | r_i | c, \mathbf{q} \rangle \langle c, \mathbf{q} | r_k | c', \mathbf{q} \rangle \langle c', \mathbf{q} | r_j | v, \mathbf{q} \rangle}{[\omega - \omega_{cv}(\mathbf{q})][\omega_1 - \omega_{c'v}(\mathbf{q})]} \\
&\quad + \frac{\langle v, \mathbf{q} | r_k | c, \mathbf{q} \rangle \langle c, \mathbf{q} | r_j | c', \mathbf{q} \rangle \langle c', \mathbf{q} | r_i | v, \mathbf{q} \rangle}{[\omega + \omega_{c'v}(\mathbf{q})][\omega_2 + \omega_{cv}(\mathbf{q})]} \quad (2.18) \\
&\quad + \frac{\langle v, \mathbf{q} | r_j | c, \mathbf{q} \rangle \langle c, \mathbf{q} | r_k | c', \mathbf{q} \rangle \langle c', \mathbf{q} | r_i | v, \mathbf{q} \rangle}{[\omega + \omega_{c'v}(\mathbf{q})][\omega_1 + \omega_{cv}(\mathbf{q})]} \\
&\quad + \frac{\langle v, \mathbf{q} | r_j | c, \mathbf{q} \rangle \langle c, \mathbf{q} | r_i | c', \mathbf{q} \rangle \langle c', \mathbf{q} | r_k | v, \mathbf{q} \rangle}{[\omega_1 - \omega_{cv}(\mathbf{q})][\omega_2 + \omega_{c'v}(\mathbf{q})]} \\
&\quad \left. + \frac{\langle v, \mathbf{q} | r_k | c, \mathbf{q} \rangle \langle c, \mathbf{q} | r_i | c', \mathbf{q} \rangle \langle c', \mathbf{q} | r_j | v, \mathbf{q} \rangle}{[\omega_1 + \omega_{c'v}(\mathbf{q})][\omega_2 - \omega_{cv}(\mathbf{q})]} \right\} f_v(\mathbf{q})
\end{aligned}$$

όπου το \mathbf{q} δηλώνει το κυματοδιάνυσμα ηλεκτρονίου, v , c και c' είναι οι δείκτες ζώνης και $f_v(\mathbf{q})$ είναι ο παράγοντας κατανομής Fermi για την κατάσταση $|v, \mathbf{q}\rangle$. Για συμπυκνωμένη ύλη, θα πρέπει να υπάρχει ένα τοπικό πεδίο, το οποίο θα προκύπτει από την επαγόμενη αλληλεπίδραση διπόλου – διπόλου. Ένας διορθωτικός παράγοντας $L^{(n)}$ τοπικού πεδίου, πρέπει τότε να εμφανιστεί ως πολλαπλασιαστικός παράγοντας στο $\chi^{(n)}$. Η διόρθωση του τοπικού πεδίου αναλύεται εκτενέστερα στην ενότητα 2.4. Για τα ηλεκτρόνια Bloch στα στερεά, με κυματοσυναρτήσεις που επεκτείνονται σε πάρα πολλές μονάδες κελιών, το τοπικό πεδίο τείνει να μετριάζεται και το $L^{(n)}$ ίσως προσεγγίσει τη μονάδα.

2.3 Διαγραμματική τεχνική

Οι υπολογισμοί για τις διαταραχές μπορούν να υπολογιστούν ευκολότερα με τη βοήθεια διαγραμμάτων. Τα διαγράμματα Feynman έχουν χρησιμοποιηθεί για υπολογισμούς διαταραχών σε κυματοσυναρτήσεις. Εδώ, αφού οι πίνακες πυκνότητας συμπεριλαμβάνουν προϊόντα δυο κυματοσυναρτήσεων, οι υπολογισμοί διαταραχών απαιτούν ένα είδος διπλού διαγράμματος Feynman. Σε αυτήν την ενότητα παρουσιάζουμε μια τεχνική επινοημένη από τους Yee και Gustafson. Μόνο η απόκριση σταθερής κατάστασης λαμβάνεται υπόψη εδώ.

Οι σημαντικές πλευρές της διαγραμματικής τεχνικής είναι ότι τα διαγράμματα παρέχουν μια απλή απεικόνιση της αντίστοιχης φυσικής διαδικασίας και επιτρέπουν επίσης την άμεση καταγραφή της αντίστοιχης μαθηματικής έκφρασης. Είναι πολύ βασικό να μπορεί να βρεθεί ένα πλήρες σετ διαγραμμάτων για την διαδικασία διαταραχής μιας δεδομένης τάξης. Το σχήμα, το οποίο υιοθετούμε για τον υπολογισμό του $\rho^{(n)}$ συμπεριλαμβάνει σε κάθε διάγραμμα ένα ζεύγος διαγραμμάτων Feynman, με δυο σειρές διάδοσης, μια για την πλευρά $|\psi\rangle$ του ρ και μια για την πλευρά $\langle\psi|$. Το Σχήμα 2.1 δείχνει ένα από τα πολλά διαγράμματα που περιγράφουν τους ποικίλους όρους στο $\rho^{(n)}$ ($\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n$).



Σχ. 2.1 Ένα αντιπροσωπευτικό διπλό διάγραμμα Feynman, που περιγράφει έναν από τους πολλούς όρους στο $\rho^{(n)}$ ($\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n$).

Το σύστημα ξεκινά αρχικά από $|g\rangle\langle g|$ με πληθυσμό $\rho_{gg}^{(0)}$. Η κατάσταση ket διαδίδεται από $|g\rangle$ σε $|n\rangle$ μέσω αλληλεπίδρασης με την ακτινοβολία πεδίου στο $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n$ και η κατάσταση bra διαδίδεται από $\langle g|$ σε $\langle n|$ μέσω της αλληλεπίδρασης με το πεδίο στο $\omega_3, \dots, \omega_{n-1}$. Έπειτα, η τελική αλληλεπίδραση με το πεδίο εξόδου στο ω , θέτει το σύστημα σε $|n\rangle\langle n|$. Μέσω αντιμετάθεσης των κορυφών αλληλεπίδρασης και ανακατανομής των θέσεων των κορυφών στις γραμμές διάδοσης, μπορούν τα άλλα διαγράμματα για $\rho^{(n)}$ να σχεδιαστούν.

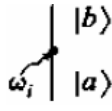
Η μικροσκοπική έκφραση για ένα δεδομένο διάγραμμα, μπορεί τώρα να εξαχθεί,

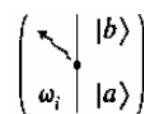
χρησιμοποιώντας τους ακόλουθους γενικούς κανόνες, που περιγράφουν τους διάφορους πολλαπλασιαστικούς παράγοντες:

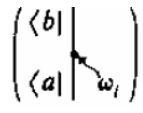
1. Το σύστημα αρχίζει με $|g\rangle\rho_{gg}^{(0)}\langle g|$.

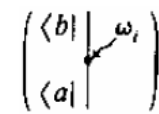
2. Η διάδοση της κατάστασης ket εμφανίζεται ως πολλαπλασιαστικοί παράγοντες στα αριστερά, ενώ της bra κατάστασης, στα δεξιά.

3. Μια κορυφή, που φέρνει το $|a\rangle$ στο $|b\rangle$ μέσω απορρόφησης στο ω_i στην αριστερή (ket) πλευρά του διαγράμματος, περιγράφεται από το στοιχείο του πίνακα

$(1/i\hbar)\langle b|\mathcal{H}_{int}(\omega_i)|a\rangle$ με $\mathcal{H}_{int}(\omega_i) \propto e^{-i\omega_i t}$ (δηλώνεται από το  του Σχ. 2.1.).

Εάν πρόκειται για εκπομπή  αντί για απορρόφηση, η κορυφή θα πρέπει να περιγραφεί από την $(1/i\hbar)\langle b|\mathcal{H}_{int}^\dagger(\omega_i)|a\rangle$. Λόγω της φύσης του δεσμού που υφίσταται μεταξύ των bra και ket πλευρών, μια διαδικασία απορρόφησης στην πλευρά ket, εμφανίζεται ως διαδικασία εκπομπής στην πλευρά bra, και αντίστροφα*.

Επομένως, στη δεξιά (bra) πλευρά του διαγράμματος, οι κορυφές για εκπομπή  και

απορρόφηση  περιγράφονται από τις σχέσεις $-(1/i\hbar)\langle a|\mathcal{H}_{int}(\omega_i)|b\rangle$ και $-(1/i\hbar)\langle a|\mathcal{H}_{int}^\dagger(\omega_i)|b\rangle$, αντίστοιχα.

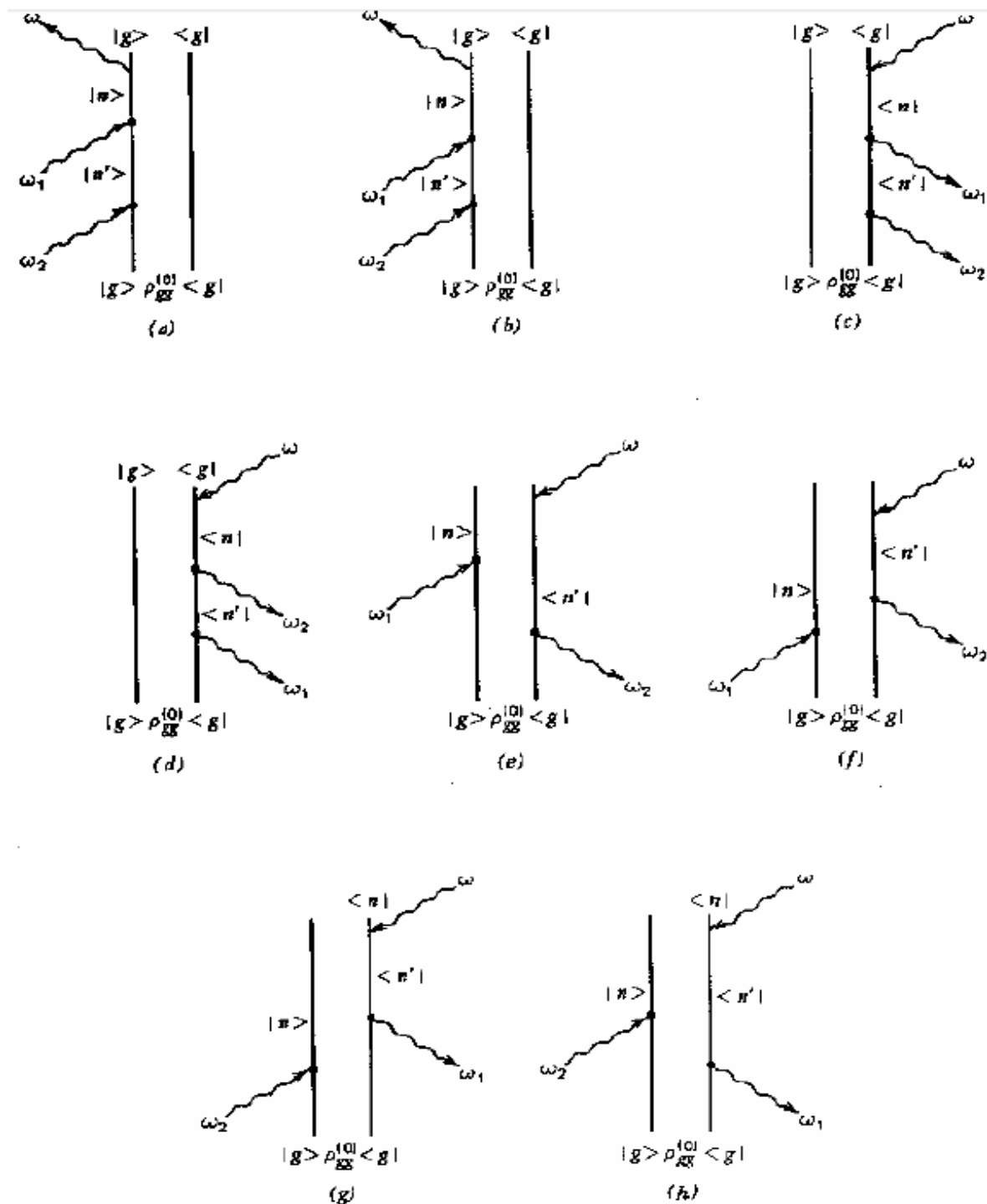
4. Η διάδοση από την j^{th} κορυφή στην κορυφή $(j+1)^{th}$ κατά μήκος των διπλών γραμμών, περιγράφεται από τον πολλαπλασιαστή $\Pi_j = \pm[i(\sum_{i=1}^j \omega_i - \omega_{lk} + i\Gamma_{lk})]^{-1}$. Η συχνότητα ω_i λαμβάνεται ως θετική, εάν η απορρόφηση της ω_i στην i^{th} κορυφή συμβαίνει στα αριστερά ή η εκπομπή της ω_i συμβαίνει στα δεξιά, ενώ λαμβάνεται ως αρνητική εάν η απορρόφηση ω_i συμβαίνει στα δεξιά και η εκπομπή στα αριστερά.

5. Η τελική κατάσταση του συστήματος περιγράφεται από το προϊόν που παράγεται από τις τελικές ket και bra καταστάσεις, για παράδειγμα, $|n'\rangle\langle n|$ μετά τη n^{th} κορυφή στο Σχ. 2.1 για $\rho^{(n)}$.

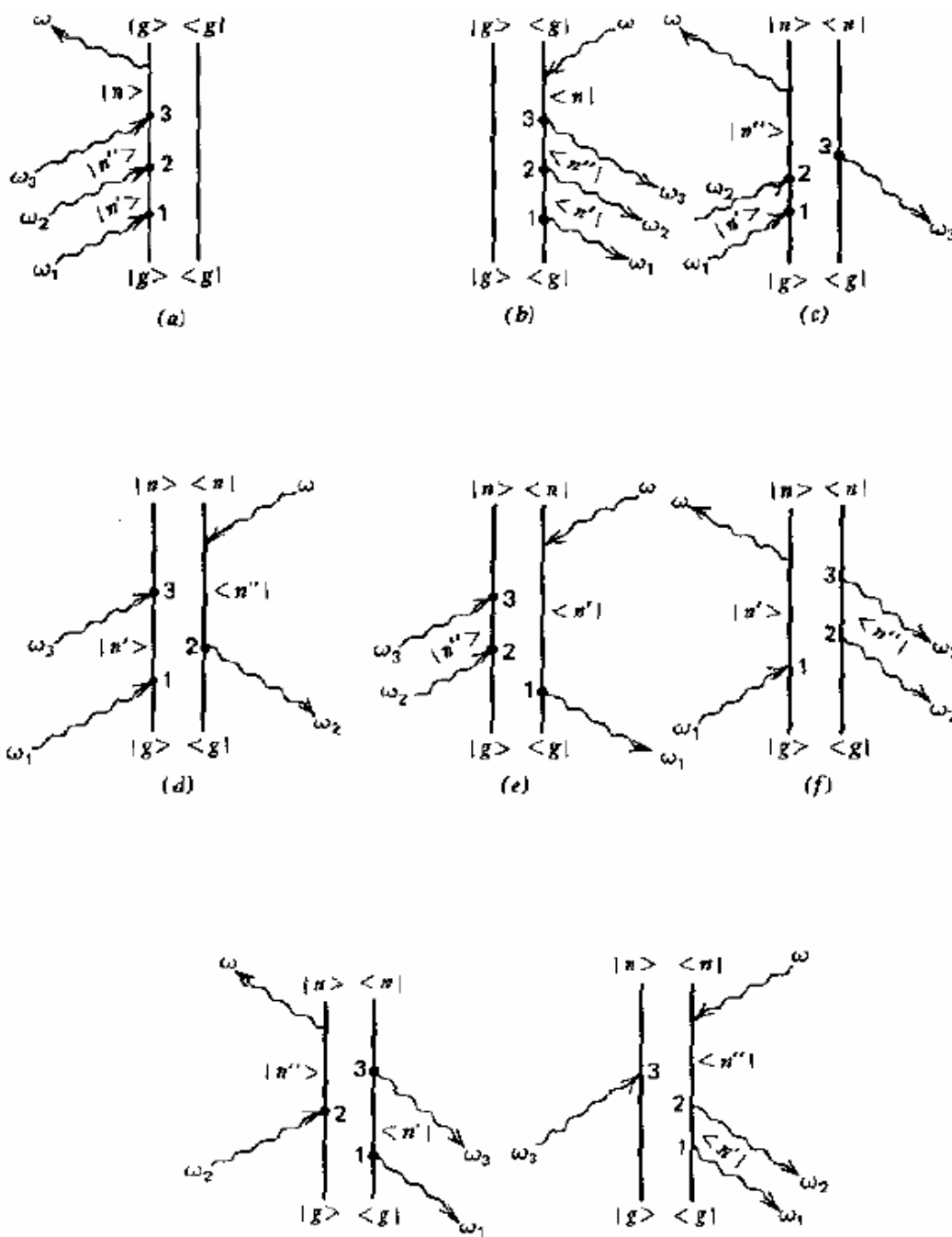
6. Το προϊόν από όλους τους παράγοντες περιγράφει τη διάδοση από $|g\rangle\langle g|$ σε $|n'\rangle\langle n|$ μέσω μιας χαρακτηριστικής ομάδας καταστάσεων στο διάγραμμα. Η άθροιση αυτών των προϊόντων από όλες τις πιθανές ομάδες (συνδυασμούς) καταστάσεων αποφέρει

το τελικό αποτέλεσμα, το οποίο εμπεριέχει τη συνεισφορά όλων των εμπλεκόμενων καταστάσεων.

* Εάν το πεδίο είναι επίσης κβαντισμένο, η $H_{int}(\omega_i)$ που λειτουργεί σε κατάσταση ket, θα εκμηδενίσει ένα φωτόνιο σε ω_i , ενώ αν λειτουργεί σε bra κατάσταση, θα δημιουργήσει ένα φωτόνιο.



Σχ. 2.2 Πλήρης σει οκτώ διαγραμμάτων για τους οκτώ όρους στο $\rho^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2)$



Σχ. 2.3 Τα οκτώ βασικά διαγράμματα για $\rho^{(3)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$

Χρησιμοποιώντας αυτούς τους κανόνες, το διάγραμμα του Σχ. 2.1 οδηγεί στην έκφραση

$$\sum_{g, a, \dots, n} \left\{ \frac{|n'\rangle \langle n'| \mathcal{H}(\omega_n) |m\rangle \cdots \langle b| \mathcal{H}(\omega_2) |a\rangle \langle a| \mathcal{H}(\omega_1) |g\rangle}{\hbar^n \left(\sum_{i=1}^n \omega_i - \omega_{n'n} + i\Gamma_{n'n} \right) \left(\sum_{i=1}^{n-1} \omega_i - \omega_{mn} + i\Gamma_{mn} \right) \cdots} \right.$$

$$\times \frac{\rho_{gg}^{(0)} \langle g | \mathcal{H}(\omega_3) | c \rangle \cdots \langle | \mathcal{H}(\omega_{n-1}) | n \rangle \langle n |}{(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - \omega_{bc} + i\Gamma_{bc})(\omega_1 + \omega_2 - \omega_{bg} + i\Gamma_{bg})(\omega_1 - \omega_{ag} + i\Gamma_{ag})} \Bigg\} \\ \propto e^{-i(\omega_1 + \omega_2 + \cdots + \omega_n)t}, \quad (2.19)$$

η οποία είναι μόνο ο ένας όρος της πλήρους έκφρασης για $\rho^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)$.

Ως ένα πιο συγκεκριμένο παράδειγμα, το Σχ.2.2 δίνει το πλήρες σετ διαγραμμάτων για $\rho^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2)$, το οποίο καταλήγει στο $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2)$ στην (2.17). Τα οκτώ διαγράμματα (a)-(h) αντιστοιχούν σε διαδοχική σειρά των οκτώ όρων στη (2.17). Να σημειωθεί, ότι το $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2)$ προέρχεται από τη σχέση $\text{Tr}(\rho^{(2)} P_i) / E_i(\omega_1) E_k(\omega_2)$. Στην πραγματικότητα, υπάρχουν μόνο τέσσερα βασικά διαγράμματα, (a), (c), (e) και (g), στο Σχ. 2.2. Τα άλλα μπορούν να παραχθούν από μετάθεση των κορυφών των ω_1 και ω_2 .

Ένα άλλο παράδειγμα, στο Σχ. 2.3, παρουσιάζει οκτώ βασικά διαγράμματα για $\rho^{(3)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ που οδηγούν στην σχέση $\chi_{ikl}^{(3)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$. Εκεί, πρέπει να υπάρχουν 48 διαγράμματα στο πλήρες σετ, που να αντιστοιχούν στους 48 όρους στο $\chi_{ikl}^{(3)}$. Τα άλλα 40 διαγράμματα παρήχθησαν από μεταθέσεις των τριών κορυφών (1,2,3) στα οκτώ βασικά διαγράμματα του Σχ. 2.3. Η πλήρης έκφραση του $\chi_{ikl}^{(3)}$, μπορεί τότε να γραφτεί από τα διαγράμματα σύμφωνα με τους κανόνες.

Τι συμβαίνει όμως, εάν πανομοιότυπα φωτόνια εμφανιστούν σε έναν αριθμό κορυφών; Τα διαγράμματα που προήλθαν από μεταθέσεις αυτών των κορυφών σε ένα δεδομένο διάγραμμα, αποφέρουν πανομοιότυπους όρους στο $\rho^{(n)}$. Δεν πρέπει όμως να παραληφθούν, αλλά να ληφθούν υπόψη μέσω ενός παράγοντα εκφυλισμού, ο οποίος θα βρίσκεται στους όρους στο $\rho^{(n)}$. Για παράδειγμα, η $\chi_{iiii}^{(3)}(3\omega = \omega + \omega + \omega)$ έχει 48 διαγράμματα, αλλά 40 από αυτά, αποφέρουν όρους πανομοιότυπους με κάποιους άλλους. Επομένως, η $\chi_{iiii}^{(3)}(3\omega = \omega + \omega + \omega)$ έχει μόνο οκτώ όρους, όπου καθένας από αυτούς έχει έναν παράγοντα εκφυλισμού 6. Οι όροι αυτοί μειώνονται περαιτέρω σε τέσσερις, όταν οι σταθερές απόσβεσης στους παρανομαστές της έκφρασης, δύνανται να αγνοηθούν.

2.4 Διόρθωση τοπικού πεδίου στο $\chi^{(n)}$

Οι εκφράσεις για $\chi^{(n)}$ στις προηγούμενες ενότητες είναι απόλυτα σωστές, μόνο για διαλυτά μέσα. Μπορούν να γραφτούν ως $\chi^{(n)} = N\alpha^{(n)}$, με N να είναι ο αριθμός των ατόμων ή των μορίων ανά μονάδα όγκου και $\alpha^{(n)}$ η νιοστή σειρά μη γραμμικής πολωσιμότητας.

Σε στερεά κατάσταση, όμως, η επαγόμενη αλληλεπίδραση διπόλου – διπόλου, γίνεται σημαντική και οδηγεί στην περίφημη ‘διόρθωση τοπικού πεδίου’. Οι επιδεκτικότητες $\chi^{(n)}$ δεν είναι πια απλώς ανάλογες προς την $\alpha^{(n)}$. Ο συνηθισμένος τρόπος εξαγωγής της διόρθωσης τοπικού πεδίου εφαρμόζεται σε ισοτροπικά ή κυβικά μέσα με τοπικά δεσμευμένα ηλεκτρόνια. Η γενική θεωρία που είναι εφαρμόσιμη σε μέσα με οποιαδήποτε συμμετρία ή με περισσότερο ελεύθερα κινούμενα ηλεκτρόνια, δεν είναι ακόμη διαθέσιμη.

Το τοπικό πεδίο σε ένα τοπικό χωρικό σημείο είναι το άθροισμα του εφαρμοσμένου πεδίου E και του πεδίου που οφείλεται στα γειτονικά δίπολα E_{dip} , δηλ. $E_{\text{loc}} = E + E_{\text{dip}}$ (2.20). Στο μοντέλο Lorentz, η E_{dip} είναι ανάλογη προς την πόλωση. Για ισοτροπικά ή κυβικά μέσα, δίνεται από τη σχέση⁷ $E_{\text{dip}} = P$ (2.21). Η πόλωση μπορεί να εκφραστεί είτε ως προς τις μικροσκοπικές πολωσιμότητες και τα τοπικά πεδία είτε προς τις μακροσκοπικές επιδεκτικότητες και τα εφαρμοσμένα πεδία:

$$\begin{aligned} P_i(\omega) &= N \{ \alpha^{(1)} [E_{\text{loc}}(\omega)]_i \} + \alpha_{ijk}^{(2)} [E_{\text{loc}}(\omega_1)]_j [E_{\text{loc}}(\omega_2)]_k + \dots \\ &= \chi^{(1)} E_i(\omega) + \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \dots \end{aligned} \quad (2.22)$$

Με τις σχέσεις (2.20) και (2.21), η πρώτη έκφραση στην (2.22) γίνεται

$$\begin{aligned} P_i(\omega) &= N \left[1 - \frac{4\pi}{3} N\alpha^{(1)}(\omega) \right]^{-1} \\ &\times \{ \alpha^{(1)} E_i(\omega) + \alpha_{ijk}^{(2)} [E_{\text{loc}}(\omega_1)]_j [E_{\text{loc}}(\omega_2)]_k + \dots \}. \end{aligned} \quad (2.23)$$

Εάν η συνεισφορά της $P^{(n)}$ στην E_{loc} με $n>1$ παραμεληθεί (που συνήθως είναι μια άριστη προσέγγιση αφού $|P^{(n)}|_{n>1} \ll |P^{(1)}|$), τότε, το τοπικό πεδίο μπορεί να γραφτεί ως

$$\mathbf{E}_{\text{loc}}(\omega_i) = \left[1 - \frac{4\pi}{3} N\alpha^{(1)}(\omega_i) \right]^{-1} \mathbf{E}(\omega_i). \quad (2.24)$$

Έπειτα, από τις (2.22) και (2.23), βρίσκουμε

$$\begin{aligned} \chi^{(1)}(\omega) &= \frac{N\alpha^{(1)}(\omega)}{1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}(\omega)} \\ \chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2) &= \frac{N\alpha_{ijk}^{(2)}(\omega)}{[1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}(\omega)][1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}(\omega_1)][1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}(\omega_2)]} \end{aligned} \quad (2.25)$$

και πιο γενικά

$$\chi^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) = \frac{N\alpha^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)}{[1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}(\omega)][1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}(\omega_1)] \dots [1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}(\omega_n)]} \quad (2.26)$$

Κι αφού η γραμμική διηλεκτρική σταθερά $\epsilon^{(1)}$ σχετίζεται με τη $\chi^{(1)}$, μέσω της

$$\epsilon^{(1)} = 1 + 4\pi\chi^{(1)} = \frac{1 + (8\pi/3)N\alpha^{(1)}}{1 - (4\pi/3)N\alpha^{(1)}}$$

μπορούμε να γράψουμε $\left[1 - \frac{4\pi}{3}N\alpha^{(1)}\right]^{-1} = \frac{\epsilon^{(1)} + 2}{3}$, και η (2.26) γίνεται³

$$\chi^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) = NL^{(n)}\alpha^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) \quad (2.27)$$

με το $L^{(n)} = \left[\frac{\epsilon^{(1)}(\omega) + 2}{3}\right] \left[\frac{\epsilon^{(1)}(\omega_1) + 2}{3}\right] \dots \left[\frac{\epsilon^{(1)}(\omega_n) + 2}{3}\right]$ (2.28) να είναι ο διορθωτικός παράγοντας τοπικού πεδίου για τις μη γραμμικές επιδεκτικότητες νιοστής τάξης. Σε μέσα με άλλη συμμετρία, η έκφραση (2.27) παραμένει έγκυρη, αλλά το $L^{(n)}$ θα είναι μια πολύπλοκη τανυστική συνάρτηση του $\epsilon^{(1)}(\omega)$, $\epsilon^{(1)}(\omega_1)$, ..., και $\epsilon^{(1)}(\omega_n)$.

2.5 Συμμετρία μετάθεσης μη γραμμικών επιδεκτικότητων

Υπάρχει μια εγγενής συμμετρία στις μικροσκοπικές εκφράσεις των επιδεκτικότητων. Όπως μπορεί να εύκολα να φανεί από την (2.17), η γραμμική επιδεκτικότητα $\chi_{ij}^{(1)}$ έχει την συμμετρία $\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = \chi_{ij}^{(1)*}(-\omega)$ (2.29), η οποία είναι στην πραγματικότητα μια ειδική περίπτωση σχέσης Onsager. Παρομοίως, η μη γραμμική επιδεκτικότητα $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2)$ στην (2.17) ή μια παρόμοια έκφραση για $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega = \omega + \omega)$, έχει την ακόλουθη συμμετρία μετάθεσης, όταν οι σταθερές απόσβεσης στις συχνότητες στους παρανομαστές, μπορούν να αγνοηθούν (δηλ. σε περιπτώσεις μη συντονισμού)^{1,9}.

$$\begin{aligned}\chi_{ijk}^{(2)*}(\omega = \omega_1 + \omega_2) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega) \\ &= \chi_{kij}^{(2)}(\omega_2 = \omega - \omega_1),\end{aligned}$$

$$\chi_{jj}^{(2)*}(2\omega = \omega + \omega) = \frac{1}{2}\chi_{jj}^{(2)}(\omega = 2\omega - \omega) = \frac{1}{2}\chi_{jj}^{(2)}(\omega = -\omega + 2\omega). \quad (2.30)$$

Στη λειτουργία μετάθεσης, οι Καρτεσιανοί δείκτες μετατίθενται μαζί με τις συχνότητες και με τα πρόσημά τους, προσεκτικά επιλεγμένα. Γενικότερα, μπορεί να δειχθεί ότι η μη γραμμική επιδεκτικότητα νιοστής τάξης έχει συμμετρία μετάθεσης⁹

$$\begin{aligned}\chi_{i_1 i_2 \dots i_n}^{(n)*}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) &= \chi_{i_1 i_2 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1 = -\omega_2 - \dots - \omega_n + \omega) = \dots \\ &= \chi_{i_n i_{n-1} \dots i_1}^{(n)}(\omega_n = \omega - \omega_1 - \dots - \omega_{n-1}).\end{aligned} \quad (2.31)$$

Εάν η διασπορά του $\chi^{(n)}$ μπορεί επίσης να αγνοηθεί, τότε η συμμετρία μετάθεσης στην σχέση (2.31) γίνεται ανεξάρτητη από τις συχνότητες. Συνεπώς, υπάρχει τώρα μια σχέση συμμετρίας, μεταξύ διαφορετικών στοιχείων του ίδιου τανυστή $\chi^{(n)}$, δηλαδή, παραμένει αμετάβλητο, όταν οι Καρτεσιανοί δείκτες έχουν μετατεθεί. Το φαινόμενο αυτό είναι γνωστό και ως και 'συμπέρασμα του Kleinman'¹⁰, μέσω του οποίου μπορεί να μειωθεί ο αριθμός των ανεξάρτητων στοιχείων του $\chi^{(n)}$. Για παράδειγμα, μειώνει 27 στοιχεία του $\chi^{(2)}$ σε 10 μόνο ανεξάρτητα στοιχεία. Θα πρέπει, όμως, να σημειώσουμε, ότι αφού όλα τα μέσα είναι σκεδαστικά, το συμπέρασμα του Kleinman είναι μια καλή προσέγγιση, μόνο όταν όλες οι εμπλεκόμενες συχνότητες απέχουν τόσο από συντονισμούς, ώστε η διασπορά του $\chi^{(n)}$ να είναι σχετικά ασήμαντη.

2.6 Δομική συμμετρία μη γραμμικών επιδεκτικότητων

Οι τανυστές μη γραμμικής επιδεκτικότητας, ως οπτικές ιδιότητες ενός μέσου, πρέπει να έχουν συγκεκριμένους τύπους συμμετρίας, που να αντικατοπτρίζουν τη συμμετρία δομής του μέσου. Κατά αναλογία, μερικά τανυστικά στοιχεία είναι μηδενικά και άλλα σχετίζονται μεταξύ τους, μειώνοντας κατά πολύ τον συνολικό αριθμό των ανεξάρτητων στοιχείων. Σαν παράδειγμα, μελετάμε εδώ ως τανυστή της μη γραμμικής επιδεκτικότητας δεύτερης τάξης τον $\chi^{(2)}$.

Κάθε μέσο έχει ένα συγκεκριμένο σημείο συμμετρίας, με μια ομάδα λειτουργιών συμμετρίας (S), υπό την οποία το μέσο παραμένει αναλλοίωτο και επομένως και ο $\chi^{(n)}$ παραμένει αμετάβλητος. Σε πραγματικές συνθήκες επεξεργασίας, ο S είναι ένας

τριδιάστατος ταυνοστής δευτέρου βαθμού S_{im} . Τότε, η αμεταβλητότητα του $\chi^{(2)}$ υπό συμμετρία περιγράφεται σαφώς από τη σχέση

$$(\hat{i} \cdot \mathbf{S}^\dagger) \cdot \chi^{(2)} : (\mathbf{S} \cdot \hat{j})(\mathbf{S} \cdot \hat{k}) = \chi_{ijk}^{(2)} \quad (2.32)$$

Πίνακας 2.1

Ανεξάρτητα μη μηδενιζόμενα στοιχεία του $\chi^{(2)}$ ($\omega = \omega_1 + \omega_2$) για κρυστάλλους συγκεκριμένων Τάξεων Συμμετρίας

Τάξη Συμμετρίας	Ανεξάρτητα μη μηδενικά στοιχεία
Triclinic	
1	Όλα τα στοιχεία είναι ανεξάρτητα και μη μηδενικά
Monoclinic	
2	$xyz, xzy, xxy, xyx, yxx, yyy, yzz, yzx, yxz, zyz, zzy, zxy, zyx$ (two fold axis parallel to \hat{y})
m	$xxx, xyy, xzz, xzx, xxz, yyz, yzy, yxy, yyx, zxx, zyy, zzz, zzx, zxz$ (mirror plane perpendicular to \hat{y})
Orthorhombic	
222	$xyz, xzy, yzx, yxz, zxy, zyx$
$mm2$	$xzx, xxz, yyz, yzy, zxx, zyy, zzz$
Tetragonal	
4	$xyz = -yxz, xzy = -yzx, xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz, zxy = -zyx$
$\bar{4}$	$xyz = yxz, xzy = yzx, xzx = -yzy, xxz = -yyz, zxx = -zyy, zxy = zyx$
422	$xyz = -yxz, xzy = -yzx, zxy = -zyx$
$4mm$	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz$
$\bar{4}2m$	$xyz = yxz, xzy = yzx, zxy = zyx$
Cubic	
432	$xyz = -xzy = yzx = -yxz = zxy = -zyx$
$\bar{4}3m$	$xyz = xzy = yzx$
23	$= yxz = zxy = zyx$
Trigonal	
3	$xxx = -xyy = -yyz = -yxy, xyz = -yxz, xzy = -yzx, xzx = yzy, xxz = yyz, yyy = -yxx = -xxy = -xyx, zxx = zyy, zzz, zxy = -zyx$

32	$xxx = -xyy = -yyx = -yxxy, xyz = -yxz, xzy = -yzx, zxy = -zyx$
$3m$	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz, yyy = -yxx = -xxy = -xyx$ (mirror plane perpendicular to \hat{x})
Hexagonal	
6	$xyz = -yxz, xzy = -yzx, xzx = yxy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz, zxy = -zyx$
$\bar{6}$	$xxx = -xyy = -yxxy = -yyxx, yyy = -yxx = -xxy = -xxy$
622	$xyz = -yxz, xzy = -yxz, zxy = -zyx$
$6mm$	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz$
$\bar{6}m2$	$yyy = -yxx = -xxy = -xyx$

Για ένα μέσο με ομάδα συμμετρίας που αποτελείται από n λειτουργίες συμμετρίας, τότε n τέτοιες εξισώσεις πρέπει να υπάρχουν. Αυτές, αποφέρουν πολλές σχέσεις μεταξύ διαφόρων στοιχείων του $\chi^{(2)}$, παρόλο που μόνο μερικά από αυτά είναι ανεξάρτητα. Αυτές οι σχέσεις μπορούν να χρησιμοποιηθούν για να μειωθούν τα 27 στοιχεία του $\chi^{(2)}$ σε έναν μικρό αριθμό ανεξάρτητων στοιχείων.

Μια άμεση συνέπεια της σχέσης (2.32) είναι ότι $\chi^{(2)} = 0$ στην προσέγγιση του ηλεκτρικού διπόλου για ένα μέσο με συμμετρία αντιστροφής: με το S να είναι η λειτουργία αντιστροφής, $S \cdot \hat{e} = -\hat{e}$, η (2.32) αποφέρει $\chi^{(2)}_{ijk} = -\chi^{(2)}_{ijk} \approx 0$. Αυτό εξηγεί γιατί η $\chi^{(2)}$ για ένα ελεύθερο ηλεκτρόνιο δεν παρουσιάζει ηλεκτρική διπολική συνεισφορά, όπως περιγράφηκε στο Κεφάλαιο 1. Μεταξύ κρυστάλλων χωρίς συμμετρία αντιστροφής, αυτοί με δομή κρυστάλλου σφαλερίτη, όπως οι III-V ημιαγωγοί, έχουν την απλούστερη μορφή του $\chi^{(2)}$. Αυτοί ανήκουν στην τάξη του $T_d (\bar{4}3m)$ συμμετρίας κυβικού σημείου.

Πίνακας 2.2 – Ανεξάρτητα Μη μηδενιζόμενα Στοιχεία του $\chi^{(3)}$ ($\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$) για Κρυστάλλους Συγκεκριμένων Τάξεων Συμμετρίας

Τάξη Συμμετρίας	Ανεξάρτητα μη μηδενικά στοιχεία
Triclinic	Όλα τα 81 στοιχεία είναι ανεξάρτητα & μη μηδενικά
Tetragonal 422, 4mm, 4/mmm, $\bar{4}2m$	$xxxx = yyyy, zzzz,$ $yyzz = zzyy, zxxz = xxzz, xyxy = yxyx, yzyz = zyzy,$ $zxzx = xzxz, xyxy = yxyx, yzzy = zyyz, zxxz = xzzx,$ $xyyx = yxxy$
Cubic 23, $m\bar{3}$	$xxxx = yyyy = zzzz, yyzz = zzxx = xxxy,$ $zzyy = yyxx = xxzz, zyzy = xzxx = yxyx,$ $yzyz = zxzx = xyxy, zyyz = xzzx = yxxy,$ $yzzy = zxxz = xyxy$

432, $\bar{4}3m$, $m\bar{3}m$	$xxxx = yyyy = zzzz$ $yzzy = zzyy = zzxx = xxzz = xxyy = yyxx$ $yzzy = zzyy = zxzx = xzxx = yxyx = xyxy$ $yzzy = zzyy = zxzx = xzxx = xyxy = yxyx$
Hexagonal 622, $6mm$, $6/mmm$, $\bar{6}m2$	$zzzz, xxxx = yyyy = xxyy + xyxy + xyxy$ $xxyy = yyxx, xyxy = yxyx, xyxy = yxyx,$ $yzzy = xxzz, zzyy = zzxx, zyyz = zxzx,$ $yzzy = xzxx, yzyz = xzxx, zzyy = zxzx$
Isotropic	$xxxx = yyyy = zzzz,$ $yzzy = zzyy = zzxx = xxzz = xxyy = yyxx,$ $yzzy = zzyy = zxzx = xzxx = xyxy = yxyx,$ $yzzy = zzyy = zxzx = xzxx = xyxy = yxyx,$ $xxxx = xxyy + xyxy + xyxy$

Παρόλο που πολλές λειτουργίες συμμετρίας σχετίζονται με το T_d ($\bar{4}3m$), μόνο οι περιστροφές 180° γύρω από τους τρεις 4-πτυχους άξονες και οι κατοπτρικές ανακλάσεις γύρω από τα διαγώνια επίπεδα, είναι απαραίτητα για να μειωθεί το $\chi^{(2)}$. Οι περιστροφές 180° κάνουν $\chi_{iii}^{(2)} = -\chi_{iii}^{(2)} = 0$, $\chi_{iij}^{(2)} = -\chi_{iij}^{(2)} = 0$, και $\chi_{ijj}^{(2)} = -\chi_{ijj}^{(2)} = 0$, όπου \hat{i}, \hat{j} και \hat{k} αναφέρονται στους τρεις κύριους άξονες του κρυστάλλου. Οι κατοπτρικές ανακλάσεις οδηγούν σε αμεταβλητότητα του $\chi^{(2)}_{ijk}$ ($i \neq j \neq k$) υπό μετάθεση των Καρτεσιανών δεικτών. Συνεπώς, το $\chi^{(2)}_{ijk}$ ($i \neq j \neq k$) είναι το μόνο ανεξάρτητο στοιχείο στο $\chi^{(2)}$ για κρυστάλλους σφαλερίτη.

Για άλλες τάξεις κρυστάλλων, οι τύποι του $\chi^{(2)}$ μπορούν με παρόμοιο τρόπο να εξαχθούν μέσω των αντίστοιχων λειτουργιών συμμετρίας. Η μελέτη της συμμετρίας, εδώ, είναι η ίδια με αυτήν που χρησιμοποιήθηκε για να εξαχθεί ο ηλεκτρο-οπτικός τανυστής (που στην πραγματικότητα είναι η ειδική περίπτωση του $\chi^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2)$ με $\omega_2 \approx 0$) και ο πιεζοηλεκτρικός τανυστής¹¹. Οι τύποι του $\chi^{(2)}$ για γένεση δεύτερης αρμονικής είναι ουσιαστικά πανομοιότυποι με τους τελευταίους¹². Στον πίνακα 2.1, αναπαράγουμε ένα μέρος του $\chi^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2)$ για διάφορες τάξεις κρυστάλλων.

Η παραπάνω μελέτη της συμμετρίας για $\chi^{(2)}$ μπορεί επίσης να επεκταθεί σε μη γραμμικές επιδεκτικότητες ανώτερης τάξης. Συγκεκριμένα, οι τύποι συμμετρίας για $\chi^{(3)}$ είναι πιο σημαντικοί, λαμβάνοντας υπόψη τα πολλά ενδιαφέροντα μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα τρίτης τάξης, τα οποία μπορούν να παρατηρηθούν εύκολα σε όλα τα μέσα. Στον πίνακα 2.2 παρουσιάζονται οι τανυστές $\chi^{(3)}$ για τις τάξεις των μέσων που συναντώνται πιο συχνά¹².

2.7 Πρακτικοί υπολογισμοί των μη γραμμικών επιδεκτικότητων

Οι λειτουργίες της συμμετρίας μειώνουν δραστικά τον αριθμό των ανεξάρτητων

στοιχείων σε έναν ταχυστή μη γραμμικής επιδεκτικότητας, αλλά τότε, για ένα δεδομένο μέσο, θα θέλαμε επίσης να γνωρίζουμε τις τιμές αυτών των ανεξάρτητων στοιχείων. Ενώ μπορούν συχνά να μετρηθούν (δες, π.χ. Ενότητα 7.5), είναι επίσης σημαντικό να μπορούν να υπολογιστούν μέσα από τη θεωρία. Ένας επιτυχημένος θεωρητικός υπολογισμός μπορεί να βοηθήσει στην πρόβλεψη του $\chi^{(n)}$ για μέσα, που δεν είναι εύκολο να μετρηθούν ή για τον σχεδιασμό καινούργιων μη γραμμικών κρυστάλλων. Στη θεωρία, οι μικροσκοπικές εκφράσεις, όπως αυτή για $\chi_{ijk}^{(2)}$ στην (2.17), με κατάλληλη διόρθωση τοπικού πεδίου, μπορούν να χρησιμοποιηθούν για τέτοιους υπολογισμούς. Πάντως, στις περισσότερες περιπτώσεις στην πράξη, αυτές οι εκφράσεις είναι άχρηστες, επειδή ούτε οι συχνότητες μετάβασης ούτε οι κυματοσυναρτήσεις για το υλικό είναι επαρκώς γνωστές. Αυτό ισχύει ιδιαίτερα για μεγάλα μόρια ή στερεά. Η απλοποίηση μοντέλων ή προσεγγίσεων είναι συχνά απαραίτητη. Αν όλες οι εμπλεκόμενες συχνότητες απέχουν πολύ από συντονισμούς, τότε, μια απλοποιημένη υπόθεση που χρησιμοποιείται συχνά είναι η αντικατάσταση κάθε παρονομαστή συχνότητας στη μικροσκοπική έκφραση του $\chi^{(n)}$ με έναν μέσο, και η εξαίρεση όλων των παρονομαστών συχνότητας από το άθροισμα (δες, π.χ. $\chi^{(2)}$ στην 2.17). Έπειτα, το άθροισμα στον πίνακα στοιχείων μπορεί να απλοποιηθεί κατά πολύ, μέσω της ιδιότητας της κλειστότητας των ιδιοκαταστάσεων και μπορεί να εκφραστεί σε σχέση με την κατανομή των ροπών στη βασική κατάσταση φορτίου. Το πρόβλημα καταλήγει, στο να βρεθεί η κυματοσυνάρτηση της βασικής κατάστασης του συστήματος¹³.

Η παραπάνω προσέγγιση όμως, είναι πολύ δραστική για να αποφέρει καλά αποτελέσματα. Ένας πιο επιτυχημένος υπολογισμός του $\chi^{(n)}$ μπορεί να γίνει μέσω του μοντέλου δεσμού (bond model). Ένα τέτοιο μοντέλο χρησιμοποιήθηκε στις αρχές της δεκαετίας του 1930 για να υπολογιστεί η γραμμική πολωσιμότητα ενός μορίου ή η γραμμική διηλεκτρική σταθερά ενός κρυστάλλου¹⁴. Ο κανόνας προσθετικότητας του δεσμού λήφθηκε υπόψη: οι επαγόμενες πολώσεις σε ένα μόριο (ή έναν κρύσταλλο) είναι το διανυσματικό άθροισμα των επαγόμενων πολώσεων όλων των δεσμών που υπάρχουν μεταξύ των ατόμων. Με άλλα λόγια, η αλληλεπίδραση δεσμού – δεσμού αγνοείται. Ο ίδιος κανόνας μπορεί να χρησιμοποιηθεί στους υπολογισμούς του $\chi^{(n)}$. Μπορούμε να γράψουμε

$$\chi^{(n)} = \sum_{\mathbf{K}} \alpha_{\mathbf{K}}^{(n)} \quad (2.33)$$

όπου $\alpha_{\kappa}^{(n)}$ είναι η μη γραμμική πολωσιμότητα νιοστής τάξης του K^{th} δεσμού στον κρύσταλλο (ή στο μέσο), και η άθροιση αφορά σε όλους τους δεσμούς σε μια μονάδα όγκου. Επομένως, με δεδομένη τη δομή του κρυστάλλου, ο υπολογισμός του $\chi^{(n)}$ περιορίζεται στον υπολογισμό της $\alpha_{\kappa}^{(n)}$ για διαφορετικούς τύπους δεσμών.

Εδώ, γίνεται λόγος μόνο για τους υπολογισμούς του $\chi^{(2)}$, χρησιμοποιώντας κρυστάλλους σφαλερίτη, ως παράδειγμα. Η γενική διαδικασία έχει ως ακολούθως. Υπολογίζεται πρώτα, η γραμμική πολωσιμότητα δεσμού $\alpha_{\kappa}^{(1)}$, ως συνάρτηση του εφαρμοσμένου πεδίου, χρησιμοποιώντας την προσφάτως ανεπτυγμένη θεωρία του δεσμού¹⁵. Τότε, εξάγεται η μη γραμμική πολωσιμότητα δεσμού δευτέρας τάξης $\alpha_{\kappa}^{(2)}$ από την πρώτη παράγωγο της $\alpha_{\kappa}^{(1)}$ σε σχέση με το εφαρμοσμένο πεδίο. Τέλος, υπολογίζεται το άθροισμα της (2.33) στους δεσμούς, ώστε να βρεθεί το $\chi^{(2)}$. Υποθέτουμε εδώ, ότι ένας απλός κρύσταλλος, μπορεί να κατασκευαστεί εξ ολοκλήρου από τον ίδιο τύπο δεσμών και ότι οι δεσμοί παρουσιάζουν κυλινδρική συμμετρία. Η γραμμική επιδεκτικότητα $\chi_{ii}^{(1)}$ του κρυστάλλου, μπορεί τότε να γραφτεί ως

$$\begin{aligned}\chi_{ii}^{(1)} &= \left(\sum_{\kappa} \alpha_{\kappa}^{(1)} \right)_{ii} \\ &= G_{\parallel}^{(1)} \alpha_{\parallel}^{(1)} + G_{\perp}^{(1)} \alpha_{\perp}^{(1)} \\ &= \left(G_{\parallel}^{(1)} + \mu G_{\perp}^{(1)} \right) \alpha_{\parallel}^{(1)}\end{aligned}\quad (2.34)$$

όπου $\alpha_{\parallel}^{(1)}$ και $\alpha_{\perp}^{(1)}$ είναι οι πολωσιμότητες παράλληλα και κάθετα στον δεσμό, $\mu = \alpha_{\perp}^{(1)} / \alpha_{\parallel}^{(1)}$, και $G_{\parallel}^{(1)}$ και $G_{\perp}^{(1)}$ είναι οι αντίστοιχοι γεωμετρικοί παράγοντες που προκύπτουν από την διανυσματική πρόσθεση στους δεσμούς. Και ο $G_{\parallel}^{(1)}$ και ο $G_{\perp}^{(1)}$ είναι ανάλογοι προς τον αριθμό των μοναδιαίων κελιών ανά μονάδα όγκου. Για τη δομή του σφαλερίτη, $G_{\parallel}^{(1)} = \frac{1}{2} G_{\perp}^{(1)} = 4N/3$, και η (2.34) γίνεται

$$\chi_{ii}^{(1)} = \frac{4N}{3} (1 + 2\mu) \alpha_{\parallel}^{(1)}.\quad (2.35)$$

Το επόμενο βήμα είναι να βρεθεί μια παραπλήσια έκφραση για $\alpha_{\parallel}^{(1)}$ μέσω του $\chi_{ii}^{(1)}$. Η μικροσκοπική έκφραση του $\chi_{ii}^{(1)}$ στην (2.17) χωρίς συντονισμούς, έχει τη μορφή

$$\chi_{ii}^{(1)} = \frac{Ne^2}{\hbar} \sum_{g, n} \frac{|r_{i|ng}|^2}{\omega_{ng}^2 - \omega^2} 2\omega_{ng} \rho_g^{(0)} \quad (2.36)$$

Στο όριο χαμηλής θερμοκρασίας, $\rho_g^{(0)} = 0$ για όλες τις καταστάσεις εκτός από την βασική. Έπειτα, ακολουθώντας την προσέγγιση της αντικατάστασης της ω_{ng} στον παρανομαστή από μια μέση $\bar{\omega}_{ng}$ και τον κανόνα άθροισης¹⁶

$$2 \sum_n \omega_{ng} |r_{i|ng}|^2 = \frac{\hbar}{m} \quad (2.37)$$

η (2.36) γίνεται

$$\chi_{ii}^{(1)} = \frac{\Omega_p^2}{4\pi(\bar{\omega}_{ng}^2 - \omega^2)} \quad (2.38)$$

με $\Omega_p^2 = 4\pi Ne^2/m$ να είναι η συχνότητα ταλάντωσης του πλάσματος. Αυτή η απλοποιημένη έκφραση για $\chi_{ii}^{(1)}$ έχει περιγραφεί λεπτομερέστερα από τον Penn για στερεά στο όριο της μηδενικής συχνότητας¹⁷. Από την (2.34), έχουμε τώρα

$$G_{\parallel}^{(1)} \alpha_{\parallel}^{(1)} + G_{\perp}^{(1)} \alpha_{\perp}^{(1)} = (G_{\parallel}^{(1)} + \mu G_{\perp}^{(1)}) \alpha_{\parallel}^{(1)} = \frac{\Omega_p^2}{4\pi(\bar{\omega}_{ng}^2 - \omega^2)} \quad (2.39)$$

Ενδιαφερόμαστε, όμως, για την $\alpha_{\parallel}^{(1)}$ ως μια συνάρτηση του εφαρμοσμένου πεδίου. Η πολωσιμότητα πρέπει να εξαρτάται από το πεδίο, μέσω της διαταραχής πεδίου στις συχνότητες μετάβασης και τα στοιχεία του πίνακα. Παρόλα αυτά, στον προσεγγιστικό τύπο της (2.39), το $\alpha_{\parallel}^{(1)}$ μπορεί να εξαρτηθεί από το πεδίο, μόνο μέσω της $\bar{\omega}_{ng}^2$. Για να βρεθεί μια έκφραση για την $\bar{\omega}_{ng}^2$, πρέπει να γίνει χρήση της θεωρίας του δεσμού. Από φυσικής άποψης, η $\hbar \bar{\omega}_{ng} \equiv \bar{E}_g$ μπορεί να θεωρηθεί ως ένα μέσο ενεργειακό χάσμα ανάμεσα σε πλήρεις και μη πλήρεις καταστάσεις. Μπορεί να γραφτεί ως¹⁵

$$\bar{E}_g = [E_h^2 + C^2]^{1/2} \quad (2.40)$$

όπου E_h και C είναι γνωστά ως ομοιοπολικά και ετεροπολικά χάσματα, αντίστοιχα, που στη θεωρία δεσμού έχουν τις εκφράσεις

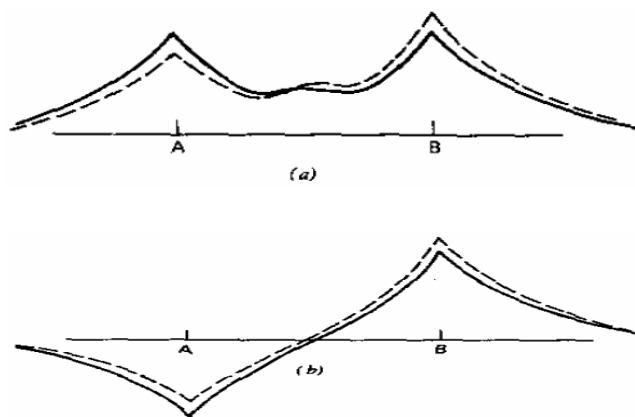
$$\mathbf{E}_h^{-2} \cong ad^{2s} \quad \text{και} \quad C \cong b \left(\frac{Z_A}{r_A} - \frac{Z_B}{r_B} \right) e^{-k, d/2} \quad (2.41)$$

Σε αυτές τις εκφράσεις, τα a , b και s είναι σταθεροί συντελεστές, Z_A και Z_B είναι τα σθένη και r_A και r_B είναι οι ισοσθενείς ακτίνες των ατόμων A και B που σχηματίζουν το δεσμό, $d = r_A + r_B$ είναι το μήκος του δεσμού και $\exp(-k, d/2)$ είναι ο παράγοντας θωράκισης Thomas-Fermi. Εάν A και B είναι πανομοιότυπα άτομα, τότε $C = 0$. Η εξίσωση (2.40) μπορεί να εξαχθεί εύκολα, μέσω της Θεωρίας των μοριακών τροχιακών.¹⁸ Τα ηλεκτρόνια δεσμού έχουν δυο ιδιοκαταστάσεις, μια δεσμική κατάσταση και μια αντιδεσμική κατάσταση. Η διαφορά ενέργειας ανάμεσα στις δυο καταστάσεις είναι $\bar{\mathbf{E}}_g$. Για έναν ομοιοπολικό δεσμό ($A=B$), τα ηλεκτρόνια δεσμού αντιμετωπίζουν ένα συμμετρικό δυναμικό ως προς το κέντρο του δεσμού και $\bar{\mathbf{E}}_g = \mathbf{E}_h$. Για έναν ετεροπολικό δεσμό ($A \neq B$), τα ηλεκτρόνια δεσμού αντιμετωπίζουν ένα αντισυμμετρικό δυναμικό και $\bar{\mathbf{E}}_g^2 = \mathbf{E}_h^2 + C^2$, με C ανάλογο προς το αντισυμμετρικό μέρος του δυναμικού. Οι κυματοσυναρτήσεις των δεσμικών και αντιδεσμικών καταστάσεων κατά μήκος του δεσμού, φαίνονται στο Σχ. 2.4. Φαίνεται ότι στην ετεροπολική περίπτωση, υπάρχει μια μεταφορά φορτίου από την πλευρά με το λιγότερο ηλεκτροαρνητικό άτομο στην πλευρά με το περισσότερο ηλεκτροαρνητικό άτομο. Σύμφωνα με τη Θεωρία των μοριακών τροχιακών, η ποσότητα της μεταφερόμενης ενέργειας Q σχετίζεται με το ετεροπολικό χάσμα C μέσω της σχέσης

$$Q = - \frac{eC}{\bar{\mathbf{E}}_g} \quad (2.42)$$

Το Σχ. 2.4 δείχνει επίσης ότι υπάρχει ένα φορτισμένο νέφος δεσμού, μεταξύ των δυο ατόμων. Το μέγεθος του φορτίου του δεσμού εξάγεται από την Θεωρία του δεσμού και είναι

$$q = - \frac{2e\bar{\mathbf{E}}_g^2}{\bar{\mathbf{E}}_g^2 + \hbar^2\Omega_p^2} \quad (2.43)$$



Σχ. 2.4 Σχέδια των ηλεκτρονικών κυματοσυναρτήσεων της (α) δεσμικής κατάστασης και (β) αντιδεσμικής κατάστασης κατά μήκος του δεσμού που συνδέει τα άτομα A και B. Οι συνεχόμενες καμπύλες είναι για την ομοιοπολική περίπτωση και οι καμπύλες με τις διακεκομμένες γραμμές είναι για την ετεροπολική περίπτωση.

Ο Levine¹⁹ προτείνει ότι το φορτίο του δεσμού μπορεί να θεωρηθεί ως ένα σημειακό φορτίο που βρίσκεται σε αποστάσεις r_A και r_B , αντίστοιχα, από τα άτομα A και B. Μπορούμε τώρα να δούμε πώς η πολωσιμότητα του δεσμού αλλάζει, όταν ο δεσμός βρίσκεται υπό την επίδραση εξωτερικού πεδίου. Η αλλαγή συμβαίνει μέσω της διαταραχής πεδίου στην κατανομή του φορτίου. Στην περιγραφή μας, εδώ, η $\alpha_{\parallel}^{(1)}$ εξαρτάται από το εφαρμοσμένο πεδίο E, μέσω της εξάρτησης του \bar{E}_g από το E,

$$\frac{\partial \bar{E}_g}{\partial E_i} = \frac{1}{E_g} \left(E_h \frac{\partial E_h}{\partial E_i} + C \frac{\partial C}{\partial E_i} \right) \quad (2.44)$$

ενώ το E_h και το C εξαρτώνται από το E , μέσω αλλαγών στο φορτίο μεταφοράς και στο φορτίο δεσμού, οι οποίες προκαλούνται από το πεδίο. Παρόλα αυτά, αφού το εφαρμοσμένο πεδίο δεν αναμένεται να αλλάξει το μήκος του δεσμού, έχουμε $\partial E_h / \partial E_i = 0$ από την (2.41). Η μη γραμμική πολωσιμότητα δεσμού δευτέρας τάξης $\alpha_{ij}^{(2)}$ εξάγεται από την $\partial \alpha_{ij}^{(1)} / \partial E_k$. Εάν τα $\hat{\xi}$ και $\hat{\eta}$ δηλώνουν τις δυο κατευθύνσεις παράλληλα και κάθετα στον δεσμό, αντίστοιχα, τότε από το θεώρημα της συμμετρίας, μόνο τα $\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)}$ και $\alpha_{\eta\eta\eta}^{(2)}$ είναι μη μηδενιζόμενα. Επίσης, αγνοούμε το $\alpha_{\eta\eta\eta}^{(2)}$, υποθέτοντας ότι ένα πεδίο εγκάρσιο προς τον δεσμό, δεν θα διαταράξει σημαντικά την κατανομή φορτίου. Επομένως, το $\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)}$ είναι το μόνο μη μηδενιζόμενο στοιχείο του $\alpha^{(2)}$. Χρησιμοποιώντας τις (2.39) και (2.44), βρίσκουμε

$$\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)} = \frac{\partial \alpha_{\parallel}^{(1)}}{\partial E_{\xi}} = \frac{-2\hbar^2 \Omega_p^2 C}{4\pi(G_{\parallel}^{(1)} + \mu G_{\perp}^{(1)})(\bar{E}_g^2 - \hbar^2 \omega^2)^2} \frac{\partial C}{\partial E_{\xi}} \quad (2.45)$$

Τώρα, είτε η (2.41) είτε η (2.42) μπορούν να χρησιμοποιηθούν για να υπολογιστεί το $\frac{\partial C}{\partial E_{\xi}}$. Αυτές οι δυο σχέσεις όμως, αντιστοιχούν σε δυο διαφορετικές φυσικές εικόνες (καταστάσεις). Στη (2.41), το εφαρμοσμένο πεδίο αλλάζει τις r_A και r_B , αλλά διατηρεί τη σχέση $r_A + r_B = d$. Σε σχέση με το απλό μοντέλο, όπου το φορτίο δεσμού μπορεί να θεωρηθεί ως ένα σημειακό φορτίο που βρίσκεται σε αποστάσεις r_A και r_B , μακριά από τα άτομα Α και Β, το πεδίο, τότε, μετατοπίζει απλώς τη θέση του φορτίου του δεσμού κατά μήκος του δεσμού. Αυτό είναι γνωστό ως το *μοντέλο φορτίου δεσμού*¹⁹. Στην (2.42), αντίθετα, η διαταραχή πεδίου στη μεταφορά φορτίου Q είναι αυτή που σχετίζεται με το πεδίο. Αυτό είναι το *μοντέλο μεταφοράς φορτίου*²⁰. Το μοντέλο φορτίου δεσμού συνεπάγεται, με $\Delta_r \equiv \Delta_{rA} = -\Delta_{rB}$,

$$\frac{\partial C}{\partial E_{\xi}} = \left(\frac{\partial C}{\partial r_A} - \frac{\partial C}{\partial r_B} \right) \frac{\partial r}{\partial E_{\xi}} \quad (2.46)$$

και αφού $q\Delta r = \alpha_{\parallel}^{(1)}(\omega')\Delta E_{\xi}(\omega')$ για $\omega' \rightarrow 0$, βρίσκουμε από τις (2.41), (2.45), (2.46), (2.34) και (2.38)

$$\begin{aligned} (\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)})_{B.C.} &= \frac{\hbar^2 \Omega_p^2 \alpha_{\parallel}^{(1)}(\omega') C}{2\pi q (G_{\parallel}^{(1)} + \mu G_{\perp}^{(1)}) (\bar{E}_g^2 - \hbar^2 \omega^2)^2} \left[\frac{Z_A}{r_A^2} + \frac{Z_B}{r_B^2} \right] b e^{-k, d/2} \\ &= \frac{8\pi C [\chi_{ii}^{(1)}(\omega)]^2 \chi_{ii}^{(1)}(\omega')}{(G_{\parallel}^{(1)} + \mu G_{\perp}^{(1)})^2 q \hbar^2 \Omega_p^2} \left[\frac{Z_A}{r_A^2} + \frac{Z_B}{r_B^2} \right] b e^{-k, d/2}. \end{aligned} \quad (2.47)$$

Το μοντέλο μεταφοράς φορτίου μετά την (2.42) δίνει

$$\frac{\partial C}{\partial E_{\xi}} = -\frac{1}{e} \frac{\bar{E}_g^3}{E_h^2} \frac{\partial Q}{\partial E_{\xi}}. \quad (2.48)$$

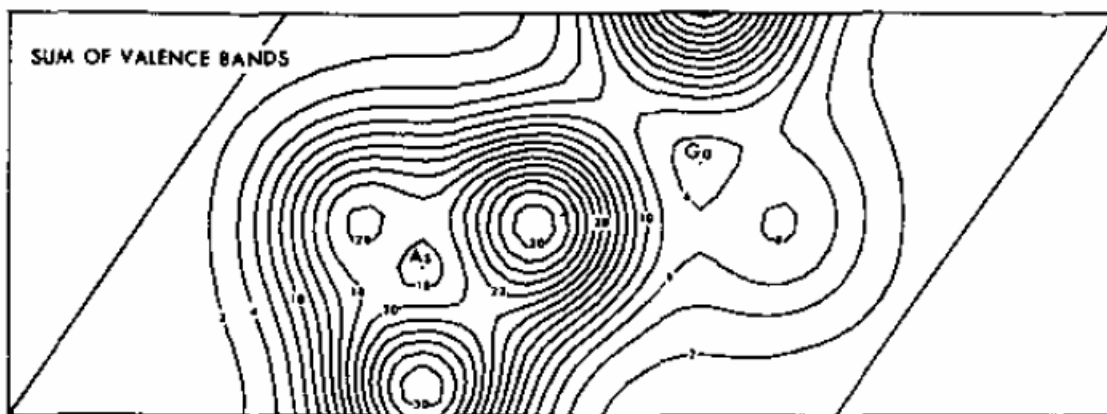
Σε αυτό το μοντέλο, θεωρούμε ότι η μεταφορά φορτίου που οφείλεται στο πεδίο γίνεται από το άτομο B στο άτομο A, θεωρώντας τα άτομα ως σημεία. Αφού $\alpha_{ii}^{(1)}(\omega') \Delta E_{\xi}(\omega') = \Delta Q d_i$, έχουμε από τις (2.45) και (2.48)

$$\begin{aligned} (\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)})_{C.T.} &= \frac{\hbar^2 \Omega_p^2 C \bar{E}_g^3 \alpha_{ii}^{(1)}(\omega')}{2\pi (G_{\parallel}^{(1)} + \mu G_{\perp}^{(1)}) (\bar{E}_g^2 - \hbar^2 \omega^2)^2 e d E_h^2} \\ &= \frac{8\pi C \bar{E}_g^3 [\chi_{ii}^{(1)}(\omega)]^2 \chi_{ii}^{(1)}(\omega')}{(G_{\parallel}^{(1)} + \mu G_{\perp}^{(1)})^2 e d E_h^2 \hbar^2 \Omega_p^2} \end{aligned} \quad (2.49)$$

Θα πρέπει όμως, να θυμόμαστε ότι, η περιγραφή, του πώς ένα εφαρμοσμένο πεδίο τροποποιεί την κατανομή φορτίου και στα δυο μοντέλα είναι ακόμη αρκετά πρόχειρη. Στην πραγματικότητα, τα ηλεκτρονικά φορτία κατανέμονται ευρέως στην περιοχή μεταξύ των δυο ατόμων. Η κορυφή της κατανομής είναι κοντά στο κέντρο του δεσμού. Σαν παράδειγμα, παρουσιάζεται στο Σχ. 2.5²¹ ένας χάρτης καμπυλών της κατανομής ηλεκτρονίων σθένους γύρω από έναν Ga-As δεσμό, που εξήχθη από εμπειρικό ψευδοδυναμικό υπολογισμό. Κατά την παρουσία ενός εξωτερικού dc πεδίου κατά μήκος του δεσμού, η κατανομή του φορτίου γίνεται μόνο ελαφρώς πιο ασύμμετρη, με την κορυφή του, ουσιαστικά, να μην έχει μετατοπιστεί. Αυτό φαίνεται στο Σχ. 2.6 για κατανομές φορτίου κατά μήκος των Si-Si και Ga-As δεσμών²². Η προκαλούμενη από το πεδίο μετατόπιση του φορτίου δεσμού στο μοντέλο δεσμού-φορτίου αναφέρεται, στην πραγματικότητα, στη μετατόπιση του κέντρου βαρύτητας της κατανομής ηλεκτρονίων σθένους, ενώ η προκαλούμενη από το πεδίο μεταφορά φορτίου στο μοντέλο μεταφοράς φορτίου, αναφέρεται στην ανακατανομή των φορτίων σθένους γύρω από τον δεσμό, από τη μια πλευρά του κέντρου του δεσμού στην άλλη.

Τελικά, λαμβάνουμε $\chi_{ijk}^{(2)}$ ενός δεδομένου μέσου από $\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)}$ για διάφορους δεσμούς, όπου \hat{i}, \hat{j} και \hat{k} , δηλώνουν τους τρεις ορθογώνιους άξονες συμμετρίας στον κρύσταλλο:

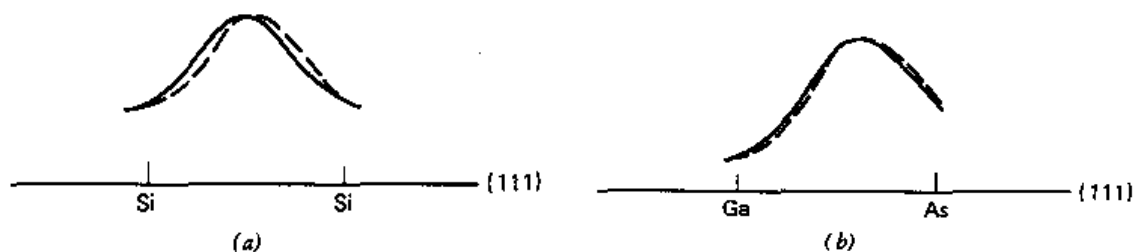
$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)} &= \sum_{\mathbf{K}} (\alpha_{\mathbf{K}}^{(2)})_{ijk} \\ &= \sum_{\Lambda} (G_{\Lambda}^{(2)})_{ijk} (\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)})_{\Lambda} \end{aligned} \quad (2.50)$$



Σχ. 2.5 Χάρτης καμπυλών της κατανομής πυκνότητας ηλεκτρονίων σθένους (σε μονάδες του e ανά βασικό κελί) για GaAs στο $(1, -1, 0)$ επίπεδο. (Από Αναφ. 21).

όπου $(G_{\Lambda}^{(2)})_{ijk}$ είναι ο γεωμετρικός παράγοντας για τους δεσμούς Λ -τύπου που αντικατοπτρίζουν τη δομή του μέσου. Να σημειωθεί ότι με το $\alpha_{\xi\xi\xi}^{(2)}_{\Lambda}$ να εκφράζεται ως προς το $\chi_{ii}^{(1)}$, παρά ως προς το $\alpha_{ii}^{(1)}$ στις (2.47) και (2.49), ακόμη και η συνολική διόρθωση πεδίου έχει ληφθεί με κάποιο τρόπο υπόψη στην παραπάνω εξαγωγή.

Χρησιμοποιούμε τώρα InSb ως ένα παράδειγμα για να απεικονιστεί ο υπολογισμός του $\chi_{ijk}^{(2)}$. Ο κρύσταλλος έχει τη δομή ενός σφαλερίτη· επομένως, τα μόνα μη μηδενιζόμενα στοιχεία του $\chi^{(2)}$ είναι $\chi_{ijk}^{(2)}$ με $i \neq j \neq k$. Υπάρχει μόνο ένα είδος δεσμού στον κρύσταλλο: εκείνος που συνδέει το In και το Sb. Ο γεωμετρικός παράγοντας $G_{xyz}^{(2)}$ δίνεται τότε από τη σχέση $4N/3\sqrt{3}$ και η πυκνότητα των μοναδιαίων κελιών N σχετίζεται με το μήκος δεσμού d μέσω της $N = 3\sqrt{3} / 16d^3$. Έχουμε επίσης $G_{ii}^{(1)} = \frac{1}{2}G_{\perp}^{(1)} = 4N/3$.



Από τις (2.47), (2.49) και (2.50), το μοντέλο φορτίου δίνει τη σχέση (2.51)

Σχ. 2.6 Σχήματα της κατανομής φορτίου κατά μήκος του δεσμού σε (α) Si και (β) GaAs. Οι συνεχόμενες και διακεκομμένες καμπύλες αναφέρονται σε περιπτώσεις με και χωρίς εξωτερικό πεδίο, κατά μήκος του δεσμού αντίστοιχα (Ευγενική παραχώρηση του S.Louie)

$$\left(\chi_{xyz}^{(2)}\right)_{\text{B.C.}} = \frac{32\pi d^3 C [\chi^{(1)}(\omega)]^2 [\chi^{(1)}(\omega')]}{3(1+2\mu)^2 q \hbar^2 \Omega_p^2} \left[\frac{Z_A}{r_A^2} + \frac{Z_B}{r_B^2} \right] b e^{-k_s d/2} \quad (2.51)$$

και το μοντέλο μεταφοράς φορτίου δίνει

$$\left(\chi_{xyz}^{(2)}\right)_{\text{C.T.}} = \frac{32\pi d^2 C \bar{E}_g^3 [\chi^{(1)}(\omega)]^2 [\chi^{(1)}(\omega')]}{3(1+2\mu)^2 e E_h^2 \hbar^2 \Omega_p^2} \quad (2.52)$$

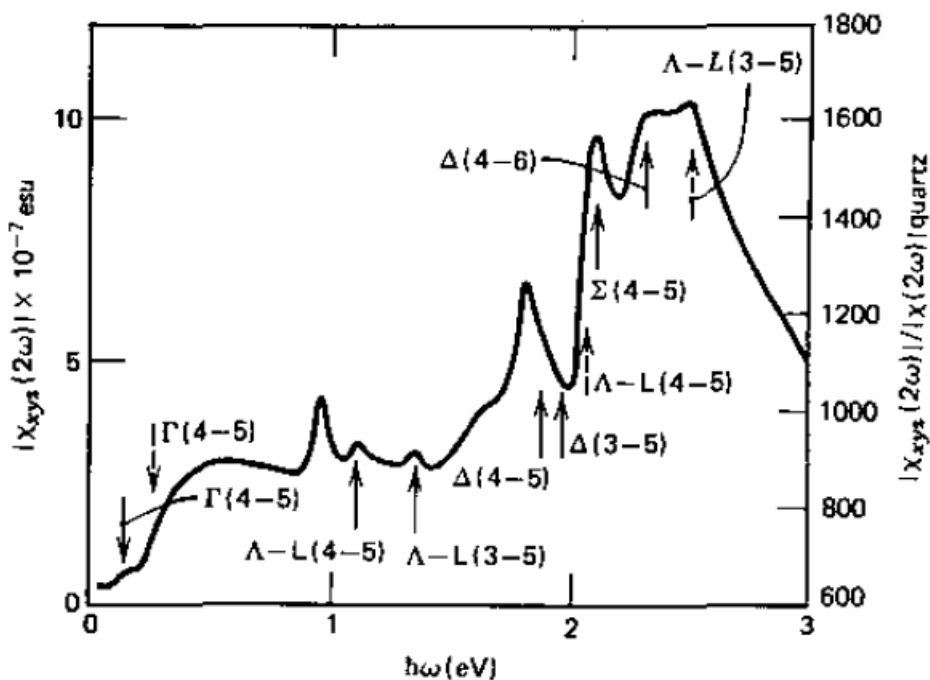
Υπολογίζουμε εδώ $\chi_{xyz}^{(2)}$ στο όριο χαμηλής συχνότητας $\omega \sim \omega' \sim 0$. Για InSb, $d=2.5\text{\AA}$, $\bar{E}_g = 3.7 \text{ eV}$, $E_h = 3.1 \text{ eV}$, $C = 2.1 \text{ eV}$, $\chi^{(1)} = 1.17 \text{ esu}$, $\hbar\Omega_p = 13 \text{ eV}$, $Z_A=3$, $Z_B = 5$, $r_A \approx r_B = d/2$, $b \exp(-k_s d/2) \approx 0,12 e^2$, $\mu \approx 1/2$ και $q \approx 0,6e$,²³ παίρνουμε $(\chi_{xyz}^{(2)})_{\text{B.C.}} = 1,6 \times 10^{-6} \text{ esu}$ και $(\chi_{xyz}^{(2)})_{\text{C.T.}} \approx 2,3 \times 10^{-6} \text{ esu}$. Τα αποτελέσματα των δυο μοντέλων είναι σε γενικές γραμμές σύμφωνα με την πειραματική τιμή του $\chi_{xyz}^{(2)} = (3,3 \pm 0,7) \times 10^{-6} \text{ esu}$. Το αποτέλεσμα αυτό, πρέπει να θεωρηθεί ικανοποιητικό, λαμβάνοντας υπόψη τις χονδροειδείς προσεγγίσεις στα μοντέλα.

Οι υπολογισμοί μπορούν επίσης να επεκταθούν και σε υψηλότερης τάξης μη γραμμικές επιδεκτικότητες. Παρόλα αυτά, εξαιτίας των εμπλεκόμενων χονδροειδών προσεγγίσεων, γίνονται πολύ λιγότερο αξιόπιστοι. Επίσης, αφού χρησιμοποιούμε το σχήμα του ομοιοπολικού δεσμού στα μοντέλα, οι υπολογισμοί είναι λιγότερο κατάλληλοι για ιονικούς κρυστάλλους. Στη μη γραμμική οπτική, ενδιαφερόμαστε συχνά για υλικά με υψηλή μη γραμμικότητα. Το θέμα αυτό υπονοεί ότι τα υλικά θα πρέπει να έχουν υψηλή μη γραμμικότητα στις πολωσιμότητες του δεσμού. Για μεγάλο $\chi^{(2)}$, η δομή του κρυστάλλου θα πρέπει να είναι όσο το δυνατόν πιο ασύμμετρη, έτσι ώστε να υπάρχει μια ελάχιστη διανυσματική ακύρωση κατά την άθροιση $\alpha_k^{(2)}$ όλων των δεσμών.

Οι υπολογισμοί εδώ είναι καλοί μόνο στο όριο χαμηλής συχνότητας. Οι προσεγγίσεις στα μοντέλα δεν ισχύουν όταν οι οπτικές συχνότητες είναι κοντά στις ζώνες απορρόφησης. Λόγω της ενίσχυσης του συντονισμού, οι μεταβάσεις, με τις συχνότητες μετάβασης να βρίσκονται πιο κοντά στις οπτικές συχνότητες, συνεισφέρουν περισσότερο στις επιδεκτικότητες. Για να υπολογιστεί το $\chi^{(n)}$ και η διασπορά του σε αυτές τις περιπτώσεις, πρέπει να χρησιμοποιήσουμε την πλήρη μικροσκοπική έκφραση του $\chi^{(n)}$ όπως εκείνη που εξήχθη στην Ενότητα 2.2. Έπειτα, προκύπτει η ανάγκη για αναλυτικές πληροφορίες σχετικά με τα στοιχεία μετάβασης του πίνακα και τις συχνότητες του υλικού.

Τέτοιοι υπολογισμοί έχουν διεξαχθεί από διάφορους συγγραφείς για το $\chi^{(2)}(2\omega)$ των ημιαγωγών σφαλερίτη, με ποικίλους βαθμούς προσέγγισης. Στις περισσότερες περιπτώσεις, λαμβάνονται υπόψη τα στοιχεία - σταθερές του πίνακα. Οι πιο ακριβείς υπολογισμοί, όμως, είναι αυτοί με κυματοσυναρτήσεις και ενέργειες καταστάσεων ζώνης, που έχουν εξαχθεί μέσω της εμπειρικής ψευδοδυναμικής μεθόδου²⁴, η οποία είναι εξαιρετικά επιτυχής στο να αναπαράγει το $\chi^{(1)}(\omega)$ για ημιαγωγούς σφαλερίτη· θα πρέπει λοιπόν, να αποφέρει επίσης ακριβή αποτελέσματα για $\chi^{(2)}(2\omega)$. Ένα παράδειγμα για InSb φαίνεται στο Σχ. 2.7. Οι κορυφές και οι παράπλευρες κορυφές στο φάσμα ανταποκρίνονται γενικά σε συντονισμούς από ω ή 2ω με τις μεταβάσεις κρίσιμου σημείου. Τα αποτελέσματα δείχνουν επίσης ότι είναι σημαντικό να

Συντελεστής Miller



Σχ. 2.7 Διασπορά του $\chi_{xyz}^{(2)}(2\omega)$ του InSb που υπολογίστηκε χρησιμοποιώντας εμπειρική ψευδοδυναμική μέθοδο. Οι κορυφές προκύπτουν από διαζωνικές μεταβάσεις στις περιοχές που υποδεικνύονται. (Βιβλ. Αναφ. 24).

συμπεριληφθούν στους υπολογισμούς τα φαινόμενα διασποράς και των στοιχείων του πίνακα και της πυκνότητας των καταστάσεων για τις μεταβάσεις.

Πλήρεις κβαντικοί μηχανικοί υπολογισμοί του $\chi^{(2)}$ της (2.17) για μοριακούς κρυστάλλους, έχουν επίσης διεξαχθεί μέσω της χρήσης ημι-εμπειρικών Hartree-Fock LCAO (γραμμικός συνδυασμός ατομικών τροχιακών) μεθόδων από πολλούς ερευνητές²⁵.

Οι ερευνητές αυτοί, μπόρεσαν να προβλέψουν αρκετά ικανοποιητικά τις μετρηθείσες τιμές του $\chi^{(2)}$. Πολύ ασύμμετρα μόρια με δυνατές ζώνες μεταφοράς φορτίου φαίνεται να αποφέρουν μεγάλες τιμές του $|\chi^{(2)}|$, αν η δομή του κρυστάλλου είναι επίσης πολύ ασύμμετρη.

2.8 Συντελεστής Miller

Ο Miller όρισε έναν συντελεστή²⁶

$$\Delta_{ijk} = \frac{\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)}{\chi_{ii}^{(1)}(\omega_3)\chi_{jj}^{(1)}(\omega_1)\chi_{kk}^{(1)}(\omega_2)} \quad (2.53)$$

και βρήκε εμπειρικά ότι το Δ_{ijk} έχει μόνο αδύναμη διασπορά και αποτελεί σχεδόν μια σταθερά, για μια μεγάλη ποικιλία κρυστάλλων. Αυτό είναι γνωστό και ως *ο κανόνας του Miller*, ο οποίος προτείνει ότι τα πολύ πυρίμαχα υλικά, θα πρέπει να έχουν μεγάλες μη γραμμικές επιδεκτικότητες. Η αδύναμη διασπορά του Δ_{ijk} μπορεί να τη δει κάποιος είτε από τη σκοπιά του μοντέλου του φορτίου δεσμού είτε από τη σκοπιά του μοντέλου μεταφοράς φορτίου. Οι εξισώσεις (2.51) και (2.52) δείχνουν ότι για $\omega' \rightarrow 0$,

$$\Delta_{ijk} = \text{σταθερά ανεξάρτητη από συχνότητες}$$

Η σταθερά είναι όμως, ανάλογη με το ετεροπολικό χάσμα C και αλλάζει, αν και πολύ λίγο, από κρύσταλλο σε κρύσταλλο. Το γεγονός ότι η μετρηθείσα Δ_{ijk} είναι πράγματι ανάλογη ως προς το C για έναν μεγάλο αριθμό ημιαγωγών, έχει παρουσιαστεί από τον Levine¹⁹. Για έναν κρύσταλλο με αρκετούς διαφορετικούς τύπους δεσμών, ένας σταθμισμένος μέσος C πρέπει να χρησιμοποιηθεί. Οι τιμές του Δ_{ijk} για τους περισσότερους μη γραμμικούς κρυστάλλους είναι περίπου λίγες φορές τα 10^{-6} esu.

2.9 Συμβάσεις μη γραμμικών επιδεκτικότητων

Οι ορισμοί για τις μη γραμμικές επιδεκτικότητες ποικίλουν στη βιβλιογραφία και έχουν προκαλέσει και κάποια σύγχυση. Η ενότητα αυτή ξεκαθαρίζει τις συμβάσεις που χρησιμοποιούνται σε αυτό το βιβλίο. Ο ορισμός των μη γραμμικών επιδεκτικότητων διέπεται από την ακόλουθη σχέση μεταξύ μη γραμμικής πόλωσης $P^{(n)}$ και των ηλεκτρικών πεδίων E_i : $P^{(n)}(\omega) = \chi^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) : E_1(\omega_1) E_2(\omega_2) \dots E_n(\omega_n)$ (2.54) με E_i και $P^{(n)}$ να εκφράζονται ως σύνθετες ποσότητες:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_i &= \mathcal{E}_i \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - i\omega_i t) \\ \mathbf{P}^{(n)}(\omega) &= \mathcal{P}^{(n)} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t) \end{aligned} \quad (2.55)$$

υποθέτοντας ότι ω_i και ω είναι μη μηδενικά. Πολλοί συγγραφείς έχουν γράψει τα πλάτη των \mathbf{E}_i και $\mathbf{P}^{(n)}$ με κάπως διαφορετικούς τύπους, όπως

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_i &= \frac{1}{2} \mathcal{E}'_i \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - i\omega_i t) \\ \mathbf{P}^{(n)}(\omega) &= \frac{1}{2} \mathcal{P}'^{(n)} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t) \end{aligned} \quad (2.56)$$

και όρισαν έναν μη γραμμικό συντελεστή $\mathbf{d}^{(n)}$ για να συνδεθούν τα πλάτη $\mathcal{P}'^{(n)} = \mathbf{d}^{(n)} : \mathcal{E}'_1 \mathcal{E}'_2 \cdots \mathcal{E}'_n$ (2.57) ή $\mathbf{P}^{(n)} = (2)^{n-1} \mathbf{d}^{(n)} : \mathbf{E}_1 \mathbf{E}_2 \cdots \mathbf{E}_n$ (2.58). Συγκρίνοντας τις (2.54) και (2.58) έχουμε $\mathbf{d}^{(n)} = (2)^{-n+1} \chi^{(n)}$ (2.59) και ιδιαίτερα $d_{ijk}^{(2)} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}$. Η εξίσωση (2.59), όμως, χρειάζεται τροποποίηση, όταν υπάρχουν dc πεδία. Για $\omega_i = 0$, το αντίστοιχο dc πεδίο \mathbf{E}_i θα πρέπει να συσχετιστεί με τα \mathcal{E}_i και \mathcal{E}'_i μέσω της σχέσης $\mathbf{E}_i = 2\mathcal{E}_i = \mathcal{E}'_i$. Έπειτα, αν s των n πεδίων, δηλαδή, $\mathbf{E}_1, \dots, \mathbf{E}_s$, είναι dc, έχουμε κατά τις (2.54) και (2.57) ως ορισμούς για $\chi^{(n)}$ και $\mathbf{d}^{(n)}$,

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(n)} &= \chi^{(n)} : \mathbf{E}_1 \cdots \mathbf{E}_s \left(\frac{1}{2}\right)^{n-s} \mathcal{E}'_{s+1} \cdots \mathcal{E}'_n \exp[i(\mathbf{k}_{s+1} + \cdots + \mathbf{k}_n) \cdot \mathbf{r} \\ &\quad - i(\omega_{s+1} + \cdots + \omega_n)t] \\ &= \frac{1}{2} \mathbf{d}^{(n)} : \mathbf{E}_1 \cdots \mathbf{E}_s \mathcal{E}'_{s+1} \cdots \mathcal{E}'_n \exp[i(\mathbf{k}_{s+1} + \cdots + \mathbf{k}_n) \cdot \mathbf{r} \\ &\quad - i(\omega_{s+1} + \cdots + \omega_n)t], \end{aligned} \quad (2.60)$$

και επομένως $\mathbf{d}^{(n)} = (2)^{-n+1+s} \chi^{(n)}$. (2.61).

Πιο αναλυτικά, η (2.54) παίρνει τη μορφή

$$\begin{aligned} P_i^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \cdots + \omega_n) \\ = \sum_{i_1, i_2, \dots, i_n} \chi_{i_1 i_2 \dots i_n}^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \cdots + \omega_n) E_{i_1}(\omega_1) E_{i_2}(\omega_2) \cdots E_{i_n}(\omega_n). \end{aligned} \quad (2.62)$$

Η σύμβασή μας είναι ότι ο όρος $\chi_{i_1 i_2 \dots i_n}^{(n)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \cdots + \omega_n) E_{i_1}(\omega_1) E_{i_2}(\omega_2) \cdots E_{i_n}(\omega_n)$ μπορεί να γραφτεί με τα πεδία ταξινομημένα σε οποιοδήποτε σειρά, αρκεί οι υποδείκτες του $\chi^{(n)}$ να είναι ταξινομημένοι στην ίδια σειρά, αλλά δεν θα πρέπει να προκύψει κάποια επιπλέον συνεισφορά στο $P_i^{(n)}$ από τη μετάθεση των πεδίων

στην (2.62). Η συμβατική σημειογραφία απαιτεί ότι η ταξινόμηση πεδίου πρέπει πάντα να ακολουθεί τη σειρά των συχνοτήτων στο όρισμα του $\chi^{(n)}$. Αυτό οδηγεί στο ερώτημα του τι συμβαίνει εάν δυο ή περισσότερα εμπλεκόμενα πεδία έχουν την ίδια συχνότητα. Στη σύμβασή μας, η μετάθεση των πεδίων με ίδια συχνότητα δεν θα πρέπει να αποφέρει επιπλέον συνεισφορά στο $P_i^{(n)}$. Για παράδειγμα, έχουμε γένεση δευτέρας αρμονικής,

$$\begin{aligned} P_x^{(2)}(2\omega) &= \chi_{xyz}^{(2)}(2\omega = \omega + \omega) E_y(\omega) E_z(\omega) \\ &\neq \chi_{xyz}^{(2)} E_y(\omega) E_z(\omega) + \chi_{xzy}^{(2)} E_z(\omega) E_y(\omega). \end{aligned} \quad (2.63)$$

Στη σύμβαση, όμως, χρησιμοποιώντας d συντελεστές, όλοι οι όροι που προέρχονται από μετάθεση πεδίων με την ίδια συχνότητα, πρέπει να συμπεριληφθούν στην έκφραση της μη γραμμικής πόλωσης. Για παράδειγμα,

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} P_x^{(2)}(2\omega) &= d_{xyz}^{(2)}(2\omega) E_y(\omega) E_z(\omega) + d_{xzy}^{(2)}(2\omega) E_z(\omega) E_y(\omega) \\ &= 2d_{xyz}^{(2)}(2\omega) E_y(\omega) E_z(\omega). \end{aligned} \quad (2.64)$$

Σε σύγκριση με την $\frac{1}{2} P_x^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = d_{xyz}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) E_y(\omega_1) E_z(\omega_2)$ (2.65), παρατηρούμε ότι αφού δεν αναμένεται να υπάρχει ξαφνική αλλαγή στη μη γραμμική απόκριση του μέσου όταν η ω_1 πλησιάζει την ω_2 , ο συντελεστής $d_{xyz}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$ πρέπει να μεταβληθεί ομαλά σε $2d_{xyz}^{(2)}(\omega_3 = 2\omega_1)$. Το αποτέλεσμα $[d_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)]_{\omega_1 = \omega_2} = 2d_{ijk}^{(2)}(2\omega_1)$ με $j \neq k$ έχει προκαλέσει μεγάλη σύγχυση. Μια παρόμοια κατάσταση συμβαίνει, όταν ένα ή περισσότερα πεδία έχουν τις συχνότητές τους κοντά στο μηδέν, όπως αναφέραμε προηγουμένως. Η σύμβασή μας εδώ, αποφεύγει μια τέτοια δυσκολία: το $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$ αλλάζει συνεχώς σε $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = 2\omega_1)$, καθώς η ω_1 πλησιάζει την ω_2 ή σε $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 = 0 + \omega_1)$ καθώς η ω_2 πλησιάζει το μηδέν. Η συνεχής διακύμανση του $\chi_{ijk}^{(2)}$ με συχνότητες, μπορεί ξεκάθαρα να φανεί στη μικροσκοπική έκφραση του $\chi_{ijk}^{(2)}$ στην (2.17).

Μια άλλη σύμβαση που προτάθηκε από τους Maker & Terhune²⁷ και συχνά χρησιμοποιείται στη μη γραμμικότητα τρίτης τάξης είναι να επιδεικνύεται ξεκάθαρα ο αριθμός των όρων που μπορεί κάποιος να εξάγει από μετάθεση διαφορετικών συνιστωσών του πεδίου στην έκφραση της μη γραμμικής πόλωσης. Για παράδειγμα, γράφουμε

$$\begin{aligned}
P_i^{(3)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) \\
= \sum_{j,k,l} D_{jkl} C_{ijkl}^{(3)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3)
\end{aligned} \tag{2.66}$$

όπου D_{jkl} είναι ο παράγοντας εκφυλισμού για τους συγκεκριμένους όρους. Εάν $E_j(\omega_1) \neq E_k(\omega_2) \neq E_l(\omega_3)$, τότε $D_{jkl} = 6$, δείχνοντας ότι έξι όροι μπορούν να εξαχθούν από μετάθεση τριών πεδίων. Για $E_j(\omega_1) = E_k(\omega_2) = E_l(\omega_3)$, έχουμε $D_{jkl} = 1$. Η σύμβαση αυτή, έχει επίσης τη δυσκολία ότι οι μη γραμμικοί συντελεστές $C_{ijkl}^{(3)}(\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3)$ ποικίλουν διακοπτόμενα, καθώς οι συχνότητες εκφυλίζονται.

Περαιτέρω ανάλυση για τις μη γραμμικές οπτικές επιδεκτικότητες εμφανίζονται σε επόμενα κεφάλαια, σε συνδυασμό με συγκεκριμένα προβλήματα μη γραμμικής οπτικής.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing & P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 127, 1918 (1962).
2. N. Bloembergen & Y.R. Shen, *Phys. Rev.* 133, A37 (1964).
3. N. Bloembergen, *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
4. C.P. Slitchter, *Principles of Magnetic Resonance*, 2nd ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1978), Chapter 5.
5. N. Bloembergen, H. Lotem & R.T. Lurch, *Indian J. Pure Appl. Phys.* 16,151 (1978)
6. T.K. Yee & T.K. Gustafon, *Phys. Rev.* A18, 1597 (1978).
7. Δες, για παράδειγμα, C. Kittel, *Introducton to Solid State Physics*, 5th ed. (Wiley, New York, 1976), p. 406.
8. D. Bedeaux & N. Bloembergen, *Physica* (Amsterdam), 69, 67 (1973).
9. Y.R. Shen, *Phys. Rev.* 167, 818 (1968).
10. D.A. Kleinman, *Phys. Rev.* 126, 1977 (1962).
11. Δες, για παράδειγμα, J.F. Nye, *Physical Properties of Crystals* (Oxford University Press, London, 1957).
12. P.N. Butcher, *Nonlinear Optical Pnenomena* (Ohio State University Press, Columbus, 1965), pp. 43-50.
13. F.N.H. Robinson, *Bell Syst. Tech. J.* 46, 913 (1967); *J. Phys. C* 1, 286 (1968); S.S. Jha & N. Bloembergen, *Phys. Rev.* 171, 891 (1968); C. Flytzanis & J. Ducuing, *Phys. Rev.* 178, 1218 (1969).
14. K.G. Denbigh, *Trans. Faraday Soc.* 36, 936 (1940).

15. Δες, για παράδειγμα, J.C. Phillips, *Covalent Bonding in Crystals, Molecules and Polymers* (University of Chicago Press, Chicago, 1969); *Bonds and Bonds in Semiconductors* (Academic Press, New York, 1973).
16. Η σχέση είναι γνωστή ως κανόνας αθροίσματος Thomas-Reiche-Kuhn στην φυσική στερεάς κατάστασης. Δες για παράδειγμα, J. Ziman, *Principles of the Theory of Solids* (Cambridge University Press, Cambridge, 1965), p. 224.
17. D.R. Penn, *Phys. Rev.* 128, 2093 (1962).
18. Δες, για παράδειγμα, C.A. Coulson, *Valences* (Oxford University Press, London, 1961).
19. B.F. Levine, *Phys. Rev. Lett.* 22, 787 (1969); *Phys. Rev.* B7, 2591 (1973); 2600 (1973).
20. C.L. Tang & C. Flytzanis, *Phys. Rev.* B4, 2520 (1971); C.L. Tang, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-9, 755 (1973); F. Scholl & C.L. Tang, *Phys. Rev.* B8, 4607 (1973).
21. J.P. Walter & M.L. Cohen, *Phys. Rev. Lett.* 26, 17 (1971).
22. S. Louie & M.L. Cohen, προσωπική επικοινωνία.
23. Οι τιμές για διάφορες ποσότητες έχουν ληφθεί από J.C. Phillips & J.A. Van Vechten, *Phys. Rev.* 183, 709 (1969).
24. C.Y. Fond & Y.R. Shen, *Phys. Rev.* B12, 2325 (1975).
25. Δες, για παράδειγμα, J. L. Oudar & J. Zyss, *Phys. Rev.* A26, 2106 (1982); J. Zyss & J.L. Oudar, *Phys. Rev.* A26, 2028 (1982); C.C. Teng & A.F. Garito, *Phys. Rev. Lett.* 50, 350 (1983); και οι βιβλιογραφικές αναφορές από αυτά.
26. R.C. Miller, *Appl. Phys. Lett.* 5, 17 (1964).
27. P.D. Maker & R.W. Terhune, *Phys. Rev.* 137, A801 (1965).

Βιβλιογραφία

- Bloembergen, N., *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
- Butcher, P.N., *Nonlinear Optical Phenomenon* (Ohio State University Press, Columbus, 1965).
- Ducuing, J., & C. Flytzanis, in F. Abelès, ed., *Optical Properties of Solids* (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 859.
- Flytzanis, C., in H. Rabin & C.L. Tang, eds., *Quantum Electronics* (Academic Press, New York, 1975).
- Shen, Y.R., in N. Bloembergen, ed., *Nonlinear Spectroscopy, Proceedings of the International School of Physics, Enrico Fermi, Course LXIV* (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1977), p. 170.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 3 - Γενική περιγραφή της κυματικής διάδοσης σε μη γραμμικά μέσα

Τα κύματα μπορούν να αλληλεπιδρούν μέσω μη γραμμικής πόλωσης σε ένα μέσο. Η κυματική διάδοση, όταν υπάρχει κυματική αλληλεπίδραση, οδηγεί σε ποικίλα μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα. Η ποσοτική περιγραφή ενός μη γραμμικού οπτικού φαινομένου χαμηλότερης τάξης, συνήθως ξεκινάει με μια ομάδα συζευγμένων κυματικών εξισώσεων, όπου οι μη γραμμικές επιδεκτικότητες δρουν ως συντελεστές σύζευξης. Αυτή η προσέγγιση κυματικής σύζευξης, μπορεί επίσης να γενικοποιηθεί και να συμπεριλάβει και άλλα κύματα, πέρα των ηλεκτρομαγνητικών. Αυτό το κεφάλαιο περιγράφει μια γενική ανάλυση στα συζευγμένα ηλεκτρομαγνητικά κύματα σε ένα μέσο, καθώς και τη λύση εξισώσεων συζευγμένων κυμάτων υπό συγκεκριμένες προσεγγίσεις. Εφαρμογές της ανάλυσης συγκεκριμένων μη γραμμικών οπτικών φαινομένων εμφανίζονται σε επόμενα κεφάλαια.

3.1 Συζευγμένα κύματα σε μη γραμμικό μέσο

Η κυματική εξίσωση που διέπει την διάδοση οπτικών κυμάτων σε ένα μέσο είναι

$$\left[\nabla \times (\nabla \times) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t), \quad (3.1)$$

που προκύπτει απευθείας από τις εξισώσεις Maxwell (1.5). Η κυματική αλληλεπίδραση είναι αυτή που δίνει τους μη γραμμικούς όρους στο P. Υποθέτουμε ότι και το E(r,t) και το P(r,t) μπορούν να διασπαστούν σε μια ομάδα άπειρων επίπεδων κυμάτων:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \sum_l \mathbf{E}_l(\mathbf{k}_l, \omega_l) \\ &= \sum_l \mathcal{E}_l e^{i(\mathbf{k}_l \cdot \mathbf{r} - \omega_l t)}, \\ \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{r}, t), \\ \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t) &= \sum_l \mathbf{P}_l^{(1)}(\mathbf{k}_l, \omega_l) \\ &= \sum_l \chi^{(1)}(\omega_l) \cdot \mathbf{E}_l(\mathbf{k}_l, \omega_l), \end{aligned} \quad (3.2) \quad \text{και} \quad \begin{aligned} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{r}, t) &= \sum_{n \geq 2} \mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{r}, t) \\ &= \sum_m \mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{k}_m, \omega_m) \\ &= \sum \mathcal{P}^{\text{NL}} e^{i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r} - i\omega_m t}, \end{aligned} \quad \text{όπου}$$

το \mathcal{E}_l λαμβάνεται ουσιαστικά ανεξάρτητα από τον χρόνο. Με $\epsilon(\omega_l) \equiv 1 + 4\pi\chi^{(1)}(\omega_l)$, η (3.1) γίνεται

$$\left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega^2}{c^2} \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \right] \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) = \frac{4\pi\omega^2}{c^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{k}_m, \omega_m = \omega). \quad (3.3)$$

Ας υποθέσουμε ότι $\mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{k}_m, \omega) = \mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{k}_m, \omega)$ είναι μια μη γραμμική πόλωση από αυτό που παράγεται από το $E_1(\mathbf{k}_1, \omega_1) \dots E_n(\mathbf{k}_n, \omega_n)$. Τότε, για τα n πεδία $E_i(\mathbf{k}_i, \omega_i)$, θα πρέπει να υπάρχουν n αντίστοιχες κυματικές εξισώσεις, παρόμοιες με την (3.3). Μαζί με την (3.3), σχηματίζουν μια ομάδα από $(n+1)$ συζευγμένες κυματικές εξισώσεις. Να σημειωθεί ότι ενώ η ω_m πρέπει να είναι ίση με ω στην $\mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{k}_m, \omega_m)$, λόγω της διατήρησης ενέργειας φωτονίου στην περίπτωση σταθερής κατάστασης, ο \mathbf{k}_m δεν είναι απαραίτητο να είναι ακριβώς ίσο με τον \mathbf{k} , αφού η διατήρηση ορμής του κύματος δεν είναι απαραίτητη προϋπόθεση σε ένα πεπερασμένο μέσο. Η εξίσωση (3.3) δείχνει ξεκάθαρα ότι τα διάφορα κύματα $E_i(\mathbf{k}_i, \omega_i)$ είναι συζευγμένα μη γραμμικά, μέσω της μη γραμμικής πόλωσης \mathbf{P}^{NL} , και οι διαδόσεις τους στο μέσο, θα είναι συνεπώς πολύ διαφορετικές από τη γραμμική περίπτωση όπου $\mathbf{P}^{\text{NL}} = 0$. Μέσω της μη γραμμικής σύζευξης, η ενέργεια μπορεί τώρα να μεταφερθεί πίσω και μπρος μεταξύ κυμάτων και όσο πιο μεγάλο είναι το \mathbf{P}^{NL} τόσο πιο έντονο θα είναι το φαινόμενο. Η προσέγγιση κυματικής σύζευξης πρωτοχρησιμοποιήθηκε στην περιγραφή μικροκυματικής παραμετρικής ενίσχυσης¹ και αργότερα υιοθετήθηκε από τους Armstrong κ.α.² για να περιγραφεί η κυματική αλληλεπίδραση στη μη γραμμική οπτική.

Η απλούστερη περίπτωση αλληλεπίδρασης οπτικού κύματος σχετίζεται με μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα δευτέρας τάξης. Το χρησιμοποιούμε εδώ ως παράδειγμα για να απεικονιστούν οι τύποι για τη διατύπωση του συζευγμένου κύματος. Ας θεωρήσουμε τρία κύματα $E(\mathbf{k}_1, \omega_1)$, $E(\mathbf{k}_2, \omega_2)$ και $E_1(\mathbf{k}, \omega_1 + \omega_2)$ ότι αλληλεπιδρούν σε ένα μέσο με μη γραμμική πόλωση δευτέρας τάξης. Τότε, οι εξισώσεις συζευγμένου κύματος από την (3.3) είναι

$$\begin{aligned} \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_1^2}{c^2} \boldsymbol{\varepsilon}_1 \cdot \right] \mathbf{E}_1(\mathbf{k}_1, \omega_1) &= \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \mathbf{P}^{(2)}(\omega_1) \\ &= \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \chi^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega) : \mathbf{E}_2^*(\mathbf{k}_2, \omega_2) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega), \\ \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_2^2}{c^2} \boldsymbol{\varepsilon}_2 \cdot \right] \mathbf{E}_2(\mathbf{k}_2, \omega_2) &= \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \mathbf{P}^{(2)}(\omega_2) \\ &= \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega - \omega_1) : \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{E}_1^*(\mathbf{k}_1, \omega_1), \end{aligned} \quad (3.4) \quad \text{και}$$

$$\begin{aligned} \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega^2}{c^2} \boldsymbol{\varepsilon} \right] \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) &= \frac{4\pi\omega^2}{c^2} \mathbf{P}^{(2)}(\omega) \\ &= \frac{4\pi\omega^2}{c^2} \chi^{(2)}(\omega = \omega_1 + \omega_2) : \mathbf{E}(\mathbf{k}_1, \omega_1) \mathbf{E}(\mathbf{k}_2, \omega_2). \end{aligned}$$

Όπως φαίνεται εδώ, οι μη γραμμικές επιδεικτικότητες εμφανίζονται ξεκάθαρα ως συντελεστές σύζευξης, οι οποίοι καθορίζουν το ποσοστό της μεταφερόμενης ενέργειας μεταξύ των τριών κυμάτων. Στην περίπτωση μη σκεδαστικών μέσων, υφίσταται η σχέση μετάθεσης $\chi_{ijk}^{(2)*}(\omega = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega) = \chi_{kji}^{(2)}(\omega_2 = \omega - \omega_1)$ (δες Ενότητα 2.5). Στην πραγματικότητα, αυτή είναι μια απαραίτητη συνθήκη για τις εξισώσεις συζευγμένου κύματος για να ικανοποιηθεί η απαίτηση, ότι η ολική ενέργεια στα τρία κύματα είναι μια σταθερά, όπως θα δούμε στην Ενότητα 3.2. Η ενέργεια φωτονίου και η διατήρηση της ορμής στην παρούσα περίπτωση, είναι $\omega = \omega_1 + \omega_2$ και $k = k_1 + k_2$, αντίστοιχα. Για την πιο αποτελεσματική μεταφορά ενέργειας ανάμεσα στα κύματα, θα περίμενε κανείς, ότι και η ενέργεια φωτονίου και η διατήρηση της ορμής θα πρέπει να ικανοποιούνται στην κυματική αλληλεπίδραση. Επομένως, παρόλο που δεν απαιτείται $k = k_1 + k_2$, όπως αναφέρθηκενωρίτερα, η ικανοποίηση της σχέσης αυτής προτιμάται, για τη μεγιστοποίηση της κυματικής σύζευξης. Αυτή η συνθήκη συμφωνίας της ορμής φωτονίου είναι γνωστή στη γραμμική οπτική ως *συνθήκη σύμφωνης φάσης* και είναι μια από τις πιο σημαντικές θεωρήσεις σε πολλές μη γραμμικές οπτικές διαδικασίες. Αναλυτικές λύσεις της (3.4) εμφανίζονται σε επόμενα κεφάλαια.

3.2 Ενέργεια πεδίου σε μη γραμμικό μέσο

Οι εξισώσεις Maxwell (1.5) οδηγούν στην ακόλουθη γνωστή σχέση ενέργειας για

$$\text{τα πεδία: } \frac{c}{4\pi} \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) = -\frac{1}{8\pi} \frac{\partial}{\partial t} (E^2 + B^2) - \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad (3.5).$$

Με E , X , B να είναι το διάνυσμα Poynting, φαίνεται ότι το ποσοστό ηλεκτρομαγνητικής ενέργειας που ρέει ανά μονάδα όγκου είναι ίσο με τη μείωση του ποσοστού της αποθηκευμένης πυκνότητας ηλεκτρομαγνητικής ενέργειας. Αν ο σκεδασμός του μέσου μπορεί να αγνοηθεί, τότε η πόλωση \mathbf{P} μπορεί να γραφτεί ως εξής:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \dots \quad (3.6) \text{ και η (3.5) καταλήγει στον τύπο}$$

$$\frac{c}{4\pi} \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) = -\frac{\partial}{\partial t} U(\mathbf{r}, t) \quad (3.7)$$

$$\text{με } U(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{8\pi} (E^2 + B^2) + \frac{1}{2} \mathbf{E} \cdot \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \frac{2}{3} \mathbf{E} \cdot \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \dots \quad (3.8)$$

να είναι η στιγμιαία πυκνότητα ηλεκτρομαγνητικής ενέργειας. Αυτό σαφώς, δεν ισχύει σε ένα μέσο με σκέδαση, αφού οι επιδεκτικότητες καθορίζονται μόνο από τις συνιστώσες Fourier των πεδίων και τις πολώσεις. Στην πραγματικότητα, είναι πιο λογικό να λάβουμε υπόψη μας τη σχέση ενέργειας μέσου χρόνου. Ας επεξηγήσουμε το πρόβλημα, υποθέτοντας αρχικά, ότι έχουμε ένα γραμμικό μέσο. Ξεκινάμε, θεωρώντας ότι έχουμε ένα μερικώς μονοχρωματικό πεδίο $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}(t) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + \mathcal{E}^*(t) e^{-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)}$ (3.9), όπου $\mathcal{E}(t)$ είναι ένα βραδέως μεταβαλλόμενο πλάτος. Εκφράζοντας τον $\mathcal{E}(t)$ ως ολοκλήρωμα Fourier, έχουμε

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \int d\eta \mathcal{E}(\omega + \eta) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t) - i\eta t} + \text{c.c.} \quad (3.10).$$

Επειτα, η γραμμική πόλωση παίρνει τη μορφή $\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t) = \int d\eta \chi^{(1)}(\omega + \eta) \cdot \mathcal{E}(\omega + \eta) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t) - i\eta t} + \text{c.c.}$ (3.11). Αυτό οδηγεί στην

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t) &= \int d\eta (-i)(\omega + \eta) \left[\chi^{(1)}(\omega) + \frac{\partial \chi^{(1)}}{\partial \omega} \eta + \dots \right] \cdot \mathcal{E}(\omega + \eta) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t) - i\eta t} + \text{c.c.} \\ &= \left[-i\omega \chi^{(1)}(\omega) \cdot \mathcal{E}(t) + \frac{\partial(\omega \chi^{(1)})}{\partial \omega} \cdot \frac{\partial \mathcal{E}(t)}{\partial t} \right] e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (3.12).$$

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = \chi_{ji}^{(1)}(-\omega)^* \quad \text{ο μέσος χρόνος της} \quad (3.5) \quad \text{αποφέρει}^3 \quad \text{την}$$

$$\left\langle \frac{c}{4\pi} \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \right\rangle = -\frac{\partial}{\partial t} \langle U^{(1)} \rangle - Q \quad (3.13), \text{ όπου}$$

$$\begin{aligned} \langle U^{(1)} \rangle &= \frac{1}{4\pi} \left[\mathcal{E}^*(t) \cdot \frac{\partial(\omega \mathbf{e}')}{\partial \omega} \cdot \mathcal{E}(t) + |\mathbf{B}(t)|^2 \right] \\ Q &= \frac{\omega}{2\pi} \mathcal{E}^*(t) \cdot \mathbf{e}'' \cdot \mathcal{E}(t), \end{aligned} \quad (3.13) \quad \text{και}$$

$\mathbf{e} = \mathbf{e}' + i\mathbf{e}'' = \mathbf{1} + 4\pi \chi^{(1)}$ (3.14). Όπως μπορεί να εξαχθεί ως συμπέρασμα από τις προηγούμενες εξισώσεις, $\langle U^{(1)} \rangle$ είναι η μέση αποθηκευμένη ενεργειακή πυκνότητα πεδίου στο γραμμικό μέσο και Q είναι η μέση πυκνότητα ισχύος που μεταδίδεται ως θερμότητα μέσω της απορρόφησης, επειδή $\mathbf{e}'' \neq 0$. Η εξίσωση (3.13) είναι επομένως, μια σχέση διατήρησης ενέργειας, την οποία θα πρέπει να περιμένουμε ως φυσικό επακόλουθο. Ο παραπάνω υπολογισμός μπορεί να επεκταθεί και σε μια μη γραμμική περίπτωση⁴.

Επιπλέον όροι στη σχέση ενέργειας, αναμένεται να προκύψουν από την κυματική σύζευξη. Ας θεωρήσουμε, για παράδειγμα, τρία κύματα με $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ και $k_3 = k_1 + k_2$ ότι αλληλεπιδρούν σε ένα μη γραμμικό μέσο, μέσω του $\chi^{(2)}$. Μπορεί τότε να βρεθεί, με τη βοήθεια της σχέσης συμμετρίας μετάθεσης του $\chi^{(2)}$, ότι η μέση ενεργειακή πυκνότητα πεδίου έχει έναν επιπλέον όρο

$$\begin{aligned} \langle U^{(2)} \rangle &= 2\mathcal{E}_1^*(t) \cdot \chi^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3) : \mathcal{E}_2^*(t) \mathcal{E}_3(t) \\ &+ \mathcal{E}_1^*(t) \cdot \left[\omega_1 \frac{\partial \chi^{(2)}(\omega_1)}{\partial \omega_1} + \omega_2 \frac{\partial \chi^{(2)}(\omega_1)}{\partial \omega_2} + \omega_3 \frac{\partial \chi^{(2)}(\omega_1)}{\partial \omega_3} \right] : \\ &\times \mathcal{E}_2^*(t) \mathcal{E}_3(t) + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (3.15), \text{ ο οποίος}$$

εξήχθη από την σχέση

$$\frac{\partial \langle U^{(2)} \rangle}{\partial t} = \left\langle \sum_{i=1}^3 \mathbf{E}_i \cdot \frac{\partial \mathbf{P}_i^{(2)}}{\partial t} \right\rangle. \text{ Να σημειωθεί ότι μόνο όταν } \left| \omega_m \frac{\partial \chi^{(2)}}{\partial \omega_m} \right| \ll |\chi^{(2)}|$$

μπορούμε να γράψουμε $\langle U^{(2)} \rangle = 2\mathcal{E}_1^* \cdot \chi^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3) : \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 + \text{c.c.}$ (3.16).

Η τελευταία εξίσωση, όμως, χρησιμοποιείται συχνά στη βιβλιογραφία⁵ για να περιγράψει την χωρίς αλληλεπίδραση ενεργειακή πυκνότητα για την κυματική σύζευξη. Θα μπορούσε κάποιος να γράψει την πυκνότητα ελεύθερης ενέργειας ως $F^{(2)} = -\langle U^{(2)} \rangle$ χρησιμοποιώντας την (3.16) και να εξάγει τη μη γραμμική πόλωση από την $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_m) = -\frac{1}{2} \partial F^{(2)} / \partial \mathcal{E}_m^*$. Η σχέση συμμετρίας μετάθεσης πηγάζει άμεσα από την $\partial^2 \mathbf{P}^{(2)}(\omega_1) / \partial \mathcal{E}_1^* \partial \mathcal{E}_3 = \partial^2 \mathbf{P}^{(2)}(\omega_2) / \partial \mathcal{E}_1^* \partial \mathcal{E}_3 = \partial \mathbf{P}^{(2)*}(\omega_3) / \partial \mathcal{E}_1^* \partial \mathcal{E}_2^*$. Παρόλο που αυτή είναι μια πρακτική που μπορεί πράγματι κάποιος να ακολουθήσει, θα πρέπει να αντιληφθούμε ότι στην πραγματικότητα, είναι συμμετρία μετάθεσης του $\chi^{(2)}$ που οδηγεί στην έκφραση $\langle U^{(2)} \rangle$ στην (3.15). Αντίστροφα, είναι η παρουσία του $\langle U^{(2)} \rangle$ που δικαιολογεί κατά τρόπο φυσικό την συμμετρία μετάθεσης του $\chi^{(2)}$. Κοντά σε συντονισμούς, όταν η διάδοση στο μέσο γίνεται σημαντική, η σχέση συμμετρίας μετάθεσης του $\chi^{(2)}$ καταρρέει και κατ' αναλογία, η (3.15) παύει να ισχύει.

Γενικότερα, σε ένα μη απορροφητικό μέσο, ο μέσος χρόνος ενεργειακής πυκνότητας πεδίου θα πρέπει να είναι⁴

$$\langle U \rangle = \sum_{n=1}^{\infty} \langle U^{(n)} \rangle \quad (3.17)$$

όπου το $\langle U^{(n)} \rangle$ προκύπτει από μη γραμμική σύζευξη $(n+1)$ κυμάτων μέσω της μη γραμμικότητας νιοστής τάξης του μέσου και δίνεται από την σχέση

$$\begin{aligned} \langle U^{(n)} \rangle &= n \mathcal{E}_{n+1}^* \cdot \chi^{(n)}(\omega_{n+1} = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n) : \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \dots \mathcal{E}_n \\ &+ \mathcal{E}_{n+1}^* \cdot \left[\sum_{i=1}^{n+1} \omega_i \frac{\partial \chi^{(n)}}{\partial \omega_i} \right] : \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \dots \mathcal{E}_n + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (3.18)$$

Η σχέση μέσου χρόνου διατήρησης της ενέργειας παίρνει τη μορφή

$$\left\langle \frac{c}{4\pi} \nabla \cdot \mathbf{E} \times \mathbf{B} \right\rangle = - \frac{\partial}{\partial t} \langle U \rangle \quad (3.19)$$

3.3 Προσέγγιση βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους

Στην πραγματικότητα, κατά τη λύση εξισώσεων συζευγμένου κύματος, γίνονται συχνά αρκετές απλοποιημένες προσεγγίσεις^{2, 6}. Μεταξύ αυτών υπάρχει και η προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, η προσέγγιση άπειρου επίπεδου κύματος και η προσέγγιση σταθερής αντλούμενης έντασης. Εδώ θα συζητηθεί μόνο η προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, αφήνοντας τις άλλες για επόμενα κεφάλαια.

Όπως αναφέρθηκε νωρίτερα, η σύζευξη κύματος σε ένα μη γραμμικό μέσο καταλήγει σε μεταφορά ενέργειας μεταξύ των κυμάτων. Επομένως, τα πλάτη κυμάτων αναμένονται να αλλάζουν ως προς τη διάδοση. Για λόγους επεξήγησης, θεωρούμε ότι έχουμε ένα επίπεδο κύμα που διαδίδεται κατά μήκος του \hat{z} : $\mathbf{E}(\omega, z) = \mathcal{E}(z) e^{i(kz - \omega t)}$. Αφού η μεταφορά ενέργειας μεταξύ κυμάτων είναι συνήθως σημαντική, μόνο αφού τα κύματα διανύσουν απόσταση πολύ μεγαλύτερη από τα μήκη κύματός τους, περιμένουμε

$$\left| \frac{\partial^2 \mathcal{E}(z)}{\partial z^2} \right| \ll \left| k \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} \right| \quad (3.20)$$

Το πεδίο \mathbf{E} μπορεί γενικά να αποσυντεθεί σε μια διαμήκη συνιστώσα \mathbf{E}_{\parallel} παράλληλη στο \mathbf{k} και μια εγκάρσια συνιστώσα \mathbf{E}_{\perp} κάθετη στο \mathbf{k} . Η κυματική εξίσωση για το \mathbf{E} μετά την (3.3), μπορεί παρομοίως να χωριστεί σε δυο εξισώσεις:

$$\nabla^2 \mathbf{E}_\perp + \frac{\omega^2}{c^2} (\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{E})_\perp = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \mathbf{P}_\perp^{\text{NL}}(\omega, z) \quad (3.21\alpha) \quad \text{και} \quad \nabla \cdot [(\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{E})_\parallel + 4\pi \mathbf{P}_\parallel^{\text{NL}}] = 0$$

$$(3.21\beta). \quad \text{Τώρα έχουμε} \quad \nabla^2 \mathbf{E}_\perp = \frac{\partial^2}{\partial z^2} \mathbf{E}_\perp = e^{i(kz - \omega t)} \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} + i2k \frac{\partial}{\partial z} - k^2 \right] \mathcal{E}_\perp(z)$$

(3.22) και $-k^2 \mathbf{E}_\perp + \frac{\omega^2}{c^2} (\boldsymbol{\varepsilon} \cdot \mathbf{E})_\perp = 0$ (3.23). Τότε, η προσέγγιση στην (3.20) λιγοστεύει τους όρους της διαφορικής εξίσωσης δευτέρας τάξης (3.21α), καταλήγοντας σε μια απλή διαφορική εξίσωση πρώτης τάξης

$$\frac{\partial \mathcal{E}_\perp}{\partial z} = \frac{i2\pi\omega^2}{kc^2} \mathbf{P}_\perp^{\text{NL}}(\omega, z) e^{-i(kz - \omega t)}. \quad (3.24)$$

Αυτή είναι γνωστή ως η προσέγγιση του Βραδέως Μεταβαλλόμενου Πλάτους. Η προηγούμενη περιγραφή της προσέγγισης του Βραδέως Μεταβαλλόμενου Πλάτους είναι αυτή που συναντάται συχνότερα στη βιβλιογραφία. Όμως, η πραγματική φυσική σημασία της προσέγγισης είναι στην αγνόηση της αντίθετα διαδιδόμενης συνιστώσας πεδίου που παράγεται από το \mathbf{P}^{NL} . Ας θεωρήσουμε για παράδειγμα, ότι έχουμε κυματική διάδοση σε ένα ισοτροπικό μέσο,

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon \right) \mathbf{E}(\omega, z) = -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega, z) \quad (3.25)$$

με τα όρια επιπέδου στο $z = 0$ και l . Η εξίσωση μπορεί να λυθεί με τη μέθοδο της συνάρτησης Green. Έστω ότι $G(z, z')$ η συνάρτηση Green, η οποία υπακούει στην εξίσωση

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon \right) G(z, z') = -\delta(z, z') \quad (3.26)$$

Έπειτα, βρίσκουμε

$$\begin{aligned} G(z, z') &= \frac{-1}{i2k} e^{ik(z-z')} \quad \text{for } z > z' \\ &= \frac{-1}{i2k} e^{-ik(z-z')} \quad \text{for } z < z' \end{aligned} \quad (3.27)$$

με $k = \omega\sqrt{\varepsilon}/c$. Η λύση της (3.25) δίνεται από την σχέση

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\omega, z) &= \int_0^l \frac{4\pi\omega^2}{c^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(z') G(z, z') dz' + \left[G \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial z'} - \mathbf{E} \frac{\partial G}{\partial z'} \right]_{z'}^l = 0 \\ &= - \left(\frac{2\pi\omega^2}{ikc^2} \right) \left[\int_0^z \mathbf{P}^{\text{NL}}(z') e^{ik(z-z')} dz' + \int_z^l \mathbf{P}^{\text{NL}}(z') e^{-ik(z-z')} dz' \right] + \left[G \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial z'} - \mathbf{E} \frac{\partial G}{\partial z'} \right]_{z'=0}^l. \end{aligned} \quad (3.2)$$

8)

Εάν γράψουμε $\mathbf{E}(\omega, z) = \mathcal{E}_F(z) e^{i(kz - \omega t)} + \mathcal{E}_B(z) e^{i(-kz - \omega t)}$ (3.29) και επιβάλουμε τις συνοριακές συνθήκες $\partial \mathcal{E}_F / \partial z' = 0$ and $\partial \mathcal{E}_B / \partial z' = 0$ στο $z = 0$ και l^+ , δείχνοντας ότι καμιά αλλαγή πλάτος δε θα συμβεί έξω από το μέσο, τότε έχουμε

$$\left[G \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial z'} - \mathbf{E} \frac{\partial G}{\partial z'} \right]_{z'=0}^l = [\mathcal{E}_F(0) e^{ikz} + \mathcal{E}_B(l) e^{-ikz}] e^{-i\omega t} \quad (3.30). \text{ Η σύγκριση των (3.28)}$$

και (3.29) δίνει τις

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_F(z) &= \mathcal{E}_F(0) + i \frac{2\pi\omega^2}{kc^2} \int_0^z \mathbf{P}^{\text{NL}}(z') e^{-i(kz' - \omega t)} dz' \quad \text{και} \\ \mathcal{E}_B(z) &= \mathcal{E}_B(l) + i \frac{2\pi\omega^2}{kc^2} \int_z^l \mathbf{P}^{\text{NL}}(z') e^{i(kz' + \omega t)} dz' \end{aligned} \quad (3.31). \text{ Οι αντίστοιχες διαφορικές εξισώσεις}$$

για \mathcal{E}_F και \mathcal{E}_B είναι

$$\frac{\partial \mathcal{E}_F}{\partial z} = i \frac{2\pi\omega^2}{kc^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega, z) e^{-i(kz - \omega t)} \quad \text{και} \quad \frac{\partial \mathcal{E}_B}{\partial z} = -i \frac{2\pi\omega^2}{kc^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega, z) e^{i(kz + \omega t)} \quad (3.32).$$

Συγκρίνοντας τις (3.24) και (3.32), αναγνωρίζουμε ότι η (3.24) μπορεί να εξαχθεί αγνοώντας την \mathcal{E}_B στην \mathcal{E} (ή αγνοώντας την \mathcal{E}_F εάν η \mathcal{E}_\perp διαδίδεται με κυματοδιάνυσμα $-k$).

3.4 Συνοριακές συνθήκες

Οι συνηθισμένες συνοριακές συνθήκες για ηλεκτρομαγνητικά κύματα θα πρέπει να ισχύουν εδώ. Για παράδειγμα, οι εφαπτομενικές συνιστώσες των \mathbf{E} και \mathbf{B} σε μια συνοριακή επιφάνεια πρέπει να είναι συνεχείς για κάθε συνιστώσα Fourier. Σε γενικές γραμμές, η λύση της κυματικής εξίσωσης (3.3) για $\mathbf{E}(\mathbf{k}_l, \omega_l)$ οδηγούμενη από $\mathbf{P}^{\text{NL}}(\mathbf{k}_m, \omega_m = \omega_l) \propto \exp(i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r} - i\omega_l t)$ έχει τη μορφή

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}_l, \mathbf{k}_m, \omega_l) = (\mathcal{E}_H e^{i\mathbf{k}_l \cdot \mathbf{r}} + \mathcal{E}_p e^{i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r}}) e^{-i\omega_l t} \quad (3.33)$$

όπου οι όροι \mathcal{E}_H και \mathcal{E}_P αντιστοιχούν σε ομοιογενείς και μερικές λύσεις, αντίστοιχα. Στο σύνορο, ένα εισερχόμενο κύμα $\mathbf{E}_I(\mathbf{k}_{II}, \mathbf{k}_{mI}, \omega_I)$ διασπάται σε ένα ανακλώμενο κύμα $\mathbf{E}_R(\mathbf{k}_{IR}, \mathbf{k}_{mR}, \omega_I)$ και σε ένα εκπεμπόμενο κύμα $\mathbf{E}_T(\mathbf{k}_{IT}, \mathbf{k}_{mT}, \omega_I)$. Έστω ότι $z = 0$ είναι το συνοριακό επίπεδο και $\hat{\mathbf{x}}-\hat{\mathbf{z}}$ το επίπεδο πρόσπτωσης. Τότε, φαίνεται εύκολα ότι η συνέχεια των εφαπτομενικών συνιστωσών των \mathbf{E} και \mathbf{B} οδηγεί στις ακόλουθες σχέσεις:⁷

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{HI,x} + \mathcal{E}_{PI,x} + \mathcal{E}_{HR,x} + \mathcal{E}_{PR,x} &= \mathcal{E}_{HT,x} + \mathcal{E}_{PT,x} \quad \text{και} \\ (\mathbf{k}_{II} \times \mathcal{E}_{HI})_x + (\mathbf{k}_{mI} \times \mathcal{E}_{PI})_x + (\mathbf{k}_{IR} \times \mathcal{E}_{HR})_x + (\mathbf{k}_{mR} \times \mathcal{E}_{PR})_x \\ &= (\mathbf{k}_{IT} \times \mathcal{E}_{HT})_x + (\mathbf{k}_{mT} \times \mathcal{E}_{PT})_x \end{aligned} \quad (3.34), \text{ με δυο παρόμοιες}$$

εξισώσεις για τις y συνιστώσες, και

$$k_{II,x} = k_{mI,x} = k_{IR,x} = k_{mR,x} = k_{IT,x} = k_{mT,x}. \quad (3.35).$$

Η τελευταία εξίσωση που σχετίζει τα διάφορα εφαπτομενικά κυματοδιανύσματα είναι η πιο ενδιαφέρουσα, αφού καθορίζει τις διευθύνσεις διάδοσης για όλα τα κύματα (ομοιογενή και χαρακτηριστικά) στα μέσα, όταν μια από αυτές είναι δεδομένη. Αυτό είναι επομένως ισοδύναμο με το νόμο του Snell στη γραμμική οπτική.

3.5 Χρονο-εξαρτώμενη κυματική διάδοση

Η διάδοση κυμάτων με πλάτη μεταβλητού χρόνου, θα πρέπει φυσικά, να υπακούει στην χρονικά εξαρτώμενη κυματική εξίσωση στην (3.1). Και πάλι εδώ, η προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους είναι συνήθως έγκυρη. Περιμένουμε ότι και η δευτέρας τάξης παράγωγος του χρόνου και η δευτέρας τάξης χωρική παράγωγος του πλάτους πεδίου, μπορούν να αγνοηθούν στην κυματική εξίσωση. Αυτό επεξηγείται παρακάτω, θεωρώντας ότι υπάρχει ένα σχεδόν μονοχρωματικό επίπεδο κύμα, που διαδίδεται κατά μήκος ενός άξονα συμμετρίας, $\hat{\mathbf{z}}$, του μέσου. Η κυματική εξίσωση παίρνει τη μορφή

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \mathbf{E}(z, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{D}(z, t) = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(z, t) \quad (3.36), \text{ με } D(z, t) \equiv E(z, t) + 4\pi R^{(1)}(z, t),$$

και $\mathbf{E}(z, t) = \mathcal{E}(z, t) \exp(ikz - i\omega t)$. Έπειτα, όπως φάνηκε στην Ενότητα 3.3, η προσέγγιση βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, δίνει

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \mathbf{E}(z, t) \equiv \left(i2k \frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E} - k^2 \mathcal{E} \right) e^{i(kz - \omega t)}. \quad (3.37).$$

An η E(z,t) εκφράζεται με όρους

ολοκληρώματος Fourier $\mathbf{E}(z, t) = \int \mathcal{E}(\omega + \eta) e^{ikz - i(\omega + \eta)t} d\eta$, τότε έχουμε

$$\begin{aligned} \mathbf{D}(z, t) &= \int \epsilon(\omega + \eta) \mathcal{E}(\omega + \eta) e^{ikz - i(\omega + \eta)t} d\eta \\ \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{D}(z, t) &= \int \frac{-(\omega + \eta)^2}{c^2} \epsilon(\omega + \eta) \mathcal{E}(\omega + \eta) e^{ikz - i(\omega + \eta)t} d\eta \\ &\equiv -\frac{1}{c^2} \int \left[\omega^2 \epsilon(\omega) + 2\omega\eta \epsilon(\omega) + \omega^2 \eta \frac{\partial \epsilon}{\partial \omega} \right] \mathcal{E}(\omega + \eta) \\ &\quad \times e^{ikz - i(\omega + \eta)t} d\eta \\ &= \left[-\frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\omega) \mathcal{E}(z, t) - i2k \frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial t} \mathcal{E}(z, t) \right] e^{i(kz - \omega t)}. \end{aligned} \quad (3.38)$$

όπου $v_g = (dk/d\omega)^{-1}$ είναι η ταχύτητα ομάδας. Η εισαγωγή των (3.37) και (3.38) στην (3.36) με προσέγγιση του $\partial^2 \mathbf{P}^{\text{NL}} / \partial t^2 \equiv -\omega^2 \mathbf{P}^{\text{NL}}$, αποφέρει⁸

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial t} \right) \mathcal{E}(z, t) = -\frac{2\pi\omega^2}{ikc^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(z, t) e^{i(kz - \omega t)} \quad (3.39)$$

Στην πραγματικότητα, όπως δείξαμε στην χρονοεξαρτώμενη περίπτωση στην Ενότητα 3.3, το πλάτος πεδίου \mathcal{E} στην (3.39) ανταποκρίνεται πραγματικά στο \mathcal{E}_F για το διαδιδόμενο κύμα εμπρόσθιας κατεύθυνσης. Για το διαδιδόμενο κύμα οπισθοδρομικής κατεύθυνσης, η αντίστοιχη εξίσωση είναι

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial t} \right) \mathcal{E}_B(z, t) = \frac{2\pi\omega^2}{ikc^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(z, t) e^{i(kz + \omega t)} \quad (3.40)$$

Οι εξισώσεις (3.39) και (3.40) θα πρέπει να χρησιμοποιηθούν για τη διάδοση βραχέων παλμών σε ένα μη γραμμικό μέσο. Ο όρος της χρονικής παραγώγου στις εξισώσεις είναι αμελητέος, μόνο εάν η μεταβολή του πλάτους είναι ασήμαντη κατά τη διάρκεια του χρόνου $T = l\sqrt{\epsilon}/c$ τον οποίο χρειάζεται το φως για να διανύσει το μέσο. Χρησιμοποιούμε τις (3.39) και (3.40) αργότερα, όταν αναφερόμαστε σε μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα με υπερβραχείς παλμούς.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. Δες για παράδειγμα, W.H. Louisell, *Coupled Mode and Parametric Electronics* (Wiley, New York, 1960).
2. J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing & P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 127, 1918 (1962).
3. L. Landau & E.M. Lifshitz, *Electrodynamics in Continuous Media* (Addison – Wesley, Reading Mass, 1959), p. 253.
4. Y.R. Sheo, *Phys. Rev.* 167, 818 (1968).
5. P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 130, 919 (1963) και πολλά βιβλία και κριτικά άρθρα στη μη γραμμική οπτική.
6. Δες για παράδειγμα, N. Bloembergen, *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
7. N. Bloembergen & P.s. Pershan, *Phys. Rev.* 128, 606 (1962)
8. S.A. Akhmanov, A.S. Chirkin, K.N. Drabovich, A.I. Kovrigin, R.V. Khokhlov & A.P. Sukhorukov, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-4, 598 (1968).

Βιβλιογραφία

- Akhmanov, S.A., & R.V. Khokhlov, *Problems of Nonlinear Optics* (Gordon and Breach, New York, 1972).
- Bloembergen, N., *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
- Ducuing, in R. Glauber, ed., *Quantum Optics, Proceedings of the International School of Physics Enrico Fermi Course XLII* (Academic Press, New York, 1969), p. 421.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 4 – Ηλεκτρο-οπτικά και Μαγνητο-οπτικά φαινόμενα

Οι οπτικές ιδιότητες ενός υλικού μπορούν να τροποποιηθούν όταν εφαρμόζεται ένα ηλεκτρικό ή μαγνητικό πεδίο. Ο δείκτης διάθλασης αλλάζει, καθώς οι συναρτήσεις των εφαρμοσμένων ηλεκτρικών και μαγνητικών πεδίων ευθύνονται για πολλά ηλεκτρο-οπτικά και μαγνητο-οπτικά φαινόμενα. Παρόλο που αυτά τα φαινόμενα ήταν γνωστά πριν από την έλευση των λέιζερ, μπορούν να θεωρηθούν ως μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα μίξης, στο οριακό σημείο, όπου μια από τις συνιστώσες πεδίου είναι μηδενική ή κοντά σε μηδενική συχνότητα. Αυτό το κεφάλαιο, προσφέρει μια σύντομη αναφορά σε αυτά τα φαινόμενα.

4.1 Ηλεκτρο-οπτικά φαινόμενα

Κατά την παρουσία ενός εφαρμοσμένου dc ή χαμηλόσυχνου πεδίου E_0 ($\Omega=0$), η οπτική διηλεκτρική σταθερά $\epsilon(\omega, E_0)$ ενός μέσου είναι συνάρτηση του E_0 . Για επαρκώς μικρό E_0 , η $\epsilon(\omega, E_0)$ μπορεί να επεκταθεί σε μια σειρά από E_0 :

$$\epsilon(\omega, \mathbf{E}_0) = \epsilon^{(1)}(\omega) + \epsilon^{(2)}(\omega + \Omega) \cdot \mathbf{E}_0 + \epsilon^{(3)}(\omega + 2\Omega) : \mathbf{E}_0 \mathbf{E}_0 + \dots \quad (4.1)$$

Αφού $E + 4\pi P = \epsilon \cdot E$ και $P = \chi^{(1)} \cdot E + \chi^{(2)} : EE + \dots$, αναγνωρίζουμε ότι $\epsilon^{(2)}(\omega + \Omega) = 4\pi\chi^{(2)}(\omega + \Omega)$ και $\epsilon^{(3)}(\omega + 2\Omega) = 4\pi\chi^{(3)}(\omega + 2\Omega)$ (4.2).

Τότε, σε ένα μέσο χωρίς συμμετρία αντιστροφής, το ηλεκτρο-οπτικό φαινόμενο διέπεται από τον όρο $\epsilon^{(2)}$, που είναι γραμμικός στο E_0 . Αυτό είναι γνωστό ως φαινόμενο Pockel. Οι τύποι συμμετρίας των μη μηδενιζόμενων $\epsilon^{(2)}$ ή $\chi^{(2)}$ για τις 20 κατηγορίες κρυστάλλων δίνονται ήδη στον Πίνακα 2.1, με $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega = \omega + 0) = \chi_{jik}^{(2)}(\omega = \omega + 0)$. Σε ένα μέσο με ή χωρίς συμμετρία αντιστροφής, ο τετραγωνικός, εξαρτώμενος από το πεδίο όρος (4.1) υπάρχει πάντα και είναι γνωστός ως dc φαινόμενο Kerr. Οι τύποι συμμετρίας του $\epsilon^{(3)}$ ή του $\chi^{(3)}$ για μερικές κατηγορίες κρυστάλλων δίνονται στον Πίνακα 2.2 με επιπλέον, $\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega = \omega + 0 + 0) = \chi_{jikl}^{(3)}(\omega = \omega + 0 + 0)$ και $\chi_{ijkt}^{(3)} = \chi_{ikjt}^{(3)}$.

Οι δείκτες διάθλασης του επαγόμενου πεδίου προκαλούν γραμμική διπλοθλαστικότητα ή διπλή διάθλαση. Παραδοσιακά, το ηλεκτρο-οπτικό φαινόμενο καθορίζεται μέσω του δείκτη ελλειψοειδούς¹

$$\frac{x^2}{n_{xx}^2} + \frac{y^2}{n_{yy}^2} + \frac{z^2}{n_{zz}^2} + \frac{2yz}{n_{yz}^2} + \frac{2zx}{n_{zx}^2} + \frac{2xy}{n_{xy}^2} = 1 \quad (4.3)$$

με $n_{ij}^{-1} = (e^{-1})_{ij}^{1/2}$ να είναι ο ταυνητής του δείκτη διάθλασης. Η διεύρυνση σειρών ισχύος συμβαίνει για όλους τους συντελεστές $n_{ij}^{-2}(E_0)$ του δείκτη ελλειψοειδούς

$$\frac{1}{n_{ij}^2(\mathbf{E}_0)} = \left(\frac{1}{n_{ij}^2} \right)_0 + \sum_k r_{ijk} E_{0k} + \sum_{k,l} p_{ijkl} E_{0k} E_{0l} + \dots \quad (4.4)$$

Ο συντελεστής r_{ijk} συχνά ονομάζεται *γραμμικός ηλεκτρο-οπτικός τανυστής* και ο p_{ijkl} είναι ο *τετραγωνικός ηλεκτρο-οπτικός τανυστής*. Οι τιμές του r_{ijk} για πολλούς κρυστάλλους έχουν πινακογραφηθεί σε σχετική βιβλιογραφία².

Από φυσικής άποψης, τα ηλεκτρο-οπτικά φαινόμενα πηγάζουν, και από την ιονική ή μοριακή κίνηση και από την αλλοίωση του ηλεκτρονικού νέφους που προκαλείται από την εφαρμογή ηλεκτρικού πεδίου. Ακόμα και αν η αλλαγή του επαγόμενου δείκτη διάθλασης είναι μόνο γύρω στο 10^{-5} (οι τυπικές τιμές του r_{ijk} είναι περίπου από 10^{-10} έως 10^{-8} cm/v), ένα μέσο 1cm μακρύ, μπορεί να επιβάλει σε μια ορατή δέσμη, μια καθυστέρηση φάσης μεγαλύτερη από $\pi/2$. Για το λόγο αυτό, τα ηλεκτρο-οπτικά φαινόμενα έχουν χρησιμοποιηθεί ως οπτικοί διαμορφωτές.

4.2 Μαγνητο-οπτικά φαινόμενα

Ο οπτικός διηλεκτρικός τανυστής ϵ ενός μέσου είναι επίσης μια συνάρτηση ενός εφαρμοσμένου dc μαγνητικού πεδίου, H_0 . Έχει τη σχέση συμμετρίας³ $\epsilon_{ij}(\mathbf{H}_0) = \epsilon_{ji}(-\mathbf{H}_0)$ (4.5). Εδώ, παρά την απουσία σκεδασμού, η ϵ_{ij} είναι μια σύνθετη ποσότητα, αλλά έχει την ιδιότητα να είναι Ερμιτιανή: $\epsilon_{ij}(\mathbf{H}_0) = \epsilon'_{ij}(\mathbf{H}_0) + i\epsilon''_{ij}(\mathbf{H}_0) = \epsilon_{ji}^*(\mathbf{H}_0)$ (4.6). Τότε, σε ένα μη σκεδαστικό μέσο, έχουμε

$$\begin{aligned} \epsilon'_{ij}(\mathbf{H}_0) &= \epsilon'_{ji}(\mathbf{H}_0) = \epsilon'_{ij}(-\mathbf{H}_0) \\ \epsilon''_{ij}(\mathbf{H}_0) &= -\epsilon''_{ji}(\mathbf{H}_0) = -\epsilon''_{ij}(-\mathbf{H}_0) \end{aligned} \quad (4.7)$$

Επομένως, το πραγματικό μέρος του τανυστή είναι συμμετρικό και είναι μια άρτια συνάρτηση της H_0 και το φανταστικό μέρος είναι αντισυμμετρική και περιττή στην H_0 . Η εξάρτηση της ϵ_{ij}'' από την H_0 οδηγεί σε κυκλική διπλοθλαστικότητα ή το φαινόμενο Faraday, ενώ η εξάρτηση της ϵ_{ij}' από την H_0 οδηγεί σε γραμμική διπλοθλαστικότητα ή φαινόμενο Cotton-Mouton³. Αυτό μπορεί να περιγραφεί με ένα μέσο μονοαξονικής συμμετρίας, που έχει την H_0 παράλληλη στον άξονα. Σε αυτήν την περίπτωση, τα μόνα μη μηδενιζόμενα στοιχεία του ϵ είναι τα $\epsilon'_{xx} = \epsilon'_{yy}$ και ϵ'_{zz} άρτια στην H_0 και $\epsilon''_{xy} = -\epsilon''_{yx}$ περιττή στην H_0 . Η διαγωνιοποίηση του ϵ στο σύστημα συντεταγμένων με ορθογώνια μοναδιαία διανύσματα $\mathbf{e}_{\pm} = (\hat{x} \pm i\hat{y})/\sqrt{2}$ και \hat{z} , αποφέρει τα τρία διαγώνια στοιχεία ϵ_{\pm} και ϵ_{zz} όπου $\epsilon_{\pm} = \epsilon'_{xx} \pm \epsilon''_{xy}$ είναι οι επιδεκτικότητες για τα δεξιά και αριστερά κυκλικά

πολωμένα κύματα, αντίστοιχα. Αφού $\varepsilon''_{xy} \ll \varepsilon'_{xx}$, τα κυματοδιανύσματα των δυο κυκλικά πολωμένων κυμάτων μπορούν να γραφτούν ως

$$k_{\pm} = \frac{\omega\sqrt{\varepsilon_{\pm}}}{c} \approx \left(\frac{\omega\sqrt{\varepsilon'_{xx}}}{c} \right) \left(\frac{1 \pm \frac{1}{2}\varepsilon''_{xy}}{\varepsilon'_{xx}} \right) \quad (4.8)$$

και η κυκλική διπλοθλαστικότητα σε ένα μέσο μήκους l είναι

$$(k_{+} - k_{-})l = \left(\frac{\omega\varepsilon''_{xy}}{c\sqrt{\varepsilon'_{xx}}} \right) l \quad (4.9)$$

Μια γραμμικά πολωμένη δέσμη που διαδίδεται κατά μήκος του \hat{z} θα έχει την πόλωσή του περιστρεμμένη κατά γωνία

$$\phi = \frac{(k_{+} - k_{-})l}{2} \quad (4.10)$$

η οποία είναι γνωστή ως περιστροφή Faraday. Από την άλλη μεριά, αφού $\varepsilon'_{xx}(H_0) - \varepsilon'_{xx}(0)$ είναι σε γενικές γραμμές διαφορετικά από τα $\varepsilon'_{zz}(H_0) - \varepsilon'_{zz}(0)$, η γραμμική διπλοθλαστικότητα στο $\hat{x}-\hat{z}$ επίπεδο, αλλοιώνεται επίσης από την παρουσία της H_0 , γνωστό ως φαινόμενο Cotton-Mouton. Για επαρκώς αδύναμη H_0 , η επέκταση σειρών ισχύος του $\varepsilon(H_0)$ αποφέρει $\varepsilon'(\omega, \mathbf{H}_0) = \varepsilon^{(1)}(\omega) + \varepsilon^{(2)}(\omega + 2\Omega) \cdot \mathbf{H}_0 \mathbf{H}_0 + \dots$ και $\varepsilon''(\omega, \mathbf{H}_0) = \varepsilon''^{(2)}(\omega + \Omega) \cdot \mathbf{H}_0 + \dots$ (4.11). Και πάλι, τα $\varepsilon^{(2)}/4\pi$, $\varepsilon^{(3)}/4\pi$ κ.ο.κ. μπορούν να θεωρηθούν ως μη γραμμικές επιδεκτικότητες, παρόλο που τώρα προκύπτουν από τη μαγνητική συνεισφορά.

Κατά αντιστοιχία με τα ηλεκτρο-οπτικά φαινόμενα, τα μαγνητο-οπτικά φαινόμενα μπορούν επίσης, να χρησιμοποιηθούν για οπτική διαμόρφωση. Το φαινόμενο Faraday ή κυκλική διπλοθλαστικότητα κάνει τη γραμμική πόλωση μιας δέσμης που διασχίζει το μέσο, να περιστραφεί. Στο όριο χαμηλού πεδίου, η περιστροφή είναι ανάλογη με το εφαρμοσμένο μαγνητικό πεδίο. Ξανά, η επαγόμενη αλλαγή στη διηλεκτρική σταθερά ή στο δείκτη διάθλασης είναι συνήθως μικρή ($\approx 10^{-9}$ / gauss για γυαλί εμποτισμένο με μικρή ποσότητα σπάνιων βασικών ιόντων), αλλά η περιστροφή που προέρχεται από τη μετατόπιση σχετικής φάσης μεταξύ των δυο κυκλικών πολώσεων, μπορεί να είναι μερικά δέκατα του βαθμού, σε ένα μέσο μήκους 1 cm, με ένα πεδίο αρκετών χιλιάδων gauss.

Το φαινόμενο Cotton-Mouton, όμως, είναι πολύ πιο αδύνατο και έχει περιορισμένες εφαρμογές.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. Δες, για παράδειγμα, A. Yariv, *Quantum Electronics*, 2nd ed. (Wiley, New York, 1975), p.327.
2. R.J. Pressley, ed., *CRC Handbook of Lasers*, (Chemical Rubber Co., Cleveland, Ohio, 1971), p. 447.
3. Δες, για παράδειγμα, J. van den handel, *Encyclopedia of Physics*, vol. 15, S. Flügge, ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1956), p. 15.

Βιβλιογραφία

- Landau, L.D., & E.M. Lifshitz, *Electrodynamics in Continuous Media* (Pergamon Press, Oxford, 1960).
- Nye, J.F., *Physical Properties of Solids* (Oxford University Press, London, 1964).
- Pressley, R.J., ed., *Handbook of Lasers* (Chemical Rubber Co., Cleveland, Ohio, 1971).
- Wemple, S.H., in F.T. Arecchi & E.O. Schutz-Dubois, eds., *Laser Handbook* (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 975.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 5 – Οπτική ανόρθωση και οπτικός μαγνητισμός επαγόμενου πεδίου

Η διαμόρφωση και η αποδιαμόρφωση είναι πολύ γνωστές διαδικασίες στα ραδιοκύματα και στις μικροκυματικές συχνότητες και σχηματίζουν τη βάση για τις τηλεπικοινωνίες. Ως εκ τούτου, είναι φυσικό να πιστεύει κανείς ότι αυτές οι διαδικασίες θα πρέπει επίσης να υπάρχουν και στον τομέα της οπτικής. Η διαμόρφωση του φωτός από ηλεκτρο-οπτικά και μαγνητο-οπτικά φαινόμενα έχει ήδη συζητηθεί στο Κεφάλαιο 4. Σε αυτό το κεφάλαιο, παρουσιάζεται η οπτική ανόρθωση που παράγεται από dc ηλεκτρική πόλωση και μαγνητισμό.

5.1 Οπτική ανόρθωση

Στη βιβλιογραφία, η οπτική ανόρθωση, η οποία ήταν ένα από τα πρώτα μη γραμμικά φαινόμενα που ανακαλύφθηκαν¹, συνήθως αναφέρεται στη γένεση μιας dc ηλεκτρικής πόλωσης από μια ισχυρή οπτική δέσμη σε ένα μη γραμμικό μέσο. Το φαινόμενο μπορεί να φανεί άμεσα από τη μη γραμμική πόλωση

$$\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{0}) = \chi^{(2)}(\mathbf{0} = \omega - \omega) : \mathbf{E}(\omega)\mathbf{E}^*(\omega) \quad (5.1)$$

με $\mathbf{E}(\omega) = \mathcal{E} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t)$. Η μη γραμμική επιδεκτικότητα $\chi^{(2)}(\mathbf{0} = \omega - \omega)$ εδώ, καθορίζει το μέγεθος του φαινομένου. Σε ένα μη απορροφητικό μέσο, η σχέση μετάθεσης του $\chi^{(2)}$ συσχετίζει το $\chi^{(2)}(\mathbf{0} = \omega - \omega)$ με τους ηλεκτρο-οπτικούς συντελεστές σε ένα σύστημα κυρίων αξόνων.

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{0} = \omega - \omega) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega = \omega + 0) = \chi_{kij}^{(2)}(\omega = 0 + \omega) \\ &= -\frac{\epsilon_{ii}^{(1)} \epsilon_{jj}^{(1)}}{4\pi} r_{ijk} \end{aligned} \quad (5.2)$$

Επομένως, η πόλωση που παράγεται στην οπτική ανόρθωση μπορεί να προβλεφθεί από τον ηλεκτρο-οπτικό συντελεστή r_{ijk} . Σε συνθήκες πραγματικού πειράματος, μετράται το επαγόμενο dc πεδίο ή τάση, αντί του $\mathbf{P}^{(2)}$, διατηρώντας όμως τη γραμμική τους συσχέτιση. Οι Bass κ.α.¹ και Ward² διεξήγαγαν πειράματα οπτικής ανόρθωσης και μέτρησαν $\chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{0} = \omega - \omega)$ για μερικούς κρυστάλλους. Η πειραματική διάταξη μπορεί να είναι απλή. Μια πλάκα κρυστάλλου τοποθετείται με τέτοιο προσανατολισμό, έτσι ώστε, ο i άξονάς του, να είναι κάθετος στις δυο παράλληλες πλευρές της πλάκας. Οι πλευρές καλύπτονται με ασήμι, για να σχηματιστεί ένα σετ από πλάκες πυκνωτή. Έπειτα, μια ισχυρή φωτεινή

δέσμη οδηγείται δια μέσου του κρυστάλλου με κατεύθυνση κάθετη στο i για να παράγει $P_i^{(2)}(0)$ σύμφωνα με το (5.1) και κατόπιν μετράται η επαγόμενη dc τάση κατά πλάτος των πλακών του πυκνωτή. Έστω ότι η dc διηλεκτρική σταθερά του κρυστάλλου κατά μήκος του i είναι ϵ_0 και υποθέτουμε ότι η ένταση της δέσμης μπορεί να προσεγγιστεί ομοιόμορφα σε ένα τμήμα $s \times t$ εγκάρσιας διατομής του κρυστάλλου, όπως φαίνεται στο σχήμα 5.1. Έπειτα, ακολουθώντας την άπειρη προσέγγιση επιπέδου για πυκνωτές, η εξίσωση που διέπουν τα dc πεδία είναι

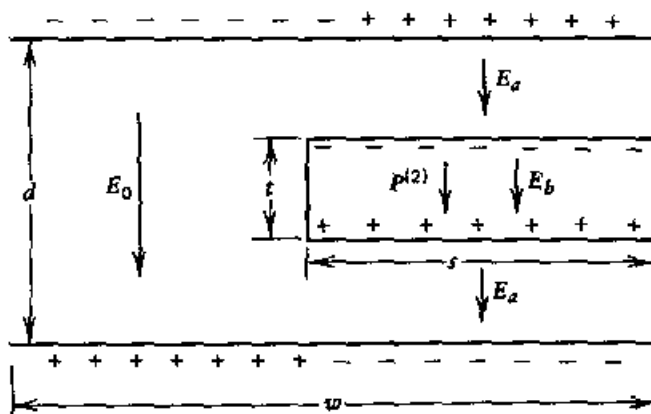
$$\begin{aligned} E_0 d &= E_a(d-t) + E_b t \\ \epsilon_0 E_a &= \epsilon_0 E_b + 4\pi P_i^{(2)} \end{aligned} \quad (5.3)$$

και αφού δεν υπάρχει καθαρό φορτίο στους οπλισμούς $-E_0(w-s) = E_a s$ (5.4).

Η λύση αυτών των εξισώσεων αποφέρει μια dc τάση κατά πλάτος των οπλισμών

$$\begin{aligned} V &= -4\pi \left(\frac{st}{\epsilon_0 w} \right) P_i^{(2)} \\ &= -4\pi \left(\frac{st}{\epsilon_0 w} \right) \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega) E_k^*(\omega) \end{aligned} \quad (5.5)$$

Στα πειράματα προκειμένου να βρεθεί το $\chi_{ijk}^{(2)}(0 = \omega - \omega)$, πρέπει να μετρηθούν ακριβώς και η τάση V (στο εύρος mV/MW) και η ένταση του λέιζερ. Τα αποτελέσματα των Bass κ.α.¹ και Ward² για την οπτική ανόρθωση, δείχνουν ότι η (5.2) πράγματι περιορίζει το πειραματικό σφάλμα.



Σχ. 5.1 Πειραματικό γεωμετρικό σχέδιο για τη μέτρηση της οπτικής ανόρθωσης

5.2 Ενεργός ελεύθερη ενεργειακή πυκνότητα

Η ενεργειακή πυκνότητα πεδίου μέσου χρόνου $\langle U \rangle$ σε ένα μη γραμμικό μέσο εξήχθη στην Ενότητα 3.2, όπου είδαμε ότι μπορούμε να λάβουμε την πόλωση $P(\omega)$ στο μέσο, από την παράγωγο της ενεργούς ελεύθερης ενεργειακής πυκνότητας $F - F^{(0)} = - (\langle U \rangle - \langle U^{(0)} \rangle)$

$$P(\omega) = - \frac{\partial(F - F^{(0)})}{\partial E^*(\omega)} \quad (5.6)$$

εάν αγνοηθούν οι διασπορές των επιδεκτικότητων. Επομένως, η ενεργός ελεύθερη ενεργειακή πυκνότητα που αντιστοιχεί σε ένα όχι πολύ ισχυρό μερικώς μονοχρωματικό κύμα, σε ένα μη απορροφητικό μέσο, υπό την επίδραση ενός dc ηλεκτρικού πεδίου E_0 είναι *

* Να σημειωθεί ότι $E_0 = \lim_{\Omega \rightarrow 0} \frac{1}{2}[\Omega + E_0^*(\Omega)]$

$$F[E(\omega), E_0] \cong F^{(0)}(E_0) - \sum_{j,k} [\chi_{jk}(E_0) E_j^*(\omega) E_k(\omega) + \dots] \quad (5.7\alpha)$$

Εάν το $\chi_{jk}(E_0)$ μπορεί να διευρυνθεί σε σειρές ισχύος του E_0 , γίνεται

$$\begin{aligned} F &= F^{(0)}(E_0) + F^{(1)} + F^{(2)} + \dots \\ F^{(1)} &= - \sum_{j,k} \chi_{jk}(0) E_j^*(\omega) E_k(\omega), \\ F^{(2)} &= - \sum_{i,j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_{0i} E_j^*(\omega) E_k(\omega). \end{aligned} \quad (5.7\beta)$$

Η ελεύθερη ενεργειακή πυκνότητα εδώ, διέπει και το ηλεκτρο-οπτικό φαινόμενο και την οπτική ανόρθωση. Από την (5.6), η επαγόμενη πόλωση στην οπτική ανόρθωση δίνεται

$$P_i^{(2)}(0) = - \frac{\partial F^{(2)}}{\partial E_{0i}} = \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j^*(\omega) E_k(\omega) \quad (5.8), \text{ όπως αναμένεται. Το ίδιο } \chi_{ijk}^{(2)}$$

από την

στην (5.7) και (5.8) είναι ξεκάθαρα υπεύθυνο για το γραμμικό ηλεκτρο-οπτικό φαινόμενο.

H

παραπάνω περιγραφή μπορεί να επεκταθεί και σε μαγνητική περίπτωση.^{3, 4} Για μια όχι τόσο ισχυρή φωτεινή δέσμη, που διαδίδεται σε ένα μη απορροφητικό μέσο κατά την παρουσία μαγνητικού πεδίου, η ενεργός ελεύθερη ενεργειακή πυκνότητα, μπορεί να

$$F = F_0(H_0) - \sum_{i,j} \chi_{ij}(H_0) E_i^*(\omega) E_j(\omega) + \dots \quad (5.9).$$

γραφεί ως σειρές ισχύος του οπτικού πεδίου

Κατά αναλογία, σε μια ηλεκτρική περίπτωση, η $[\chi_{ij}(H_0) - \chi_{ij}(0)]$ εδώ, κυριαρχεί το μαγνητο-οπτικό φαινόμενο. Κατόπιν, περιμένουμε από τη $M(0) = -\frac{\partial F}{\partial H_0}$ ότι θα πρέπει να υπάρχει ένας επαγόμενος dc μαγνητισμός στο μέσο, από το εισερχόμενο φως. Πράγματι, αυτό έχει παρατηρηθεί και είναι γνωστό ως το αντίστροφο μαγνητο-οπτικό φαινόμενο⁵.

Για να εξηγηθεί καλύτερα, θεωρούμε ότι υπάρχει ένα μέσο μονοαξονικής συμμετρίας με φως που διαδίδεται κατά μήκος του άξονα, ας πούμε, του \hat{z} άξονα. Είναι γνωστό ότι αν το dc μαγνητικό πεδίο είναι επίσης κατά μήκος του άξονα z, τότε οι κυκλικές πολώσεις είναι οι ιδιορυθμοί της διάδοσης. Η ενεργός ελεύθερη ενεργειακή πυκνότητα μπορεί επομένως να γραφτεί ως

$F = F_0(H_0) - \chi_+(H_0)|E_+(\omega)|^2 - \chi_-(H_0)|E_-(\omega)|^2 + \dots$ (5.10), όπου $\chi_+ = \chi_{xx} + i\chi_{xy}$ και $\chi_- = \chi_{xx} - i\chi_{xy}$ είναι αντίστοιχα, οι γραμμικές επιδεκτικότητες για τα δεξιά και αριστερά κυκλικά πολωμένα κύματα. Η εξίσωση (5.10) μπορεί να ξαναφτιαχτεί ως

$$F = F_0(H_0) - \frac{1}{2}[\chi_+(H_0) - \chi_-(H_0)](|E_+|^2 - |E_-|^2) - \frac{1}{2}[\chi_+(H_0) + \chi_-(H_0)](|E_+|^2 + |E_-|^2) + \dots \quad (5.11)$$

με $[\chi_+(H_0) - \chi_-(H_0)]$ και $[\chi_+(H_0) + \chi_-(H_0)]$ να είναι οι περιττές και άρτιες συναρτήσεις της H_0 , αντίστοιχα. Το φαινόμενο Faraday είναι τώρα ανάλογο προς

$$-\frac{\partial F}{\partial |E_+|^2} + \frac{\partial F}{\partial |E_-|^2} = \chi_+(H_0) - \chi_-(H_0) = \frac{\epsilon_+(H_0) - \epsilon_-(H_0)}{4\pi} \quad (5.12)$$

όπως αναλύθηκε στην Ενότητα 4.2. Μπορούμε τώρα να δείξουμε ότι

$$\chi_{xx}(H_0) = \chi_{yy}(H_0) \\ \chi_{xx}(H_0) - \chi_{xx}(0) = \frac{1}{2}[\chi_+(H_0) + \chi_-(H_0) - \chi_+(0) - \chi_-(0)] \quad (5.13)$$

Αυτή η αλλαγή μαγνητικής επιδεκτικότητας επαγόμενου πεδίου συνδέεται με το φαινόμενο Cotton-Mouton. Από την άλλη μεριά, ο οπτικός μαγνητισμός επαγόμενου πεδίου μπορεί επίσης να εξαχθεί από την (5.11). Με το οπτικό πεδίο ενεργό, η αλλαγή επαγόμενου μαγνητισμού κατά μήκος του z δίνεται από την σχέση

$$\begin{aligned}\Delta M &= -\frac{\partial}{\partial H_0}(F - F_0) \\ &= \Delta M_F + \Delta M_{CM}, \\ \Delta M_F &= \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial H_0}(\chi_+ - \chi_-)(|E_+|^2 - |E_-|^2)\end{aligned}\quad (5.14)$$

και

$$\Delta M_{CM} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial H_0}(\chi_+ + \chi_-)(|E_+|^2 + |E_-|^2)$$

Ο όρος ΔM_F , που είναι άρτιος στην H_0 , προέρχεται από τον όρο, που ευθύνεται για το φαινόμενο Faraday στο F και ο ΔM_{CM} , που είναι περιττός στην H_0 , από τον όρο Cotton-Mouton στην F . Κατά συνέπεια, τα φαινόμενα ονομάζονται αντίστροφο φαινόμενο Faraday και αντίστροφο φαινόμενο Cotton-Mouton, αντίστοιχα. Όπως φαίνεται από την (5.14), ακόμα και αν $H_0 = 0$, το αντίστροφο φαινόμενο Faraday είναι μη μηδενιζόμενο εφόσον $|E_+| \neq |E_-|$, και είναι μέγιστο για κυκλική πόλωση. Η φωτεινή δέσμη με $|E_+|^2 \neq |E_-|^2$ εδώ, διαδραματίζει τον ρόλο ενός dc μαγνητικού πεδίου και διαταράσσει τη συμμετρία χρονικής αναστροφής του μέσου. Το αντίστροφο Cotton-Mouton φαινόμενο μπορεί, όμως, να υπάρχει ακόμα και με γραμμικά πολωμένο φως, αλλά μηδενίζεται για $H_0 = 0$, αφού η $\frac{\partial(\chi_+ + \chi_-)}{\partial H_0}$ είναι περιττή στην H_0 .

Η ενεργός ελεύθερη ενεργειακή πυκνότητα, έπειτα, μας επιτρέπει να προβλέψουμε τα μεγέθη του αντίστροφου Faraday και αντίστροφου Cotton-Mouton φαινομένου, από τα ήδη μετρημένα, που είναι η Faraday περιστροφή και το φαινόμενο Cotton-Mouton στο μέσο. Από φυσικής άποψης, τα φαινόμενα Faraday και Cotton-Mouton πηγάζουν από κυκλικό και γραμμικό διχρωισμό, επαγόμενο από το dc μαγνητικό πεδίο, αλλά πώς περιγράφουμε τα αντίστροφα φαινόμενα; Αυτό είναι το θέμα της επόμενης ενότητας.

5.3 Αντίστροφα φαινόμενα Faraday και Cotton-Mouton

Μικροσκοπικά, προκύπτει ο φωτο-επαγόμενος dc μαγνητισμός, επειδή το οπτικό πεδίο μετατοπίζει τις διαφορές μαγνητικές καταστάσεις της βασικής πολλαπλότητας, διαφορετικά (γνωστές και ως οπτικές μετατοπίσεις Stark), και αναμιγνύει σε αυτές τις καταστάσεις, διαφορετικές ποσότητες διεγερμένων καταστάσεων. Έστω ότι η Χαμιλτονιανή αλληλεπίδραση είναι

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{int} &= \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_1^\dagger \\ \mathcal{H}_1 &= -e[r_+ E_-(\omega) + r_- E_+(\omega)]\end{aligned}\quad (5.15)$$

Από τον υπολογισμό της χρονο-εξαρτώμενης διαταραχής, βρίσκουμε την διαταραγμένη ιδιοκατάσταση

$$|n\rangle = |n\rangle_0 + \Delta|n\rangle$$

$$\Delta|n\rangle = \sum_{n' \neq n} |n'\rangle_0 \left[\frac{\langle n'|\mathcal{H}_1|n\rangle_0}{\hbar(\omega - \omega_{n'n})} - \frac{\langle n'|\mathcal{H}_1^\dagger|n\rangle_0}{\hbar(\omega + \omega'_{nn})} \right] \quad (5.16)$$

και η οπτική μετατόπιση Stark για $|n\rangle$

$$\Delta E_n = \sum_{n' \neq n} \left[\frac{|\langle n'|\mathcal{H}_1|n\rangle_0|^2}{\hbar(\omega - \omega_{n'n})} - \frac{|\langle n'|\mathcal{H}_1^\dagger|n\rangle_0|^2}{\hbar(\omega + \omega'_{nn})} \right] \quad (5.17)$$

όπου $\hbar\omega_{n'n} \equiv E_{n'} - E_n$. Για να επιδειχθεί το αντίστροφο μαγνητο-οπτικό φαινόμενο, υποθέτουμε εδώ, ότι υπάρχει ένα απλό παραμαγνητικό ιόν, με μόνο δυο ζεύγη καταστάσεων, όπως φαίνεται στο Σχ. 5.2. Η βασική $|+m\rangle$ κατάσταση συνδέεται με την διεγερμένη κατάσταση $| -m'\rangle$, μόνο μέσω του στοιχείου του πίνακα $\langle +m' | r_+ | m\rangle$ και η $| -m\rangle$ κατάσταση συνδέεται με την $| +m\rangle$ κατάσταση μέσω του $\langle +m' | r_+ | -m\rangle$, με $r_\pm \equiv (x \pm iy)/\sqrt{2}$. Σε ένα εφαρμοσμένο μαγνητικό πεδίο κατά μήκος του z , οι διαχωρισμοί Zeeman για τα δυο ζεύγη είναι αντίστοιχα $2g\beta m H_0$ και $2g'\beta m' H_0$, όπου β είναι η μαγνητόνη Bohr. Ο διαχωρισμός ενέργειας ανάμεσα στις καταστάσεις των ζευγών είναι $\hbar\omega_0 \gg kT$ στη $H_0 = 0$. Ο dc μαγνητισμός ενός συστήματος N ιόντων ανά μονάδα όγκου κατά μήκος του z , δίνεται από την

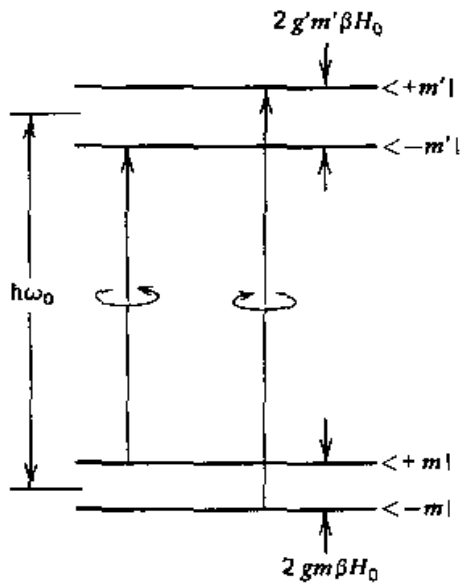
$$M = -Ng\beta \langle J_z \rangle$$

$$= -Ng\beta [\langle m|J_z|m\rangle \rho_m + \langle -m|J_z|-m\rangle \rho_{-m}] \quad (5.18)$$

Εδώ, J_z είναι ο τελεστής στροφορμής και $\rho_{\pm m}$ είναι οι θερμοικοί πληθυσμοί στο $| \pm m\rangle$ που

περιγράφονται από την κατανομή Boltzmann

$$\rho_{\pm m} = \frac{e^{-E_{\pm m}/kT}}{e^{-E_m/kT} + e^{-E_{-m}/kT}} \quad (5.19)$$



Σχ. 5.2 Διάγραμμα ενεργειακού επιπέδου ενός ιδανικού παραμαγνητικού συστήματος με μόνο δυο ζεύγη καταστάσεων, συνδεδεμένα μέσω κυκλικά πολωμένων οπτικών πεδίων.

με $E_{\pm m} = \pm g\beta m H_0 + \Delta E_{\pm m}$. Μέσω της διαταραχής του στο $E_{\pm m}$ και $|m\rangle$, το οπτικό πεδίο προκαλεί έναν dc μαγνητισμό

$$\begin{aligned}\Delta M &= M(\mathcal{H}_1) - M(\mathcal{H}_1 = 0) \\ &= \Delta M^P + \Delta M^D, \\ \Delta M^P &= -Ng\beta m [(\rho_m - \rho_{-m}) - (\rho_m^0 - \rho_{-m}^0)] \quad (5.20)\end{aligned}$$

και $\Delta M^D = -Ng\beta [(\Delta\langle m | J_z(\Delta|m\rangle))\rho_m^0 + (\Delta\langle -m | J_z(\Delta|-m\rangle))\rho_{-m}^0]$, όπου $\rho_{\pm m}^0 = (\rho_{\pm m})_{\Delta E_{\pm m}=0}$ και ΔM^P και ΔM^D προέρχονται από επαγόμενες αλλαγές στους πληθυσμούς και τα στοιχεία του πίνακα, αντίστοιχα. Από την (5.15) στην (5.20) με $|\Delta E_{\pm m}| \ll kT$ και $|\langle m' | r_+ | -m \rangle|^2 = |\langle -m' | r_- | m \rangle|^2$, βρίσκουμε αμέσως

$$\begin{aligned}\Delta M^P &= \frac{-2Ng\beta m (\Delta E_m - \Delta E_{-m}) \rho_m^0 \rho_{-m}^0}{kT} \\ &= -\frac{2Ng\beta m \rho_m^0 \rho_{-m}^0}{kT} |\langle m' | r_+ | -m \rangle|^2 \\ &\quad \times \left[\frac{\hbar(\omega - \omega_0)}{\hbar^2(\omega - \omega_0)^2 - (gm + g'm')^2 \beta^2 H_0^2} \right. \\ &\quad \left. + \frac{\hbar(\omega + \omega_0)}{\hbar^2(\omega + \omega_0)^2 - (gm + g'm')^2 \beta^2 H_0^2} \right] \quad (5.21)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \times (|E_+|^2 - |E_-|^2) \\ & + \left[\frac{-(gm + g'm')\beta H_0}{\hbar^2(\omega - \omega_0)^2 - (gm + g'm')^2\beta^2 H_0^2} \right. \\ & \left. + \frac{(gm + g'm')\beta H_0}{\hbar^2(\omega + \omega_0)^2 - (gm + g'm')^2\beta^2 H_0^2} \right] (|E_+|^2 + |E_-|^2) \end{aligned}$$

και

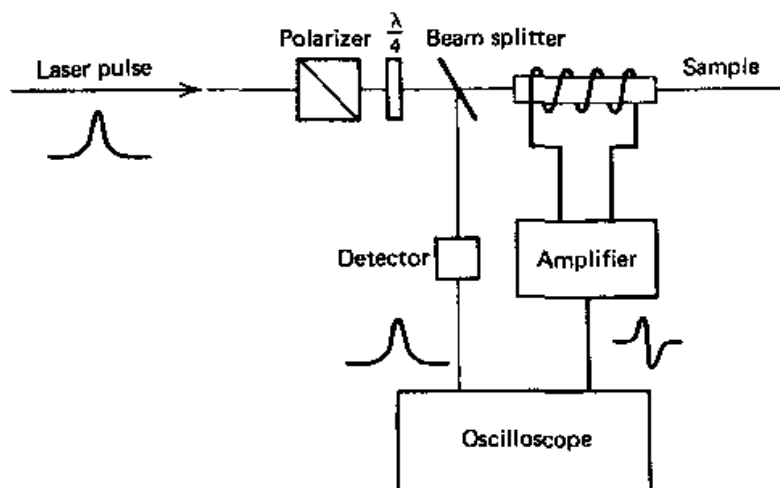
$$\begin{aligned} \Delta M^D &= -\frac{1}{2}Ng\beta m' |\langle m' | er_+ | -m \rangle|^2 \\ & \times \left\{ \left(\frac{-\rho_m^0}{[\hbar(\omega - \omega_0) + (gm + g'm')\beta H_0]^2} \right. \right. \\ & \quad + \frac{\rho_m^0}{[\hbar(\omega + \omega_0) - (gm + g'm')\beta H_0]^2} \\ & \quad + \frac{-\rho_{-m}^0}{[\hbar(\omega - \omega_0) - (gm + g'm')\beta H_0]^2} \\ & \quad \left. \left. + \frac{\rho_{-m}^0}{[\hbar(\omega + \omega_0) + (gm + g'm')\beta H_0]^2} \right) (|E_+|^2 - |E_-|^2) \right. \\ & \quad + \left(\frac{-\rho_m^0}{[\hbar(\omega - \omega_0) + (gm + g'm')\beta H_0]^2} \right. \\ & \quad + \frac{-\rho_m^0}{[\hbar(\omega + \omega_0) - (gm + g'm')\beta H_0]^2} \\ & \quad + \frac{\rho_{-m}^0}{[\hbar(\omega - \omega_0) - (gm + g'm')\beta H_0]^2} \\ & \quad \left. \left. + \frac{\rho_{-m}^0}{[\hbar(\omega + \omega_0) + (gm + g'm')\beta H_0]^2} \right) (|E_+|^2 + |E_-|^2) \right\} \quad (5.22) \end{aligned}$$

Αφού το ΔM^D προκύπτει από την αλλαγή επαγόμενου πληθυσμού στις βασικές καταστάσεις, λόγω των οπτικών μετατοπίσεων Stark, μηδενίζεται σε ένα διαμαγνητικό σύστημα, το οποίο έχει μόνο μια βασική μονήρη κατάσταση η οποία καταλαμβάνεται σε συνηθισμένες θερμοκρασίες. Επομένως, χαρακτηρίζεται ως το παραμαγνητικό μέρος του

ΔM . Λόγω του πεπερασμένου χρόνου χαλάρωσης, που η κατανομή του πληθυσμού χρειάζεται για να φτάσει νέα ισορροπία, το ΔM^P δεν μπορεί να ανταποκριθεί στιγμιαία σε έναν βραχύ εισερχόμενο φωτεινό παλμό. Στην πραγματικότητα, από τον χρόνο μεταβολής του ΔM^P , θα μπορούσε κανείς να εξάγει τον χρόνο χαλάρωσης T_1 των βασικών καταστάσεων. Ο όρος ΔM^D που προκύπτει από την ανάμιξη της κυματομορφής με το οπτικό πεδίο, υπάρχει ακόμα και σε ένα διαμαγνητικό σύστημα και χαρακτηρίζεται ως το διαμαγνητικό μέρος του ΔM . Ανταποκρίνεται σχεδόν στιγμιαία στο εισερχόμενο φως. Το παραμαγνητικό μέρος είναι ανάλογο προς το $1/kT$ για $|\Delta E_{\pm m}| \ll kT$, και το διαμαγνητικό μέρος είναι ουσιαστικά, ανεξάρτητο από τη θερμοκρασία. Αυτό είναι παρόμοιο με την θερμοκρασιακή συμπεριφορά του συνηθισμένου παραμαγνητισμού και διαμαγνητισμού⁶. Και το ΔM^P στην (5.21) και το ΔM^D στην (5.22) έχουν ξεκάθαρα αποσυντεθεί σε ένα μέρος, το οποίο είναι ανάλογο στο $(|E_+|^2 - |E_-|^2)$ και σε ένα άλλο μέρος, ανάλογο προς το $(|E_+|^2 + |E_-|^2)$. Το πρώτο, αντιστοιχεί στο αντίστροφο φαινόμενο Faraday και το δεύτερο στο αντίστροφο φαινόμενο Cotton-Mouton. Για φωτεινή συχνότητα πολύ μακριά από συντονισμό, το αντίστροφο φαινόμενο Cotton-Mouton είναι πολύ μικρότερο από το αντίστροφο φαινόμενο Faraday. Όπως φαίνεται από τις (5.21) και (5.22), ο λόγος του ΔM_{CM} προς το ΔM_F είναι περίπου $|(g'm' + gm)\beta H_0 / \hbar(\omega - \omega_0)|$ για το παραμαγνητικό μέρος και είναι περίπου $|(g'm' + gm)\beta H_0 / \hbar(\omega - \omega_0)|$ ή $(\rho_m^0 - \rho_{-m}^0) / (\rho_m^0 + \rho_{-m}^0)$, όποιο από αυτά είναι μεγαλύτερο, για το διαμαγνητικό μέρος. Ίσως γίνει συγκρίσιμο με τη μονάδα, όταν το $\hbar(\omega - \omega_0)$ πλησιάσει την ενέργεια διαχωρισμού Zeeman. Όμως, κοντά στον συντονισμό, ο επαγόμενος dc μαγνητισμός λόγω οπτικής αντλίας, συχνά κυριαρχεί⁷. Σε πραγματικά πειράματα, το αντίστροφο φαινόμενο Cotton-Mouton διακρίνεται από το αντίστροφο φαινόμενο Faraday, από το γεγονός ότι με την αντιστροφή του μαγνητικού πεδίου H_0 , το ΔM_{CM} αλλάζει πρόσημο, ενώ το ΔM_F δεν αλλάζει. Τελικά, αντιλαμβανόμαστε ότι η (5.21) και η (5.22) μπορούν να εξαχθούν από την (5.14), εάν χρησιμοποιηθούν οι μικροσκοπικές εκφράσεις των χ_+ και χ_- κατά την (2.17) για χ_{ij} , για το σύστημα στο Σχ. 5.2. Αυτό αφήνεται ως άσκηση για τους αναγνώστες. Ο παραπάνω υπολογισμός για ΔM μπορεί φυσικά, να γενικοποιηθεί σε ένα παραμαγνητικό σύστημα με N βασικές καταστάσεις. Σε πυκνά μέσα, πρέπει να συμπεριλαμβάνεται και ένας διορθωτικός παράγοντας τοπικού πεδίου.

Το πειραματικό σχήμα για την παρατήρηση του υπό φωτός διεγερμένου dc μαγνητισμού, φαίνεται στο Σχ. 5.3. Ο παλμός φωτός διεγείρει ένα παλλόμενο $\Delta M(t)$ στο δείγμα. Η παράγωγος χρόνου $d(\Delta M)/dt$ προκαλεί μια τάση στα άκρα ενός πηνίου pick-up γύρω από το δείγμα. Ως παράδειγμα, σκεφτείτε την περίπτωση του $\text{CaF}_2: 3\% \text{Eu}^{2+}$. Η

περιστροφή Faraday στο $\lambda = 7000 \text{ \AA}$ είναι $2 \times 10^{-4} \text{ rad/cm-Oe}$ στα 4.2K. Από τις (4.9) και (4.10), παίρνουμε $[\frac{\partial}{\partial} (\chi_+ - \chi_-) / \frac{\partial}{\partial} H_0]_{H_0=0} = 1.8 \times 10^{-1} \text{ esu/Oe}$. Τότε, η (5.14) προβλέπει ότι με μια κυκλικά πολωμένη δέσμη ρουμπινιού 10 MW/cm^2 στο δείγμα, ο επαγόμενος dc μαγνητισμός είναι $\Delta M_f = 7 \times 10^{-6} \text{ erg/Oe-cm}^3$. Αυτό είναι ισοδύναμο με το επαγόμενο από ένα dc πεδίο περίπου 0,01 Oe. Εάν χρησιμοποιηθεί ένας παλμός από Q-switched (Q-SW) λέιζερ με ένταση κορυφής 10-MW και χρόνο ανόδου $2 \times 10^{-8} \text{ sec}$ και θεωρείται ότι σε χρόνο $\Delta M(t)$ ακολουθεί στιγμιαία η μεταβολή έντασης του λέιζερ παλμού, τότε η επαγόμενη τάση που διέπει τα άκρα ενός pick-up πηνίου 30 στροφών, θα είναι 1,3mV. Αυτό, έρχεται σε συμφωνία με την πειραματική παρατήρηση των van der Ziel κ.α.⁵, που έδειξαν ότι η αντίστροφη σχέση μεταξύ φαινομένου Faraday και αντίστροφου φαινομένου Faraday, πράγματι ισχύει για πολλές παραμαγνητικές και διαμαγνητικές ουσίες.



Σχ. 5.3 Πειραματική διάταξη για τη μέτρηση αντίστροφων μαγνητο-οπτικών φαινομένων

5.4 Επαγόμενος μαγνητισμός από διέγερση συντονισμού

Ο dc μαγνητισμός μπορεί φυσικά να προκληθεί από φως, δια μέσου άμεσης οπτικής άντλησης και γενικότερα είναι ισχυρότερος από το αντίστροφο μαγνητο-οπτικό φαινόμενο, που συζητήθηκε στην Ενότητα 5.3. Η οπτική άντληση μέσω κυκλικά πολωμένου φωτός, για παράδειγμα, μεταβάλλει την κατανομή πληθυσμού στις μαγνητικές υποστάθμες, και στις βασικές και στις διεγερμένες καταστάσεις, καταλήγοντας επομένως, σε γωνιακή στροφορμή και μαγνητισμό. Θεωρητικά, οι λόγοι των εξισώσεων μπορούν να χρησιμοποιηθούν για να υπολογιστεί η ανακατανομή πληθυσμού και επομένως και ο μαγνητισμός που προκαλείται από την οπτική διέγερση συντονισμού, εάν οι πιθανότητες

μετάβασης και οι λόγοι χαλάρωσης μεταξύ των στάθμεων, είναι γνωστοί. Η οπτική αντλία σε αέρια και στερεά έχει αποτελέσει εδώ και πολύ καιρό αντικείμενο εκτεταμένης έρευνας. Ο πολωμένος φθορισμός είναι συχνά ένα μέσο για ανίχνευση του προσανατολισμού στις γωνιακής στροφορμής που προκαλείται στο μέσο. Μπορεί επίσης να μελετηθεί και με τη διάταξη του Σχ.5.3, μετρώντας τον dc μαγνητισμό που παράγεται στο μέσο από τον λέιζερ παλμό⁷. Αυτό ίσως φανεί χρήσιμο σε μερικές περιπτώσεις όπου μελετάται η χαλάρωση μεταξύ μαγνητικών υποστάθμεων σε συμπτυκνωμένη ύλη.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. M. Bass, P.A. Franken, J.F. Ward, & G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* 9, 446 (1962).
2. J.F. Ward, *Phys. Rev.* 143, 569 (1966).
3. Y.R. Shen & N. Bloembergen, *Bull. Am. Phys. Soc.* 9, 292 (1964).
4. P.S. Pershan, J.P. van der Ziel & L.D. Malmstrom, *Phys. Rev.* 143, 574 (1966).
5. J.P. van der Ziel, P.S. Pershan & L.D. Malmstrom, *Phys. Rev.* 15, 190 (1965).
6. J.H. van Vleck & M.H. Hebb, *Phys. Rev.* 46, 17 (1934).
7. J.F. Holzrichter, R.M. MacFarlane & A.L. Schawlow, *Phys. Rev. Lett.* 26, 652 (1971).

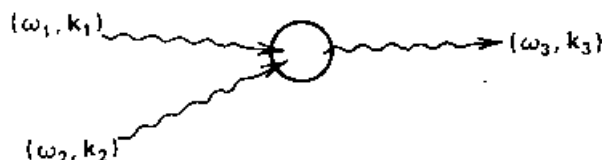
ΚΕΦΑΛΑΙΟ 6 – Γένεση αθροίσματος συχνοτήτων

Η αλληλεπίδραση κυμάτων σε ένα μη γραμμικό μέσο οδηγεί σε μίξη κυμάτων. Το αποτέλεσμα είναι η γένεση κυμάτων σε συχνότητες αθροίσματος και διαφοράς. Η γένεση αθροίσματος συχνοτήτων είναι ένα από τα τρία μη γραμμικά φαινόμενα που ανακαλύφθηκαν τα τελευταία χρόνια¹. Με τις πρόσφατες εξελίξεις στα ρυθμιζόμενα λέιζερ, έχει γίνει ένα από τα πιο χρήσιμα μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα, όσον αφορά στην διεύρυνση του ρυθμιζόμενου εύρους και σε μικρότερα μήκη κύματος. Αυτό το κεφάλαιο ασχολείται κυρίως με τη βασική αρχή της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων.

6.1 Φυσική περιγραφή

Το 1962, οι Bass κ.α.¹ παρατήρησαν πρώτοι την οπτική γένεση αθροίσματος συχνοτήτων σε έναν κρύσταλλο από θεϊκή τριγλυκίνη. Στο πείραμά τους, χρησιμοποιήθηκαν δυο λέιζερ ρουμπινιού, με τα μήκη κυμάτων λειτουργίας τους να απέχουν 10 Å, για να παρέχουν τις ακτίνες εισόδου. Η έξοδος, που αναλύθηκε από έναν φασματογράφο, έδειξε τρεις γραμμές γύρω στα 3470 Å, δυο πλευρικές γραμμές να προκύπτουν από τη γένεση δεύτερης αρμονικής και μια μεσαία, να προκύπτει από τη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων από τις δυο ακτίνες λέιζερ.

Η φυσική ερμηνεία της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων είναι ξεκάθαρη. Οι ακτίνες λέιζερ στις ω_1 και ω_2 αλληλεπιδρούν σε έναν μη γραμμικό κρύσταλλο και παράγουν μια μη γραμμική πόλωση $P^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$. Όντας μια ομάδα από ταλαντευόμενα δίπολα, δρα ως πηγή ακτινοβολίας στην $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Σε γενικές γραμμές, η ακτινοβολία θα μπορούσε να εμφανιστεί προς όλες τις κατευθύνσεις· το διάγραμμα ακτινοβολίας εξαρτάται από τη φασικά συσχετιζόμενη χωρική κατανομή του $P^{(2)}(\omega_3)$. Με κατάλληλη διάταξη, όμως, το διάγραμμα ακτινοβολίας μπορεί να κορυφωθεί ισχυρά προς μια συγκεκριμένη κατεύθυνση. Αυτό μπορεί να καθοριστεί από τις συνθήκες προσαρμογής φάσης. Όπως συζητήθηκε στην Ενότητα 3.1, για την ενεργό μεταφορά ενέργειας από κύματα αντλίας με ω_1 και ω_2 , στα παραγόμενα κύματα με ω_3 , στη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων (Σχ. 6.1), πρέπει να ικανοποιούνται και τα κριτήρια διατήρησης ενέργειας, αλλά και αυτά της διατήρησης στροφορμής. Η διατήρηση ενέργειας απαιτεί $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, ενώ η διατήρηση στροφορμής απαιτεί $k_3 = k_1 + k_2$. Αυτό, δείχνει ότι η γένεση αθροίσματος συχνοτήτων παράγεται πιο αποτελεσματικά στην περίφημη κατεύθυνση προσαρμογής φάσης, που καθορίζεται από τα $k_3 \approx k_1 + k_2$.²



Σχ. 6.1 Σχηματική περιγραφή της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων

Αν το μήκος αλληλεπίδρασης κύματος l είναι πεπερασμένο, η διατήρηση στροφομής είναι απαραίτητο να ικανοποιηθεί μόνο μέσα στο εύρος αβεβαιότητας του $1/l$. Το διάγραμμα ακτινοβολίας θα πρέπει τότε να είναι μια πεπερασμένη κορυφή προσαρμογής φάσης με ένα γωνιακό πλάτος που αντιστοιχεί σε $\Delta k - 1/l$. Η απορρόφηση στο μέσο, για παράδειγμα, μπορεί να περιορίσει το μήκος της αλληλεπίδρασης και να διευρύνει την κορυφή της προσαρμογής φάσης. Σε γενικές γραμμές, η γένεση αθροίσματος συχνοτήτων από το μέσο, εάν είναι επιτρεπτό και εάν υπάρχει προσαρμογή φάσης, κυριαρχεί σε όλη την επιφάνεια. Στην ανάκλαση, όμως, εξαιτίας της έλλειψης προσαρμογής φάσης, ένα στρώμα επιφάνειας $\sim \lambda/2\pi$ πάχους, θα μπορούσε να συνεισφέρει σημαντικά στην έξοδο. Η περιγραφή αυτή δίνει μια ποιοτική εικόνα της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων, η οποία χρειάζεται τεκμηρίωση με μια πιο επίσημη αντιμετώπιση.

6.2 Διατύπωση

Η προσέγγιση συζευγμένου κύματος που αναλύθηκε στην Ενότητα 3.1 βρίσκει μια άμεση εφαρμογή εδώ³. Τα τρία συζευγμένα κύματα είναι $E(\omega_1)$, $E(\omega_2)$ και η έξοδος αθροίσματος συχνοτήτων $E(\omega_3)$. Κάθε πεδίο μπορεί να αναλυθεί σε διαμήκη και εγκάρσια μέρη $\mathbf{E}(\omega_i) = \mathbf{E}_{\parallel}(\omega_i) + \mathbf{E}_{\perp}(\omega_i)$. Αυτά υπακούν στις κυματικές εξισώσεις

$$\nabla^2 \mathbf{E}_{\perp}(\omega_i) + \frac{\omega_i^2}{c^2} [\boldsymbol{\varepsilon}(\omega_i) \cdot \mathbf{E}(\omega_i)]_{\perp} = -\frac{4\pi\omega_i^2}{c^2} \mathbf{P}_{\perp}^{(2)}(\omega_i) \quad \text{και}$$

$$\nabla \cdot [\mathbf{E}_{\parallel}(\omega_i) + 4\pi \mathbf{P}_{\parallel}^{(1)}(\omega_i) + 4\pi \mathbf{P}_{\parallel}^{(2)}(\omega_i)] = 0 \quad (6.1),$$

όπου $\mathbf{P}(\omega_i) = \mathbf{P}_{\parallel}(\omega_i) + \mathbf{P}_{\perp}(\omega_i)$, $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_1) = \chi^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3) : \mathbf{E}^*(\omega_2) \mathbf{E}(\omega_3)$, $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_2) = \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \mathbf{E}(\omega_3) \mathbf{E}^*(\omega_1)$, και $\mathbf{P}^{(2)}(\omega_3) = \chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2)$. Η γενική λύση της (6.1) με συνοριακές συνθήκες είναι εξαιρετικά πολύπλοκη. Ευτυχώς, σε πραγματικές καταστάσεις, μπορούν συχνά να γίνουν λογικές προσεγγίσεις για να απλοποιηθεί η λύση. Για να το εξηγήσουμε αυτό, θεωρήστε μια περίπτωση με τις ακόλουθες υποθέσεις: (1) όλα τα κύματα είναι άπειρα επίπεδα κύματα, (2) η ελάττωση της

ενέργειας από τα κύματα αντλίας, μπορεί να αγνοηθεί, (3) το μη γραμμικό μέσο είναι ημι-άπειρο, με μια επίπεδη συνοριακή επιφάνεια, (4) το μη γραμμικό μέσο είναι κυβικό ή οι ακτίνες διαδίδονται κατά μήκος ενός συμμετρικού άξονα. Αυτές οι υποθέσεις δεν είναι φυσικά, βασικές, και υπό κατάλληλες συνθήκες μπορούν να μην τηρηθούν τόσο αυστηρά, όπως θα αναλύσουμε παρακάτω.

Αυτές οι υποθέσεις απλοποιούν κατά πολύ τη λύση. Αμελητέα μείωση της ενέργειας του πεδίου αντλίας, σημαίνει ότι οι όροι της μη γραμμικής πόλωσης, που είναι υπεύθυνοι για την κυματική σύζευξη και τη μεταφορά ενέργειας για $E(\omega_1)$ και $E(\omega_2)$, μπορούν να αγνοηθούν. Επομένως, τα κύματα αντλίας διαδίδονται ουσιαστικά γραμμικά στο μη γραμμικό μέσο με $E(\omega_1)$ και $E(\omega_2)$ να διέπονται από γραμμικές κυματικές εξισώσεις. Στην προσέγγιση άπειρου επίπεδου κύματος, έχουμε στο μη γραμμικό μέσο $\mathbf{E}_T(\omega_1) = \mathcal{E}_{1T} \exp[i(\mathbf{k}_{1T} \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)]$ και $\mathbf{E}_T(\omega_2) = \mathcal{E}_{2T} \exp[i(\mathbf{k}_{2T} \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)]$. Οι μόνες εξισώσεις που απομένουν να λυθούν είναι εκείνες για $E(\omega_3)$ στην (6.1) με $P^{(2)}(\omega_3) = \mathcal{P}_3^{(2)} \exp[i(\mathbf{k}_{3s} \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)]$ και $\mathbf{k}_{3s} \equiv \mathbf{k}_{1T} + \mathbf{k}_{2T}$. Η λύση για $E(\omega_3)$ στο μέσο είναι ξεκάθαρη. Περιλαμβάνει μια ομοιογενή λύση (ένα ελεύθερο κύμα με κυματοδιάνυσμα \mathbf{k}_{3T}) και μια μερική λύση (ένα οδηγούμενο κύμα με κυματοδιάνυσμα \mathbf{k}_{3s}),

$$\mathbf{E}_T(\omega_3) = \left\{ \mathbf{A} e^{i\mathbf{k}_{3T} \cdot \mathbf{r}} + \left[\frac{4\pi\omega_3^2}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} \mathcal{P}_{3\perp}^{(2)} - \frac{4\pi\mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)}}{\epsilon_{\parallel}(\omega_3)} \right] e^{i\mathbf{k}_{3s} \cdot \mathbf{r}} \right\} e^{-i\omega_3 t} \quad (6.2)$$

όπου το πλάτος \mathbf{A} της ομοιογενούς λύσης είναι ένας συντελεστής που θα καθοριστεί από τις συνοριακές συνθήκες και υποθέτουμε ότι $\mathbf{E}_{T,\parallel}(\omega_3) + 4\pi\mathbf{P}_{\parallel}^{(1)}(\omega_3) = \epsilon_{\parallel}(\omega_3)\mathbf{E}_{T,\parallel}(\omega_3)$.

Τώρα θα παρουσιάσουμε μια πιο πολύπλοκη περιγραφή του προβλήματος, συμπεριλαμβανομένων των συνοριακών συνθηκών⁴. Έστω $z=0$ ότι είναι το συνοριακό επίπεδο που χωρίζει το ημι-άπειρο μη γραμμικό μέσο στα δεξιά και ένα γραμμικό μέσο στα αριστερά. Όλα τα κύματα διαδίδονται στο $x-z$ επίπεδο με τα κυματοδιανύσματα που περιγράφηκαν στο Σχ. 6.2. Για κάθε ω_i , υπάρχει στο γραμμικό μέσο ένα εισερχόμενο πεδίο $\mathbf{E}_I(\omega_i)$ από τα αριστερά και ένα ανακλώμενο πεδίο $E_R(\omega_i)$ προς τα αριστερά, και στο μη γραμμικό μέσο, ένα εκπεμπόμενο πεδίο $E_T(\omega_i)$ προς τα δεξιά. Αυτά σχετίζονται μεταξύ τους μέσω των συνοριακών συνθηκών. Μια άμεση συνέπεια της προσαρμογής των συνιστωσών του πεδίου στο όριο είναι ότι σε κάθε ω_i , όλες οι συνιστώσες κυματοδιανύσματος που είναι παράλληλες στη συνοριακή επιφάνεια, πρέπει να είναι ίσες.

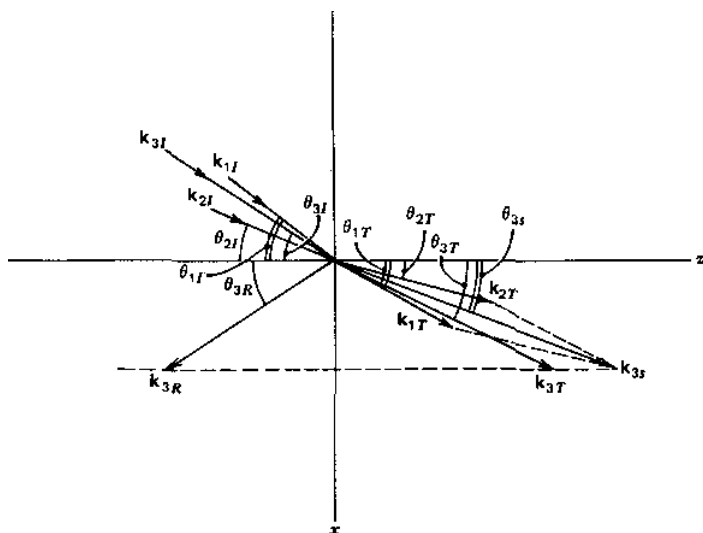
Αυτό οδηγεί στο νόμο ανάκλασης και διάθλασης του Snell για τα κύματα αντλίας. Για το κύμα με συχνότητα το άθροισμα συχνοτήτων, έχουμε

$$k_{3I,x} = k_{3R,x} = k_{3T,x} = k_{3s,x} \quad (6.3)$$

Όσον αφορά στις γωνίες διάδοσης, που περιγράφηκαν στο Σχ. 6.2, αυτή η σχέση γίνεται

$$\begin{aligned} k_{3I} \sin \theta_{3I} &= k_{3R} \sin \theta_{3R} = k_{3T} \sin \theta_{3T} \\ &= k_{3s} \sin \theta_{3s} \\ &= k_{1T} \sin \theta_{1T} + k_{2T} \sin \theta_{2T} \\ &= k_{1I} \sin \theta_{1I} + k_{2I} \sin \theta_{2I}. \end{aligned} \quad (6.4)$$

Η εξίσωση (6.4) μπορεί να θεωρηθεί ως μη γραμμικός νόμος του Snell.



Σχ. 6.2 Περιγραφή των κυματοδιανυσμάτων διαφόρων κυμάτων που εμπλέκονται στη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων σε ένα ημι-άπειρα μη γραμμικό μέσο με συνοριακή επιφάνεια στο $z = 0$.

Όταν τα κυματοδιανύσματα των εισερχόμενων κυμάτων αντλίας είναι γνωστά, αυτό καθορίζει τις διευθύνσεις διάδοσης των μη γραμμικά παραγόμενων κυμάτων εξόδου⁴. Για να ολοκληρωθεί η λύση, θα πρέπει επίσης να βρεθούν τα πλάτη των κυμάτων εξόδου.

Στην (6.2) $\mathcal{P}_3^{(2)}(\omega_3) = \chi^{(2)} : \mathcal{E}_{1T} \mathcal{E}_{2T}$. Για ένα δεδομένο μη γραμμικό μέσο, το $\chi^{(2)}$ ορίζεται και τα \mathcal{E}_{1T} και \mathcal{E}_{2T} σχετίζονται με τα εισερχόμενα πλάτη του πεδίου αντλίας, από τους συντελεστές Fresnel. Ο μοναδικός άγνωστος στην έκφραση της $E_T(\omega_3)$ στην (6.2) είναι ο συντελεστής A. Έπειτα, πρέπει επίσης να λάβουμε υπόψη μας τα εισερχόμενα και ανακλώμενα κύματα στην ω_3 , που περιγράφηκαν από τις $\mathbf{E}_I(\omega_3)$ και $E_R(\omega_3)$, αντίστοιχα, στο γραμμικό μέσο

$$\mathbf{E}_T(\omega_3) = \mathcal{E}_{3T} e^{i(\mathbf{k}_{3T} \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)} \quad \text{και} \quad \mathbf{E}_R(\omega_3) = \mathcal{E}_{3R} e^{i(\mathbf{k}_{3R} \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)}. \quad (6.5)$$

Το εισερχόμενο πλάτος πεδίου \mathcal{E}_{3T} δίνεται, αλλά το πλάτος ανακλώμενου πεδίου \mathcal{E}_{3R} πρέπει να οριστεί. Επομένως, υπάρχουν δυο άγνωστοι συντελεστές, A και \mathcal{E}_{3R} , που πρέπει να οριστούν από τις συνοριακές συνθήκες. Σαφώς, η απαίτηση ότι οι συνιστώσες και του ηλεκτρικού και του μαγνητικού πεδίου που είναι παράλληλες στην επιφάνεια, πρέπει να είναι συνεχείς, παρέχει αρκετές σχέσεις για να λυθούν τα A και \mathcal{E}_{3R} . Αφήνουμε τη λύση για επόμενη ενότητα, αντιμετωπίζοντας προς το παρόν την περίπτωση της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων, στο σύνολό της.

6.3 Απλή λύση της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων μέσω μεγάλου όγκου

Εδώ, ενδιαφερόμαστε μόνο για τη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων για ένα ογκώδες μη γραμμικό μέσο (bulk SFG), όπως περιγράφηκε από το ανάπτυγμα του $E_T(\omega_3)$ κατά μήκος του z στο Σχ. 6.2. Αφού το ανάπτυγμα του πεδίου αθροίσματος συχνοτήτων είναι γενικά αμελητέο σε απόσταση μεγέθους μήκους κύματος, η προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, που συζητήθηκε στην Ενότητα 3.3 είναι εφαρμόσιμη εδώ. Με $E_T(\omega_3) = \mathcal{E}_{3T}(z) \exp[i(\mathbf{k}_{3T} \cdot \mathbf{r} - \omega_3 t)]$, η (6.1) παίρνει τότε τη μορφή

$$\frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}_{3T,\perp}(z) = \frac{i2\pi\omega_3^2}{k_{3T,z}c^2} \mathcal{P}_{3\perp}^{(2)} e^{i\Delta k z} \frac{\partial}{\partial z} [\epsilon_{\parallel}(\omega_3) \mathcal{E}_{3T,\parallel} + 4\pi \mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)} e^{i\Delta k z}] = 0 \quad (6.6),$$

όπου $\Delta \mathbf{k} = \hat{z} \Delta k = \mathbf{k}_{1T} + \mathbf{k}_{2T} - \mathbf{k}_{3T}$ (6.7) είναι η ασυνέχεια φάσης. Η λύση της (6.6) αποφέρει

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{3T,\perp}(z) &= \mathcal{E}_{3T,\perp}(0) + \frac{2\pi\omega_3^2}{c^2 k_{3T,z} \Delta k} \mathcal{P}_{3\perp}^{(2)} (e^{i\Delta k z} - 1) \\ \mathcal{E}_{3T,\parallel}(z) &= \mathcal{E}_{3T,\parallel}(0) - \frac{4\pi \mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)}}{\epsilon_{\parallel}(\omega_3)} (e^{i\Delta k z} - 1). \end{aligned} \quad (6.8)$$

Μια πιο αναλυτική προσέγγιση, θα ήταν να αγνοηθεί η επίδραση της μη γραμμικής πόλωσης της ανάκλασης και διάθλασης στο σύνορο. Τότε, το $\mathcal{E}_{3T}(0)$ συνδέεται άμεσα με το εισερχόμενο πεδίο $\mathcal{E}_{3T}(0)$, μέσω των συντελεστών Fresnel.

Η ένταση του κύματος αθροίσματος συχνοτήτων στον z δίνεται από την σχέση

$$I_3(z) = \frac{c\sqrt{\varepsilon(\omega_3)}}{2\pi} |\mathcal{E}_{3T}(z)|^2 \quad (6.9)$$

Η αντίστοιχη ισχύς εξόδου εξάγεται από την ολοκλήρωση του I_3 στη διατομή της ακτίνας. Εδώ, η πεπερασμένη διατομή δέσμης φαίνεται να έρχεται σε σύγκρουση με την θεώρηση άπειρου επίπεδου κύματος, άλλα όπως είναι γνωστό, εάν η διατομή της δέσμης είναι επαρκώς μεγάλη, τότε η προσέγγιση δέσμης ισχύει, και κάθε δέσμη μπορεί να αντιμετωπιστεί ως ένα άπειρο επίπεδο κύμα. Επομένως, με την I_3 να εξαρτάται από την εγκάρσια συντεταγμένη ρ , η ολική ισχύος εξόδου στην ω_3 είναι

$$\begin{aligned} P(\omega_3, z) &= \int I_3(z, \rho) d\rho \\ &= \frac{c\sqrt{\varepsilon(\omega_3)}}{2\pi} \int |\mathcal{E}_{3T}(z, \rho)|^2 d\rho. \end{aligned} \quad (6.10)$$

Μια περίπτωση που παρουσιάζει πρακτικό ενδιαφέρον, λαμβάνει χώρα κατά την απουσία μιας εισόδου στην ω_3 , δηλαδή, $\mathcal{E}_{3I} = 0$. Στην παρούσα προσέγγιση, το $\mathcal{E}_{3T}(0)$, επίσης μηδενίζεται. Τότε, για $|k_3/\Delta k| \gg 1$, έχουμε $|\mathcal{E}_{3T,II}| \ll |\mathcal{E}_{3T,I}|$, και η ένταση I_3 μετά τις (6.8) και (6.9) παίρνει τη μορφή

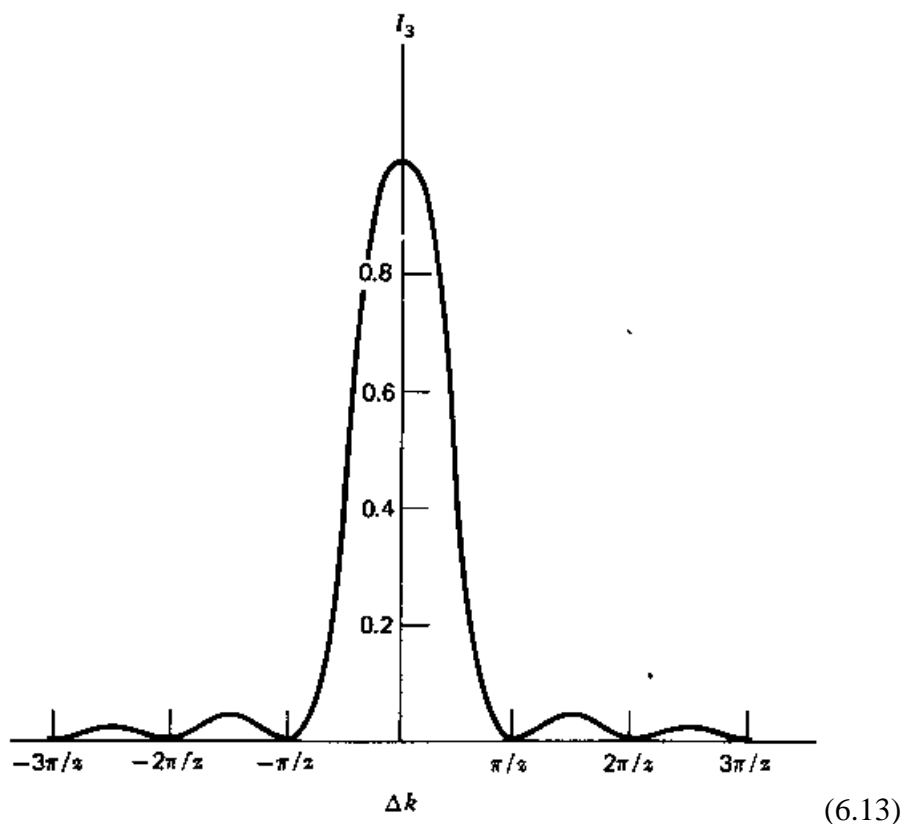
$$I_3(z) = \frac{2\pi\omega_3^2}{c\sqrt{\varepsilon(\omega_3)} \cos^2\theta_{3T}} |\mathcal{E}_{3I}^{(2)}|^2 \left[\frac{\sin(\Delta k z/2)}{\Delta k z/2} \right]^2 z^2 \quad (6.11)$$

Όπως φαίνεται στο Σχ. 6.3, η I_3 σε αντιδιαστολή με τη $\Delta k z$, που δίνεται εδώ, κορυφώνεται έντονα στην προσαρμογή φάσης $\Delta k z = 0$. Η τιμή κορυφής είναι

$$[I_3(z)]_{\max} = \frac{2\pi\omega_3^2}{c\sqrt{\varepsilon(\omega_3)} \cos^2\theta_{3T}} |\mathcal{E}_{3I}^{(2)}|^2 z^2 \quad (6.12)$$

και το ημι-πλάτος μεταξύ των πρώτων μηδενικών είναι

$$(\Delta k)_{\text{HW}z} = \frac{(\Delta k)_{\text{HW}}}{k_{3T}} k_{3T} z = 2\pi.$$



(6.13)

Σχ. 6.3 Έξοδος αθροίσματος συχνοτήτων ως συνάρτηση της ασυνέχειας φάσης Δk κοντά στο $\Delta k \sim 0$.

Για $z = 1 \text{ cm}$, $k_{3T} \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$ σε ένα τυπικό παράδειγμα, βρίσκουμε $(\Delta k)_{\text{HW}} / k_{3T} \sim 10^{-4}$, το οποίο δείχνει ότι σε σχέση με το Δk , η κορυφή της προσαρμογής φάσης είναι συχνά πάρα πολύ στενή.

Ο υπολογισμός της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων σε ανισοτροπικά μέσα, απαιτεί μια ελαφρά τροποποίηση. Αρχικά, αφού $P_{\parallel}^{(2)}$ στη δεύτερη εξίσωση της (6.1) είναι συνήθως αμελητέα, η $E_{T,\parallel}(\omega_i)/E_{T,\perp}(\omega_i) = \tan \alpha_i$ είναι μια σταθερά, που καθορίζεται από τη γραμμική κυματική διάδοση, όπου α_i είναι η γωνία μεταξύ $E_T(\omega_i)$ και $E_{T,\perp}(\omega_i)$. Με την προσέγγιση του άπειρου επίπεδου κύματος και την προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, η (6.1) γίνεται

$$\frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}_{3T}(z) = \frac{i2\pi\omega_3^2}{k_{3T,z}c^2 \cos^2 \alpha_3} \hat{e}_{3T} \cdot \mathcal{P}_3^{(2)} e^{i\Delta k z} \quad (6.14)$$

όπου \hat{e}_{3T} είναι η μονάδα διανύσματος κατά μήκος του \hat{e}_{3T} . Η λύση της (6.14) είναι

$$\mathcal{E}_{3T}(z) = \mathcal{E}_{3T}(0) + \frac{2\pi\omega_3^2}{k_{3T,z}\Delta kc^2\cos^2\alpha_3} \hat{e}_{3T} \cdot \mathcal{P}_3^{(2)}(e^{i\Delta kz} - 1) \quad (6.15)$$

Εντός των ορίων της προσέγγισής μας, η (6.15) είναι σε συμφωνία με την (6.8) για το ιστροπικό μέσο.

6.4 Λύση με συνοριακή ανάκλαση

Σε μια πιο γενική λύση της (6.2) και (6.5), η $\mathbf{E}_T(\omega_3)$, μπορεί να ξαναγραφτεί με τη μορφή

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_T(\omega_3) &= \mathcal{E}_{3T}(z) e^{i(k_{3T}r - \omega_3 t)} \\ \mathcal{E}_{3T,\perp} &= \mathcal{E}_{3T,\perp}(0) + \frac{4\pi\omega_3^2}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} \mathcal{P}_{3\perp}^{(2)}(e^{i\Delta kz} - 1) \\ \mathcal{E}_{3T,\parallel} &= \mathcal{E}_{3T,\parallel}(0) - \frac{4\pi\mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)}}{\varepsilon_{\parallel}(\omega_3)}(e^{i\Delta kz} - 1) \end{aligned} \quad (6.16)$$

με $\mathcal{E}_{3T,\perp}(0) = \mathbf{A} + 4\pi\omega_3^2\mathcal{P}_{3\perp}^{(2)}/c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)$ και $\mathcal{E}_{3T,\parallel}(0) = -4\pi\mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)}/\varepsilon_{\parallel}(\omega_3)$.

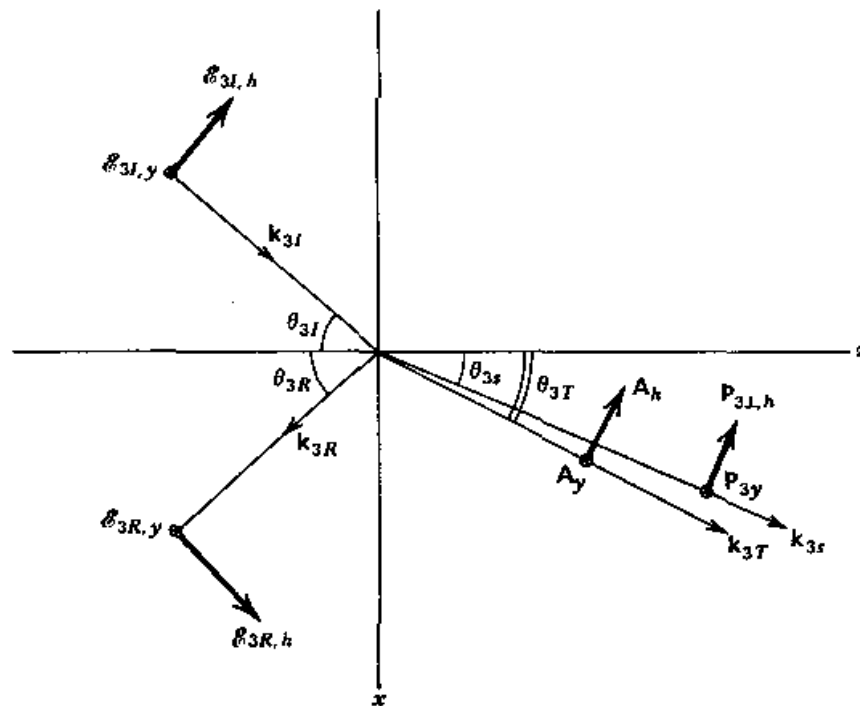
Παρατηρούμε τότε, αμέσως, ότι αν χρησιμοποιηθεί η προσέγγιση

$$\begin{aligned} k_{3s}^2 - k_{3T}^2 &= (k_{3s,z} + k_{3T,z})\Delta k \\ &\approx 2k_{3T,z}\Delta k \end{aligned} \quad (6.17)$$

τότε η (6.16) απλοποιείται στη μορφή λύσης της (6.8). Η παραπάνω προσέγγιση λειτουργεί άριστα όταν το Δk είναι μικρό ή ισοδύναμα, όταν η έξοδος στην αντίθετη κατεύθυνση με $\Delta k \sim k_{3T}$ μπορεί να αγνοηθεί. Όπως φάνηκε στην Ενότητα 3.3, το τελευταίο, είναι αυτό που ακριβώς η προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους εννοεί.

Για την εύρεση του $\mathcal{E}_{3T}(0)$, όμως, η πιο σωστή λύση θα πρέπει να συμπεριλαμβάνει την επίδραση μιας μη γραμμικής πόλωσης στη συνοριακή ανάκλαση του κύματος αθροίσματος συχνότητας. Θέτοντας ως απαραίτητη προϋπόθεση ότι οι εφαπτομενικές συνιστώσες των ηλεκτρικών και μαγνητικών πεδίων θα είναι συναρμοσμένες στο σύνορο $z = 0$ (δες Σχ. 6.4), βρίσκουμε⁴

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}_{3T,y}(0) &= A_y + \frac{4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3y}^{(2)}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} \\
&= \mathcal{E}_{3I,y} + \mathcal{E}_{3R,y} \\
k_{3T} \cos \theta_{3T} A_y + k_{3s} \cos \theta_{3s} \frac{4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3y}^{(2)}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} &= k_{3R} \cos \theta_{3R} (\mathcal{E}_{3I,y} - \mathcal{E}_{3R,y}) \\
\mathcal{E}_{3T,x}(0) &= A_h \cos \theta_{3T} + \frac{4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3\perp,h}^{(2)} \cos \theta_{3s}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} \\
&= \frac{4\pi \mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)} \sin \theta_{3s}}{\epsilon_{\parallel}(\omega_3)} \\
&= (\mathcal{E}_{3I,h} - \mathcal{E}_{3R,h}) \cos \theta_{3R} \\
k_{3T} A_h + k_{3s} \frac{4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3\perp,h}^{(2)}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} &= k_{3R} (\mathcal{E}_{3I,h} + \mathcal{E}_{3R,h})
\end{aligned} \tag{6.18}$$



Σχ. 6.4 Σχηματικό διάγραμμα που περιγράφει τα εισερχόμενα και ανακλώμενα κύματα αθροίσματος συχνότητας στο γραμμικό μέσο και τα εκπεμπόμενα κύματα αθροίσματος συχνότητας στο μη γραμμικό μέσο. Η συνοριακή επιφάνεια μεταξύ των δυο μέσων είναι στο $z = 0$.

όπου ο κάτω δείκτης h δηλώνει τις συνιστώσες στην επιφάνεια πρόσπτωσης. Αυτή η ομάδα των τεσσάρων εξισώσεων, μπορεί τότε να χρησιμοποιηθεί για να βρεθούν οι τέσσερις άγνωστοι συντελεστές A_y , A_h , $\mathcal{E}_{3R,y}$ και $\mathcal{E}_{3R,h}$. Το αποτέλεσμα είναι

$$\begin{aligned}
 A_y &= \frac{1}{k_{3T} \cos \theta_{3T} + k_{3R} \cos \theta_{3R}} \\
 &\quad \times \left[2k_{3R} \cos \theta_{3R} \mathcal{E}_{3I,y} - \frac{(k_{3s} \cos \theta_{3s} + k_{3R} \cos \theta_{3R}) 4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3y}^{(2)}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} \right], \\
 A_h &= \frac{1}{k_{3R} \cos \theta_{3T} + k_{3T} \cos \theta_{3R}} \\
 &\quad \times \left[2k_{3R} \cos \theta_{3R} \mathcal{E}_{3I,h} + \frac{4\pi k_{3R} \mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)} \sin \theta_{3s}}{\epsilon_{\parallel}(\omega_3)} - \frac{(k_{3R} \cos \theta_{3s} + k_{3s} \cos \theta_{3R}) 4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3\perp,h}^{(2)}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} \right], \\
 \mathcal{E}_{3R,y} &= \frac{1}{k_{3T} \cos \theta_{3T} + k_{3R} \cos \theta_{3R}} \\
 &\quad \times \left[(k_{3R} \cos \theta_{3R} - k_{3T} \cos \theta_{3T}) \mathcal{E}_{3I,y} - \frac{(k_{3s} \cos \theta_{3s} - k_{3T} \cos \theta_{3T}) 4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3y}^{(2)}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} \right], \\
 \mathcal{E}_{3R,h} &= \frac{1}{k_{3R} \cos \theta_{3T} + k_{3T} \cos \theta_{3R}} \\
 &\quad \times \left[(k_{3T} \cos \theta_{3R} - k_{3R} \cos \theta_{3T}) \mathcal{E}_{3I,h} - \frac{(k_{3T} \cos \theta_{3s} - k_{3s} \cos \theta_{3T}) 4\pi\omega_3^2 \mathcal{P}_{3\perp,h}^{(2)}}{c^2(k_{3s}^2 - k_{3T}^2)} + \frac{4\pi k_{3T} \mathcal{P}_{3\parallel}^{(2)} \sin \theta_{3s}}{\epsilon_{\parallel}(\omega_3)} \right].
 \end{aligned} \tag{6.19}$$

και

Με τα A και \mathcal{E}_{3R} γνωστά, η λύση στην (6.2) και (6.5) είναι τότε ολοκληρωμένη. Αυτό δείχνει ότι ακόμα και στην απουσία εισόδου, το $\mathcal{E}_{3I} = 0$, και τα \mathcal{E}_{3R} και $\mathcal{E}_{3T}(0)$ δεν μηδενίζουν, εξαιτίας της επίδρασης της μη γραμμικής πόλωσης στην ανάκλαση και

διάθλαση. Στην πραγματικότητα, το ανακλώμενο κύμα αθροίσματος συχνότητας είναι εύκολα ανιχνεύσιμο⁵. Μπορεί ναδειχθεί ότι $\mathcal{E}_{3T}(0) = 0$ και ότι το \mathcal{E}_{3R} είναι kz φορές μικρότερο από το $\mathcal{E}_{3T}(z)$ στην προσαρμογή φάσης. Επομένως, το ανακλώμενο κύμα αθροίσματος συχνότητας παράγεται ουσιαστικά από τη μη γραμμική πόλωση σε ένα στρώμα επιφάνειας, τάξεως $\lambda/2\pi$ πάχους. Με κάποια τροποποίηση, η λύση εδώ για ένα κυβικό μη γραμμικό μέσο μπορεί να επεκταθεί και σε ανισοτροπικά μέσα.

6.5 Μελέτη στην προσαρμογή φάσης

Όπως φαίνεται στο Σχ. 6.3, η γένεση αθροίσματος συχνοτήτων μέσου μεγάλου όγκου είναι ισχυρή μόνο όταν $|\Delta kz| \ll 1$. Η κακή προσαρμογή φάσης Δk , ορίζει ένα μήκος συνοχής $l_{coh} = 1/\Delta k$. Εάν το μήκος του μέσου l είναι μικρότερο από το l_{coh} , τότε η έξοδος αθροίσματος συχνοτήτων αυξάνει λίγο έως πολύ, τετραγωνικά με το l . Εάν $l > l_{coh}$, η έξοδος τείνει να υφίσταται κορεσμό και ίσως ακόμη και να μειώνεται καθώς το l αυξάνει. Για την ενεργό γένεση αθροίσματος συχνοτήτων, πρέπει επομένως να έχουμε ένα επαρκώς μεγάλο l_{coh} , τάξεως τουλάχιστον μερικών χιλιοστών στην πράξη.

Σε πραγματικά πειράματα, για να αποφευχθεί η ενεργός αλληλεπίδραση μήκους δέσμης λόγω πεπερασμένων διατομών, απαιτείται συγγραμμική προσαρμογή φάσης:

$$\Delta k = k_{1T} + k_{2T} - k_{3T} = 0. \quad (6.20)$$

Σε σχέση με τους δείκτες διάθλασης $n(\omega_i)$, η (6.20) μπορεί να γραφτεί ως $\omega_1[n(\omega_3) - n(\omega_1)] + \omega_2[n(\omega_3) - n(\omega_2)] = 0$. (6.21)

Είναι σαφές, ότι, για ισοτροπικά ή κυβικά υλικά με κανονική διασπορά $n(\omega_3) > \{n(\omega_1), n(\omega_2)\}$, αυτή η σχέση δε μπορεί ποτέ να ικανοποιηθεί. Επομένως, η συγγραμμική προσαρμογή φάσης μπορεί να επιτευχθεί μόνο με: (1) ανώμαλη διασπορά ή (2) διπλοθλαστικούς κρυστάλλους². Στην τελευταία περίπτωση, το μέσο πρέπει να είναι ένας αρνητικά μονοαξονικός κρύσταλλος με $n_e(\omega_i) < n_o(\omega_i)$. Επιλέγοντας το κύμα στην ω_3 να είναι ασύνηθες, είναι πιθανό να βρεθούν τα $[n_e(\omega_3) - n(\omega_1)]$ και $[n_e(\omega_3) - n(\omega_2)]$ με αντίθετα πρόσημα, έτσι ώστε να ικανοποιείται η (6.21). Δύο τύποι συγγραμμικής προσαρμογής φάσης χρησιμοποιούνται. Στον Τύπο I, και το $n(\omega_1)$ και το $n(\omega_2)$ είναι συνήθη ή ασυνήθη, ενώ στον Τύπο II, ή το $n(\omega_1)$ ή το $n(\omega_2)$ είναι σύνηθες.

6.6 Φαινόμενο απορρόφησης

Η απορρόφηση είναι επιζήμια στη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων, αφού περιορίζει την ενεργό αλληλεπίδραση μήκους, καταλήγοντας χονδροειδώς, σε εξασθένιση του μήκους.

Επίσης, διευρύνει την κορυφή προσαρμογής φάσης και μειώνει την τιμή κορυφής. Αυτό μπορεί να φανεί, συμπεριλαμβάνοντας την απορρόφηση στην παραγωγή, της Ενότητας 6.4. Με την απορρόφηση, τα κυματοδιανύσματα γίνονται σύνθετα: $k = k' + i\beta$, όπου β είναι ο συντελεστής εξασθένησης. Η εξίσωση (6.14) αλλάζει και γίνεται

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \beta_{3T}\right)\mathcal{E}_{3T}(z) = \frac{i2\pi\omega_3^2}{c^2 k'_{3T,z} \cos^2 \alpha_3} \hat{e}_{3T} \cdot \mathcal{P}_3^{(2)} e^{i\Delta k'z - (\beta_{1T} + \beta_{2T})z} \quad (6.22)$$

με $\mathbf{E}_T(\omega_3) = \mathcal{E}_{3T}(z) e^{i(k'_{3T}z - \omega_3 t)}$. Η τελική λύση είναι

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{3T}(z) = & \mathcal{E}_{3T}(0) e^{-\beta_{3T}z} + \frac{i2\pi\omega_3^2 \hat{e}_{3T} \cdot \mathcal{P}_3^{(2)}}{c^2 k'_{3T,z} \cos^2 \alpha_3 [i\Delta k' - (\beta_{1T} + \beta_{2T} - \beta_{3T})]} \\ & \times \left[e^{i\Delta k'z - (\beta_{1T} + \beta_{2T})z} - e^{-\beta_{3T}z} \right]. \end{aligned} \quad (6.23)$$

Εάν η απορρόφηση είναι σημαντική είτε στις συχνότητες αντλίας ω_1 και ω_2 είτε στη συχνότητα εξόδου ω_3 , έτσι ώστε $|e^{i\Delta k'z - (\beta_{1T} + \beta_{2T})z} - e^{-\beta_{3T}z}|^2 \simeq 1$, τότε, η ένταση εξόδου μπορεί να προσεγγιστεί από την

$$I_3(z) = \frac{2\pi\omega_3^2 |\hat{e}_3 \cdot \mathcal{P}_3^{(2)}|^2}{c\sqrt{\epsilon(\omega_3)} \cos^2 \theta_{3T} \cos^4 \alpha_3 [(\Delta k')^2 + \beta^2]} \quad (6.24)$$

όπου $\beta = \beta_{1T} + \beta_{2T}$ με $\beta_{3T} = 0$ ή $\beta = \beta_{3T}$ με $\beta_{1T} + \beta_{2T} = 0$. Η καμπύλη προσαρμογής φάσης I_3 σε αντίθεση με τη Δk , παίρνει τώρα Λορεντζιανή μορφή με ημι-πλάτος β . Συγκρινόμενη με την περίπτωση της μηδενικής απορρόφησης, η τιμή κορυφής, εδώ, είναι ανεξάρτητη από το z και μειώνεται από έναν παράγοντα $1/\beta^2 z^2$. Αυτό δείχνει, ότι με την απορρόφηση, η ενεργός αλληλεπίδραση μήκους μειώνεται σε $1/\beta$, που είναι ακριβώς η εξασθένηση μήκους. Όταν και τα δυο $(\beta_{1T} + \beta_{2T})$ και β_{3T} είναι σημαντικά, η ένταση εξόδου μπορεί ακόμα και να μειωθεί εκθετικά με z .

6.7 Γένεση αθροίσματος συχνοτήτων με υψηλή απόδοση μετατροπής

Είδαμε σε προηγούμενες ενότητες, ότι στην ιδανική προσαρμογή φάσης, η ισχύς εξόδου της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων σε ένα μη απορροφητικό ογκώδες μέσο είναι ανάλογη προς το l^2 , το τετράγωνο του μήκους του μέσου. Έπειτα, καθώς το $l \rightarrow \infty$, η ισχύς εξόδου θα αυξάνει χωρίς όριο, παραβιάζοντας τη διατήρηση της ενέργειας. Αυτό, είναι η συνέπεια της υπόθεσης της αμελητέας ελάττωσης ισχύος αντλίας, που δεν ισχύει

όταν η έξοδος γίνεται σημαντική σε σχέση με την αντλία. Οι συζευγμένες εξισώσεις στην (3.4) ή (6.1) πρέπει τώρα να λυθούν μαζί για να βρεθεί μια ολοκληρωμένη λύση.

Για τη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων με υψηλή απόδοση μετατροπής, θα πρέπει να υπάρχουν συνήθως οι ακόλουθες συνθήκες: (1) τα συζευγμένα κύματα έχουν συγγραμμική προσαρμογή φάσης, (2) το μέσο είναι σχεδόν μη απωλεστικό και (3) ισχύει η προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους. Οι συζευγμένες εξισώσεις μπορούν επομένως να γραφτούν ως ακολούθως (παρόμοια με την (6.14))

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathcal{E}_{1T}}{\partial z} &= \frac{i\omega_1^2}{k_{1T,z}\cos^2\alpha_1} K_1 \mathcal{E}_{2T}^* \mathcal{E}_{3T}, \\ \frac{\partial \mathcal{E}_{2T}}{\partial z} &= \frac{i\omega_2^2}{k_{2T,z}\cos^2\alpha_2} K_2 \mathcal{E}_{1T}^* \mathcal{E}_{3T}, & \frac{\partial \mathcal{E}_{3T}^*}{\partial z} &= \frac{-i\omega_3^2}{k_{3T,z}\cos^2\alpha_3} K_3 \mathcal{E}_{1T}^* \mathcal{E}_{2T}^* \end{aligned} \quad (6.25) \quad \text{και}$$

$$K_1 = \frac{2\pi}{c^2} \hat{e}_{1T} \cdot \chi^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3) : \hat{e}_{2T} \hat{e}_{3T},$$

$$K_2 = \frac{2\pi}{c^2} \hat{e}_{2T} \cdot \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \hat{e}_{3T} \hat{e}_{1T},$$

με

και

$$K_3 = \frac{2\pi}{c^2} \hat{e}_{3T} \cdot \chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)^* : \hat{e}_{1T} \hat{e}_{2T}.$$

Από τη συμμετρία μετάθεσης του $\chi^{(2)}$ σε ένα μη απωλεστικό μέσο, όπως αναλύθηκε στην Ενότητα 2.5, βρίσκουμε $K_1 = K_2 = K_3 \equiv K$. Η εξίσωση (6.25) μπορεί να λυθεί επακριβώς³. Πρώτα, μπορούμε εύκολα να δείξουμε από την (6.25) ότι η ροή ολικής ισχύς W στο μέσο,

$$W = \frac{c^2}{2\pi} \left[\frac{k_{1T,z}\cos^2\alpha_1 |\mathcal{E}_{1T}|^2}{\omega_1} + \frac{k_{2T,z}\cos^2\alpha_2 |\mathcal{E}_{2T}|^2}{\omega_2} + \frac{k_{3T,z}\cos^2\alpha_3 |\mathcal{E}_{3T}|^2}{\omega_3} \right] \quad (6.26), \quad \text{είναι μια}$$

σταθερά ανεξάρτητη από το z . Αυτό είναι επίσης γνωστό ως η σχέση Manley-Rowe⁶. Έπειτα, ο αριθμός πρωτονίων που δημιουργείται στην ω_3 πρέπει να ισούται με τους αριθμούς πρωτονίων που μηδενίζουν στην ω_1 και ω_2 :

$$\begin{aligned} \sqrt{\epsilon_1} \frac{|\mathcal{E}_{1T}(0)|^2 - |\mathcal{E}_{1T}(z)|^2}{\hbar\omega_1} &= \sqrt{\epsilon_2} \frac{|\mathcal{E}_{2T}(0)|^2 - |\mathcal{E}_{2T}(z)|^2}{\hbar\omega_2} \\ &= \sqrt{\epsilon_3} \frac{|\mathcal{E}_{3T}(z)|^2 - |\mathcal{E}_{3T}(0)|^2}{\hbar\omega_3} \end{aligned} \quad (6.27)$$

Λύνοντας την (6.25), ορίζουμε

$$\begin{aligned}
 u_1 e^{i\phi_1} &= \left(\frac{c^2 k_{1T,z} \cos^2 \alpha_1}{2\pi \omega_1^2 W} \right)^{1/2} \mathcal{E}_{1T}(z), \\
 u_2 e^{i\phi_2} &= \left(\frac{c^2 k_{2T,z} \cos^2 \alpha_2}{2\pi \omega_2^2 W} \right)^{1/2} \mathcal{E}_{2T}(z), \\
 u_3 e^{i\phi_3} &= \left(\frac{c^2 k_{3T,z} \cos^2 \alpha_3}{2\pi \omega_3^2 W} \right)^{1/2} \mathcal{E}_{3T}(z), \\
 \theta(z) &= \phi_3(z) - \phi_1(z) - \phi_2(z), \\
 \zeta &= K \left[\frac{2\pi W \omega_1^2 \omega_2^2 \omega_3^2}{c^2 k_{1T,z} k_{2T,z} k_{3T,z} \cos^2 \alpha_1 \cos^2 \alpha_2 \cos^2 \alpha_3} \right]^{1/2} z, \\
 m_1 &= u_2^2(0) + u_3^2(0) = u_2^2 + u_3^2, \\
 m_2 &= u_3^2(0) + u_1^2(0) = u_3^2 + u_1^2,
 \end{aligned} \tag{6.28}$$

και $m_3 = u_1^2(0) - u_2^2(0) = u_1^2 - u_2^2$. Η εξίσωση (6.25) γίνεται

$$\begin{aligned}
 \frac{du_1}{d\zeta} &= -u_2 u_3 \sin \theta, \\
 \frac{du_2}{d\zeta} &= -u_3 u_1 \sin \theta, \\
 \frac{du_3}{d\zeta} &= u_1 u_2 \sin \theta, \quad (6.29) \text{ και } \frac{d\theta}{d\zeta} = K \cot \theta \frac{d}{d\zeta} \ln(u_1 u_2 u_3)
 \end{aligned}$$

Η τελευταία εξίσωση στην (6.29) μπορεί να ολοκληρωθεί και να αποφέρει $u_1 u_2 u_3 \cos \theta = \Gamma$, όπου Γ είναι μια σταθερά ανεξάρτητη από το z . Τότε, εξαλείφοντας το $\sin \theta$ στην (6.29), βρίσκουμε

$$\frac{du_1^2}{d\zeta} = \frac{du_2^2}{d\zeta} = -\frac{du_3^2}{d\zeta} = \pm 2 [u_1^2 u_2^2 u_3^2 - \Gamma^2]^{1/2} \tag{6.30}$$

Η επιλογή του προσήμου '+' ή '-' στην (6.30) εξαρτάται από την αρχική τιμή του θ . Η γενική λύση της (6.30) δίνεται στην βιβλιογραφική αναφορά 3.

Λαμβάνουμε υπόψη εδώ, την περίπτωση της απαντώμενης συχνότητας, όπου η συνοριακή συνθήκη είναι $\mathcal{E}_{3T}(0) \approx 0$ ή $u_3(0) = 0$, που οδηγεί στο $\Gamma = 0$ και $\theta = \pi/2$. Η εξίσωση (6.30) γίνεται

$$\frac{du_3^2}{d\zeta} = 2 [u_3^2 (m_1 - u_3^2) (m_2 - u_3^2)]^{1/2} \tag{6.31}.$$

Η λύση παίρνει τη μορφή ελλειπτικής ολοκλήρωσης Jacobi

$$\begin{aligned} \xi &= \frac{1}{u_1(0)} \left[\operatorname{sn}^{-1} \left(\frac{u_3}{u_2(0)}, \gamma \right) - \operatorname{sn}^{-1} \left(\frac{u_3(0)}{u_2(0)}, \gamma \right) \right] \\ &= \frac{1}{u_1(0)} \int_{u_3(0)/u_2(0)}^{u_3/u_2(0)} \frac{dy}{[(1-y^2)(1-\gamma^2 y^2)]^{1/2}} \end{aligned} \quad (6.32),$$

υποθέτοντας ότι $m_2 = u_1^2(0) > m_1 = u_2^2(0)$ και $\gamma = u_2(0)/u_1(0)$. Από την (6.32) και (6.28), βρίσκουμε τις εντάσεις των τριών κυμάτων

$$\begin{aligned} u_3^2(\xi) &= u_2^2(0) \operatorname{sn}^2[u_1(0)\xi, \gamma], \\ u_2^2(\xi) &= u_2^2(0) - u_2^2(0) \operatorname{sn}^2[u_1(0)\xi, \gamma] \quad (6.33) \quad \text{και} \quad u_1^2(\xi) = u_1^2(0) - u_2^2(0) \operatorname{sn}^2[u_1(0)\xi, \gamma]. \end{aligned}$$

Η ελλειπτική συνάρτηση $\operatorname{sn}^2[u_1(0)\xi, \gamma]$ είναι περιοδική στη ξ με περίοδο

$$L = \frac{2}{u_1(0)} \int_0^1 \frac{dy}{[(1-y^2)(1-\gamma^2 y^2)]^{1/2}} \quad (6.34).$$

Από φυσικής άποψης, αυτό δείχνει ότι καθώς η αλληλεπίδραση μήκους αυξάνει, η ενέργεια μεταφέρεται εμπρός-πίσω, μεταξύ του κύματος στην ω_2 και των κυμάτων στις ω_1 και ω_2 , με περίοδο L . Ενώ η διαδικασία αντλεί πρώτα ενέργεια από το πεδίο αθροίσματος συχνοτήτων, αντιστρέφει τη ροή ενέργειας, αφότου τα πρωτόνια σε ένα από κύματα άντλησης, μειωθούν.

Μια απλή περίπτωση που παρουσιάζει ενδιαφέρον από φυσικής άποψης, είναι η διαδικασία μετατροπής upconversion που χρησιμοποιήθηκε, για παράδειγμα, για τη μετατροπή ενός υπέρυθρου ειδώλου σε ορατό. Αυτό συμβαίνει συχνά με $u_1(0) \gg u_2(0)$ και $u_3(0) = 0$. Αφού $\gamma \ll 1$, η ελλειπτική ολοκλήρωση της (6.32) μικραίνει σε απλούστερη

$$\begin{aligned} u_3^2(\xi) &= u_2^2(0) \sin^2[u_1(0)\xi], \\ \text{μορφή} \quad \text{και} \quad \text{βρίσκουμε} \quad u_2^2(\xi) &= u_2^2(0) - u_2^2(0) \sin^2[u_1(0)\xi] \end{aligned} \quad (6.35) \quad \text{και}$$

$u_1^2(\xi) = u_1^2(0) - u_2^2(0) \sin^2[u_1(0)\xi] \approx u_1^2(0)$. Έχουν σχεδιαστεί στο Σχ. 6.5, το οποίο δείχνει με σαφήνεια την περιοδική διακύμανση της ροής ενέργειας μπρος-πίσω, μεταξύ των κυμάτων στις ω_2 και ω_3 . Σε αυτήν την περίπτωση, η μείωση του πεδίου αντλίας στην ω_1 είναι αμελητέα. Επομένως, η λύση στην (6.35) μπορεί επίσης να εξαχθεί από την (6.25), θέτοντας την \mathcal{E}_{1T} ως σταθερά.

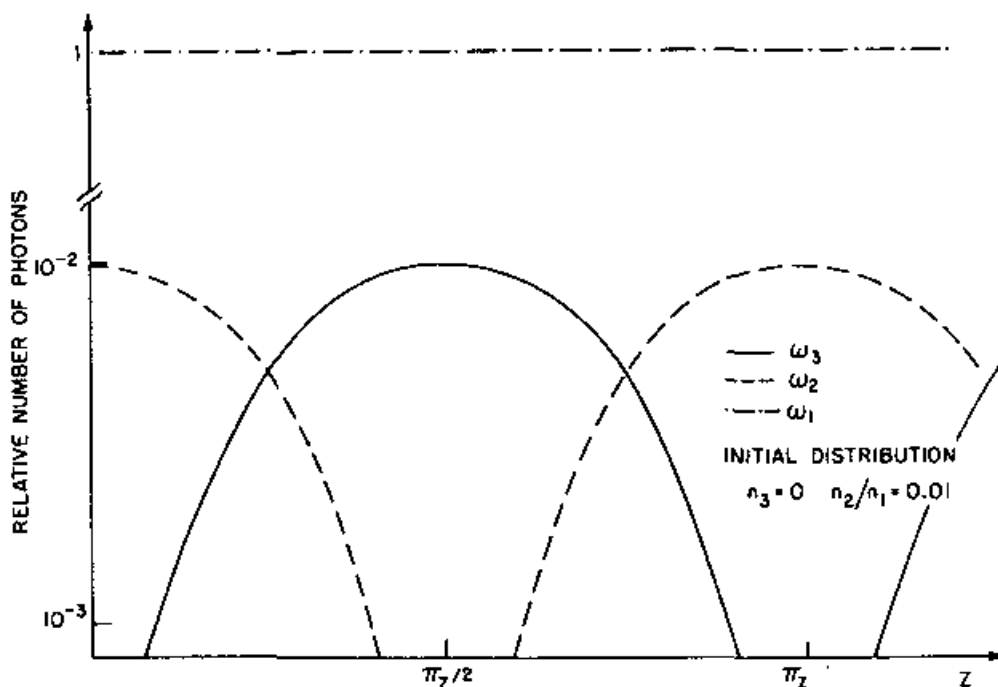
Μια άλλη περίπτωση που παρουσιάζει ενδιαφέρον, είναι όταν $u_1(0) = u_2(0)$, έτσι ώστε $\gamma = 1$. Η λύση γίνεται

$$u_3^2(\xi) = u_1^2(0)\tanh^2[u_1(0)\xi],$$

$$u_1^2(\xi) = u_2^2(\xi) = u_1^2(0)\operatorname{sech}^2[u_1(0)\xi] \quad (6.36).$$

Αυτή δείχνει ότι η περίοδος της αλληλεπίδρασης L είναι άπειρη. Καθώς το $\zeta \rightarrow \infty$, έχουμε $u^3(\zeta) \rightarrow u_1(0)$ και $u_1(\zeta) = u_2(\zeta) \rightarrow 0$. Αυτό βρίσκει εφαρμογή στην περίπτωση της γένεσης της δεύτερης αρμονικής, την οποία θα συζητήσουμε με περισσότερη λεπτομέρεια στο Κεφ. 7.

Η προηγούμενη ανάλυση βασίζεται στην θεώρηση των άπειρων επίπεδων κυμάτων. Στην πραγματικότητα, οι διατομές της δέσμης είναι πεπερασμένες με μεταβολή έντασης πάνω από την εγκάρσια διατομή. Κατά αναλογία, τα αποτελέσματα εδώ πρέπει να τροποποιηθούν, χρησιμοποιώντας για παράδειγμα, την προσέγγιση δέσμης. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα, να είναι αδύνατη η πλήρης μείωση των πρωτονίων σε κάθε δέσμη. Οι εστιασμένες ακτίνες χρησιμοποιούνται συχνά σε πραγματικά πειράματα για να αυξηθεί η ένταση του λέιζερ και τότε, η θεωρητική αντιμετώπιση του προβλήματος γίνεται πιο πολύπλοκη.



Σχ. 6.5 Σχετικοί αριθμοί πρωτονίων, ως συνάρτηση του z , στα τρία συζευγμένα κύματα με ιδανική προσαρμογή φάσης ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, $k_3 = k_1 + k_2$) σε μια διαδικασία μετατροπής *up-conversion*. Η αρχική κατανομή των πρωτονίων στα τρία κύματα είναι $n_1 = 100 n_2$ και $n_3 = 0$. (Βιβλ. Αναφ. 3).

Οι Boyd & Kleinman⁷ έχουν εργαστεί στην περίπτωση αμελητέας μείωσης. Εδώ, απλώς, αναφέρουμε τη δουλειά τους πάνω σε αυτό και μεταφέρουμε τη συζήτηση για τις εστιασμένες ακτίνες στο επόμενο κεφάλαιο.

6.8 Ένα πρακτικό παράδειγμα

Στις περισσότερες εφαρμογές, είναι επιθυμητή η ενεργός γένεση αθροίσματος συχνοτήτων. Επομένως, πρέπει να ακολουθηθούν μια σειρά από κανόνες:

1. Αρχικά, επιλέγεται ένας μη γραμμικός οπτικός κρύσταλλος με μικρή απορρόφηση στις ω_1 , ω_2 και ω_3 . Θα πρέπει να έχει μια επαρκή μεγάλη μη γραμμική επιδεκτικότητα $\chi^{(2)}$ και να επιτρέπει τη συγγραμμική προσαρμογή φάσης.
2. Οι κατευθύνσεις της προσαρμογής φάσης στον κρύσταλλο, σε γενικές γραμμές σε σχήμα κώνου, καθορίζονται από τον γνωστό τανυστικό δείκτη διάθλασης του κρυστάλλου.
3. Επιλέγεται η χαρακτηριστική κατεύθυνση προσαρμογή φάσης με το κατάλληλο σετ πολώσεων για τα τρία κύματα, ώστε να βελτιστοποιηθεί η ενεργός μη γραμμική επιδεκτικότητα $\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \hat{e}_3 \cdot \chi^{(2)} : \hat{e}_1 \hat{e}_2$.
4. Τέλος, επιλέγεται το μήκος του κρυστάλλου ώστε να παραχθεί η επιθυμητή απόδοση μετατροπής.

Θεωρούμε εδώ ένα πρακτικό παράδειγμα SFG σε έναν κρύσταλλο KDP με ακτίνες αντλίας στο $\lambda_1 = 2863 \text{ \AA}$. Οι συνηθισμένοι δείκτες διάθλασης του KDP σε θερμοκρασία δωματίου είναι $n_o(\omega_1) = 1,5283$, $n_o(\omega_2) = 1,5231$, και $n_o(\omega_3) = 1,5757$. Για μια δέσμη που διαδίδεται σε κατεύθυνση με γωνία \textcircled{H} μακριά από τον οπτικό άξονα, ο ασυνήθης δείκτης διάθλασης δίνεται από την σχέση

$$n_e(\omega_i, \textcircled{H}) = \frac{n_{em}(\omega_i)n_o(\omega_i)}{\left[n_o^2(\omega_i)\sin^2\textcircled{H} + n_{em}^2(\omega_i)\cos^2\textcircled{H} \right]^{1/2}} \quad \text{με } n_{em}(\omega_1) = 1,4822, n_{em}(\omega_2) = 1,4783 \text{ και } n_{em}(\omega_3) = 1,5231.$$

Για την προσαρμογή φάσης Τύπου I, έχουμε από την (6.21)

$$n_e(\omega_3, \textcircled{H}) = \frac{\lambda_3}{\lambda_1} n_o(\omega_1) + \frac{\lambda_3}{\lambda_2} n_o(\omega_2) \\ = 1.5258$$

από την οποία μπορούμε να βρούμε

$$\textcircled{H} = \sin^{-1} \left[\frac{n_{em}(\omega_3)}{n_e(\omega_3)} \sqrt{\frac{n_o^2(\omega_3) - n_e^2(\omega_3)}{n_o^2(\omega_3) - n_{em}^2(\omega_3)}} \right] \\ \approx 76.6^\circ.$$

Έστω ότι τα κύματα διαδίδονται σε ένα επίπεδο σε γωνία Φ από τον X-άξονα του κρυστάλλου. Στις συντεταγμένες X-Y-Z, τα τρία διανύσματα πόλωσης είναι $\hat{e}_1 = \hat{e}_2 =$

$(\sin\Phi, -\cos\Phi, 0)$ και $\hat{e}_3 \cong \left(-\cos\textcircled{H} \cos\Phi, -\cos\textcircled{H} \sin\Phi, \sin\textcircled{H} \right)$. Ο κρύσταλλος

KDP έχει ομάδα συμμετρίας σημείου $\bar{4} 2-m$. Τα μη μηδενικά του, $\chi^{(2)}$ στοιχεία είναι

$$\chi_{XYZ}^{(2)} = \chi_{YXZ}^{(2)} \cong \chi_{XZY}^{(2)} = \chi_{YZX}^{(2)} = 2.6 \times 10^{-9} \text{ esu} \quad \text{και} \quad \chi_{ZYX}^{(2)} = \chi_{ZXY}^{(2)} = 2.82 \times 10^{-9} \text{ esu}.$$

Η ενεργός μη γραμμική επιδεκτικότητα* για την προσαρμογή φάσης Τύπου I είναι

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \hat{e}_3 \cdot \chi^{(2)} : \hat{e}_1 \hat{e}_2 = -\chi_{ZXY}^{(2)} \sin\textcircled{H} \sin 2\Phi \\ = -2.74 \times 10^{-9} \sin 2\Phi \text{ esu}.$$

Για να βελτιστοποιηθεί το $|\chi_{\text{eff}}^{(2)}|$, πρέπει να επιλέξουμε $\Phi = 45^\circ$. Τελικά, στο όριο της αμελητέας μείωσης ισχύος αντλίας, η ισχύς εξόδου δίνεται, ακολούθως κατά την (6.12)

$$\mathbf{P}_3 = \frac{8\pi^3 \omega_3^2}{c^3 \sqrt{\epsilon(\omega_1) \epsilon(\omega_2) \epsilon(\omega_3)}} |\chi_{\text{eff}}^{(2)}|^2 z^2 \left(\frac{\mathbf{P}_1 \mathbf{P}_2}{A} \right) \\ = 4 \times 10^{-4} z^2 \left(\frac{\mathbf{P}_1 \mathbf{P}_2}{A} \right) \text{ MW},$$

, όπου A είναι η διατομή της δέσμης σε τετραγωνικά εκατοστά, z σε εκατοστά και έχουμε χρησιμοποιήσει την προσέγγιση $P_i = I_i A$ σε μεγαβάτ.

* Οι εκφράσεις $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$ για την προσαρμογή φάσης Τύπου I και II για 13 τάξεις μονοαξονικών κρυστάλλων μπορούν να βρεθούν από την βιβλιογραφική αναφορά 8.

6.9 Περιορισμός παραγόντων για υψηλή απόδοση μετατροπής

Ως ένα μη γραμμικό φαινόμενο, η ισχύς εξόδου της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων αναμένεται να αυξηθεί με την ένταση αντλίας, αν η ισχύς αντλίας διατηρηθεί ίδια. Αυτό φαίνεται να δείχνει, ότι, πρέπει να χρησιμοποιηθεί μια πιο έντονη εστίαση των ακτινών, για να επιτευχθεί υψηλότερη απόδοση μετατροπής, με την προϋπόθεση ότι η διαμήκης εστιακή διάσταση (η συνεστιακή παράμετρος) είναι μεγαλύτερη από την ενεργό αλληλεπίδραση μήκους. Υπάρχει, όμως, ένα όριο στην εστίαση που μπορεί κάποιος να χρησιμοποιήσει. Αρχικά, πολύ υψηλή ένταση λέιζερ οδηγεί σε οπτική βλάβη στον κρύσταλλο. Έπειτα, η ελαττωμένη διατομή δέσμης, εξαιτίας της εστίασης, ίσως μειώσει την ενεργό αλληλεπίδραση μήκους, ακόμα και για συγγραμμικά διαδιδόμενες δέσμες. Αυτό συμβαίνει σε έναν ανισοτροπικό κρύσταλλο. Για ένα ασύνηθες κύμα, οι διευθύνσεις διάδοσης του κύματος και η ενέργεια διάδοσης της ακτίνας είναι διαφορετικές. Επομένως, παρόλο που τα κύματα διαδίδονται συγγραμμικά, δε συμβαίνει το ίδιο και για τις ακτίνες. Η «αποχώρηση» των ακτινών μειώνει δραστικά την αλληλεπίδραση του μήκους.

Το φαινόμενο walk-off μπορεί φυσικά να ελαχιστοποιηθεί, εάν οι δέσμες διαδίδονται σε διεύθυνση κατά μήκος, τέτοια, που το κυματοδιάνυσμα και το διάνυσμα ακτίνας να είναι παράλληλα. Αυτό μπορεί να επιτευχθεί για γένεση αθροίσματος συχνοτήτων σε έναν μονοαξονικό κρύσταλλο, σε ένα επίπεδο, κάθετο στον οπτικό άξονα, κάτι που είναι γνωστό ως προσαρμογή φάσης 90° . Τέτοια προσαρμογή φάσης έχει βρεθεί πιθανή σε πολλούς κρυστάλλους για ένα συγκεκριμένο φάσμα συχνοτήτων, το οποίο καθορίζεται από τη θερμοκρασία.

Η χαμηλή ποιότητα της δέσμης μειώνει επίσης την απόδοση της μετατροπής. Ένα πολύτροπο λέιζερ μπορεί να θεωρηθεί χονδρικά, ως μια δέσμη με θερμά σημεία. Η μικρή διάσταση αυτών των θερμών σημείων αυξάνει το φαινόμενο walk-off και μειώνει την αλληλεπίδραση μήκους. Επομένως, για υψηλή απόδοση μετατροπής, θα πρέπει να χρησιμοποιηθούν ακτίνες με TEM_{00} κατάσταση.

Η καλή ποιότητα του κρυστάλλου είναι επίσης σημαντική για αποτελεσματική γένεση αθροίσματος συχνοτήτων. Η ανομοιογένεια εμποδίζει την ιδανική προσαρμογή φάσης μέσω του κρυστάλλου. Αφού $|\Delta kz| < \pi/2$ απαιτείται για αποτελεσματική μετατροπή ενέργειας, η ανεκτή διακύμανση του δείκτη διάθλασης εξαιτίας της ανομοιογένειας είναι $\Delta n < \lambda/4z = 2,5 \times 10^{-5}$ για $\lambda = 1\mu\text{m}$ και $z = 1\text{ cm}$. Αυτό σημαίνει ότι η απαίτηση στην ποιότητα του κρυστάλλου είναι αυστηρή. Για τον ίδιο λόγο, η ανομοιομορφία θερμοκρασίας διαμέσου του μήκους του κρυστάλλου είναι επίσης

σημαντική. Για μια τυπική περίπτωση με $dn/dt \approx 5 \times 10^{-5}$, μια σταθερότητα θερμοκρασίας $\Delta T \approx 0,5$ K, διαμέσου του κρυστάλλου πρέπει να επιτευχθεί $\Delta n < 2,5 \times 10^{-5}$. Αυτή η ανάλυση εφαρμόζεται γενικά, σε όλες τις διαδικασίες μίξης.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. M. Bass, P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters & G. Weinreich, *Phys. Rev. Lett.* 8, 18 (1962).
2. P.D. Maker, R.W. Terhune, M. Nisenhoff & C.M. Savage, *Phys. Rev. Lett.* 8, 21 (1962); J.A. Giordmaine, *Phys. Rev. Lett.* 8, 19 (1962).
3. J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing & P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 127, 1918 (1962).
4. N. Bloembergen & P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 128, 606 (1962).
5. J. Ducuing & N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.* 10, 474 (1963); R.K. Chang & N. Bloembergen, *Phys. Rev.* 144, 775 (1966).
6. J.M. Manley & H.E. Rowe, *Proc. IRE* 47, 2115 (1959).
7. G.D. Boyd & D.A. Kleinman, *J. Appl. Phys.* 39, 3597 (1968).
8. F. Zerruiké & J.E. Midwinter, *Applied Nonlinear Optics* (Wiley, New York, 1973), pp. 64-65

Βιβλιογραφία

- Akhmanov, S.A., & R.V. Khokhlov, *Problems of Nonlinear Optics* (Gordon & Breach, New York, 1972).
- Bloembergen, N., *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
- Zernike, F., & J.E. Midwinter *Applied Nonlinear Optics* (Wiley, New York, 1973).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 7 – Γένεση Αρμονικών

Στην ιστορία της μη γραμμικής οπτικής, η ανακάλυψη της γένεσης οπτικών αρμονικών σηματοδότησε και τη γένεση του πεδίου αυτού¹. Το φαινόμενο αυτό έχει από τότε βρει ευρεία εφαρμογή, ως μέσο για να επεκταθούν σύμφωνες φωτεινές πηγές σε μικρότερα μήκη κύματος. Αυτό το κεφάλαιο συνοψίζει τις σημαντικές απόψεις της γένεσης αρμονικών. Καθώς πρόκειται για ένα ειδικό θέμα της οπτικής, η περισσότερη ανάλυση στο Κεφάλαιο 6 μπορεί να εφαρμοστεί και εδώ, χωρίς πολλές τροποποιήσεις. Αναλύεται επίσης, η εφαρμογή της γένεσης αρμονικών στις μετρήσεις μη γραμμικών οπτικών επιδεικτικότητων και στον χαρακτηρισμό υπερβραχέων παλμών.

7.1 Γένεση δεύτερης αρμονικής

Η θεωρία της γένεσης της δεύτερης αρμονικής ακολουθεί ακριβώς την γένεση αθροίσματος συχνοτήτων, που συζητήθηκε στο Κεφάλαιο 6. Με $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ και $\omega_3 = 2\omega$, η παραγωγή και τα αποτελέσματα στις Ενότητες 6.2 και 6.6 μπορούν να εφαρμοστούν απευθείας στην παρούσα περίπτωση. Συγκεκριμένα, η προσέγγιση επίπεδου κύματος με αμελητέα απώλεια αντλίας, αποφέρει ισχύς εξόδου δευτέρας αρμονικής

$$P_{2\omega}(z) = \frac{32\pi^3\omega^2}{c^3\epsilon(\omega)\sqrt{\epsilon(2\omega)}} |\hat{e}_{2\omega} \cdot \chi^{(2)} : \hat{e}_\omega \hat{e}_\omega|^2 z^2 \frac{\sin^2(\Delta k z/2)}{(\Delta k z/2)^2} \frac{P_\omega^2(0)}{A} \quad (7.1)$$

Για συγγραμμική προσαρμογή φάσης σε έναν κρύσταλλο με κανονική διασπορά, πρέπει να έχουμε κατά την (6.20), είτε $n_e(2\omega) = n_o(\omega)$ (Τύπος I) (7.2) ή $n_e(2\omega) = \frac{1}{2}[n_o(\omega) + n_e(\omega)]$ (Τύπος II) (7.3). Ο υπολογισμός στο όριο της μετατροπής υψηλής απόδοσης απαιτεί ελαφρά τροποποίηση. Συγκεκριμένα, για τον Τύπο I συγγραμμικής προσαρμογής φάσης, η συμμετρία μετάθεσης του $\chi^{(2)}$, κατά την (2.30), δίνει

$$\begin{aligned} K &= \frac{2\pi}{c^2} \hat{e}_{2\omega} \cdot \chi^{(2)}(2\omega = \omega + \omega) : \hat{e}_\omega \hat{e}_\omega \\ &= \frac{\pi}{c^2} \hat{e}_\omega \cdot \chi^{(2)}(\omega = -\omega + 2\omega) : \hat{e}_\omega \hat{e}_{2\omega} \end{aligned} \quad (7.4)$$

Οι συζευγμένες εξισώσεις στην (6.24) παίρνουν τη μορφή¹

$$\begin{aligned}\frac{\partial \mathcal{E}_\omega}{\partial z} &= \frac{i\omega^2}{k_{\omega,z} \cos^2 \alpha_\omega} 2K \mathcal{E}_\omega^* \mathcal{E}_{2\omega}, \\ \frac{\partial \mathcal{E}_{2\omega}}{\partial z} &= \frac{-i(2\omega)^2}{k_{2\omega,z} \cos^2 \alpha_{2\omega}} K \mathcal{E}_\omega^2.\end{aligned}\quad (7.5)$$

Η διατήρηση της ροής ισχύος και η διατήρηση του αριθμού των φωτονίων στην (6.26) και (6.27), αντίστοιχα, γίνεται

$$\begin{aligned}W &= \frac{c^2}{2\pi} \left[\frac{k_{\omega,z} \cos^2 \alpha_\omega |\mathcal{E}_\omega|^2}{\omega} + \frac{k_{2\omega,z} \cos^2 \alpha_{2\omega} |\mathcal{E}_{2\omega}|^2}{2\omega} \right] \\ \frac{|\mathcal{E}_\omega(0)|^2 - |\mathcal{E}_\omega(z)|^2}{\hbar\omega} &= 2 \frac{|\mathcal{E}_{2\omega}(z)|^2 - |\mathcal{E}_{2\omega}(0)|^2}{2\hbar\omega}.\end{aligned}\quad (7.6)$$

Χρησιμοποιώντας τον ορισμό της u_ω και $u_{2\omega}$ [u_1 και u_3 στην (6.28) με $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ και $\omega_3 = 2\omega$], παίρνουμε

$$\frac{du_\omega}{d\xi} = -2u_\omega u_{2\omega} \sin \theta \quad \text{και} \quad \frac{du_{2\omega}}{d\xi} = u_\omega^2 \sin \theta \quad (7.7)$$

Εάν υποθέσουμε ότι $u_{2\omega}(0) = 0$, τότε $\theta \approx \pi/2$ και η λύση παίρνει τη μορφή

$$\begin{aligned}u_\omega(\xi) &= u_\omega(0) \operatorname{sech}[\sqrt{2} u_\omega(0) \xi], \\ u_{2\omega}(\xi) &= \frac{1}{\sqrt{2}} u_\omega(0) \tanh[\sqrt{2} u_\omega(0) \xi]\end{aligned}\quad (7.8)$$

Η ισχύς εξόδου δεύτερης αρμονικής δίνεται τότε από τη σχέση $P_{2\omega}(z) = P_\omega(0) \tanh^2[C(P_\omega(0)/(A)^{1/2}z)]$ (7.9), όπου $C = K(2\omega/\sqrt{\epsilon})(2\pi c/\sqrt{\epsilon})^{1/2}$, υποθέτοντας για λόγους απλοποίησης, ότι, $k_{\omega,z} = k_\omega = 1/2 k_{2\omega} = 1/2 k_{\omega,z}$ και $\alpha_\omega = \alpha_{2\omega}$. Με βάση την (7.9), το Σχ. 7.1 δείχνει πώς η $P_{2\omega}(z)$ αυξάνει, με το z εις βάρος του $P_\omega(z)$.

Ως ένα πρακτικό παράδειγμα, θεωρούμε τη χρήση του KDP ως γεννήτρια δεύτερης αρμονικής για μία Nd: YAG δέσμη λέιζερ στα 1,06 μm . Χρησιμοποιώντας τον ίδιο υπολογισμό όπως στην Ενότητα 6.8 με $n_0(\omega) = 1,4939$ και $n_{\text{em}}(2\omega) \approx 1,4706$ σε θερμοκρασία δωματίου, βρίσκουμε ότι για τον Τύπο I συγγραμμικής προσαρμογής φάσης,

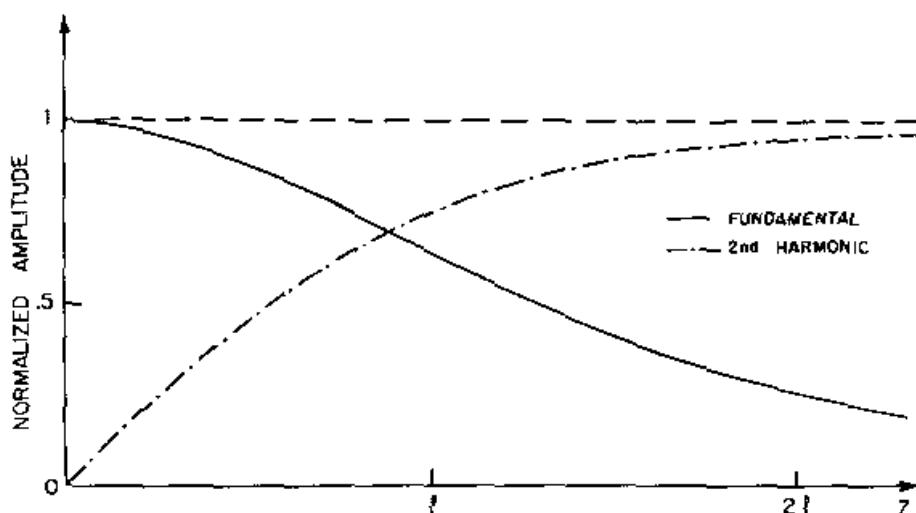
οι δέσμες θα πρέπει να διαδίδονται σε μια διεύθυνση με γωνία $\textcircled{H} = 40,5^\circ$ μακριά από τον Z-άξονα του κρυστάλλου. Το πεδίο αντλίας θα πρέπει να είναι γραμμικά πολωμένο σε ένα επίπεδο, που διχοτομεί τα επίπεδα X-Z και Y-Z, ώστε να αποδώσει ένα βέλτιστο

$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \chi_{ZXY}^{(2)}(2\omega) \sin(H) = 1,5 \times 10^{-9}$ esu. Με την προσέγγιση επίπεδου κύματος, η απόδοση της γένεσης δεύτερης αρμονικής, κατά την (7.9), είναι

$$\eta = \frac{P_{2\omega}(z)}{P_{\omega}(0)} = \tanh^2 \left\{ C \left[\frac{P_{\omega}(0)}{A} \right]^{1/2} z \right\}$$

$$= \tanh^2 \left\{ 4.7 \times 10^{-2} \left[\frac{P_{\omega}(0)}{A} \right]^{1/2} z \right\} \quad (P_{\omega} \text{ in MW}) \quad (7.10)$$

Όπως φαίνεται από την (7.10), η απόδοση η φθάνει το 58% όταν $[P_{\omega}(0)/A]^{1/2} z = 21 \sqrt{\text{MW}}$ ή $[P_{\omega}(0)/A] = 18 \text{ MW/cm}^2$ για $z = 5$ cm. Σε συνθήκες πραγματικού πειράματος, η απόδοση η είναι συχνά λιγότερη, εξαιτίας της πεπερασμένης διάστασης και την εγκάρσια διακύμανση έντασης της δέσμης αντλίας. Μια απόδοση της τάξης του 40% με γιγάντιους παλμούς ή 85% με υπερβραχείς παλμούς, έχει παρόλα αυτά, επιτευχθεί². Ο προηγούμενος υπολογισμός δείχνει πράγματι ότι για να έχουμε αξιοσημείωτη απόδοση μετατροπής ($\eta > 10\%$) σε έναν κρύσταλλο όπως τον KDP, μια ένταση αντλίας της τάξης των $10/\text{cm}^2$ είναι απαραίτητη για μήκος κρυστάλλου μερικών εκατοστών (ένας πολύ μακρύτερος κρύσταλλος, σπάνια αποδεικνύεται πρακτικός).



Σχ. 7.1 Ελάττωση και αύξηση για τα πλάτη της κανονικοποιημένης θεμελίου και δεύτερης αρμονικής, αντίστοιχα, στην περίπτωση ιδανικής προσαρμογής φάσης (Βιβλ.Αναφ.1)

Σε γενικές γραμμές, υψηλότερη ένταση αντλίας οδηγεί σε μεγαλύτερο η , εκτός από το όριο πολύ υψηλής απόδοσης μετατροπής². Επομένως, για μια δέσμη αντλίας χαμηλής ισχύος, χρησιμοποιείται συνήθως η εστίαση, προκειμένου να αυξηθεί το η και κατά

συνέπεια, η έξοδος της δεύτερης αρμονικής.

Η εστίαση, όμως, αυξάνει το φαινόμενο walk-off, αλλά όπως αναφέρεται στην Ενότητα 6.9, αυξάνει επίσης την εξάπλωση της διάδοσης της δέσμης. Η εξάπλωση ζημιώνει την απόδοση μετατροπής, καθώς ένα μέρος της ακτίνας τώρα, εκτρέπεται από την ακριβή διεύθυνση της προσαρμογής φάσης. Για τον Τύπο I συγγραμμικής προσαρμογής φάσης σε γωνία \textcircled{H} , για παράδειγμα, μπορεί να αποδειχθεί εύκολα, ότι μια μικρή απόκλιση $\Delta\theta$ της διεύθυνσης διάδοσης της δέσμης από την \textcircled{H} οδηγεί σε ασυνέχεια φάσης³

$$\Delta k \equiv \frac{1}{2} k_{\omega} n_0^2(\omega) \left[\frac{1}{n_e^2(2\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)} \right] \sin 2\textcircled{H} \Delta\theta \quad (7.11)$$

Με $\Delta kl = \pi$ να είναι το μισό πλάτος της κορυφής της προσαρμογής φάσης, η περίπου \textcircled{H} αποδεκτή γωνία, που μπορεί κάποιος να επιτρέψει για σύγκλιση δέσμης, είναι, από την (7.11)

$$\Delta\theta_A = \frac{2\pi}{k_{\omega} l} \left[\frac{n_o^2(2\omega)}{n_o^2(2\omega) - n_e^2(2\omega)} \right] \frac{1}{\sin 2\textcircled{H}} \quad (7.12)$$

Για έναν κρύσταλλο KDP με $l = 1 \text{ cm}$ και $\textcircled{H} = 45^\circ$ στο $\lambda_{\omega} = 1,06 \text{ }\mu\text{m}$, η αποδεκτή γωνία $\Delta\theta_A$ είναι μόνο 2,5 mrad. Η εξίσωση (7.12) δείχνει ότι η $\Delta\theta$ αποκλίνει, καθώς η \textcircled{H} πλησιάζει τις 90° . Αυτό συμβαίνει επειδή οι όροι υψηλότερης τάξης της $\Delta\theta$ ήταν αμελητέοι στην (7.11). Το σωστό αποτέλεσμα για $\textcircled{H} = 90^\circ$ είναι, θεωρώντας $n_o(2\omega) \sim n_e(2\omega)$,

$$\Delta\theta_A = \left\{ \frac{n_e(2\omega)}{k_{\omega} l [n_o(2\omega) - n_e(2\omega)]} \right\}^{1/2} \quad (7.13)$$

Για έναν κρύσταλλο KDP ενός εκατοστού στο $\lambda_{\omega} \approx 1,06 \text{ }\mu\text{m}$, η αποδεκτή γωνία είναι 36 mrad, το οποίο είναι τάξη μεγέθους, μεγαλύτερη από αυτήν της προηγούμενης περίπτωσης. Η μεγάλη γωνία αποδοχής για την προσαρμογή φάσης 90° είναι σαφώς καλύτερη, εάν η εστίαση της δέσμης χρησιμοποιείται στη γένεση δεύτερης αρμονικής.

7.2 Γένεση δεύτερης αρμονικής μέσω εστιασμένων γκαουσιανών ακτινών

Για την αποδοτική γένεση δεύτερης αρμονικής απαιτούνται δέσμες λέιζερ με λειτουργία μονού ρυθμού. Η απόδοση μετατροπής μπορεί να βελτιωθεί κατά πολύ, εστιάζοντας τη δέσμη αντλίας στο μη γραμμικό κρύσταλλο. Στην εστιακή διατομή, μια μονότροπη δέσμη έχει Γκαουσιανό προφίλ έντασης, που περιγράφεται από την $\exp(-\rho^2/W_0^2)$ με W_0 να είναι η ακτίνα της δέσμης. Η διαμήκης διάσταση (μήκος) της περιοχής εστίασης, καθορίζεται από την ομοεστιακή παράμετρο $b = k W_0^2$, όπως και η απόσταση μεταξύ δύο σημείων στον άξονα εστίασης, όπου οι ακτίνες της δέσμης είναι $\sqrt{2}$ φορές μεγαλύτερες από αυτές της διατομής. Μέσα στην περιοχή εστίασης, η δέσμη έχει σχεδόν ένα μέτωπο επίπεδο κύματος, έτσι ώστε να μπορεί να χρησιμοποιηθεί η προσέγγιση επίπεδου κύματος.

Λαμβάνουμε υπόψη μας πρώτα, την περίπτωση της αμελητέας διπλής διάθλασης ή του φαινομένου walk-off, π.χ. την περίπτωση προσαρμογή φάσης 90° . Προφανώς, εάν το μήκος κρυστάλλου l είναι μικρότερο από την ομοεστιακή παράμετρο b , η απόδοση μετατροπής για τη γένεση δεύτερης αρμονικής, μπορεί να περιγραφεί από το αποτέλεσμα της προσέγγισης του επίπεδου κύματος στην (7.10) με $A = \pi W_0^2$,

$$\eta = \tanh^2 \left\{ C \left[\frac{P_\omega(0)}{\pi W_0^2} \right]^{1/2} l \right\} \quad (7.14)$$

Εδώ, εφόσον $b > l$, μια πιο στενή εστίαση, θα αύξανε την $P_\omega(0)/\pi W_0^2$ και θα βελτιώνει την απόδοση. Όμως, αν $b < l$, η προσέγγιση καταρρέει και η πιο στενή εστίαση τείνει να μειώνει την απόδοση. Επομένως, η βέλτιστη εστίαση συμβαίνει, όταν η ομοεστιακή παράμετρος είναι περίπου ίση με το μήκος του κρυστάλλου, $b \sim l$. Οι Boyd & Kleinman⁴ μελέτησαν το πρόβλημα της εστίασης λεπτομερώς με αριθμητικούς υπολογισμούς. Εισήγαγαν έναν παράγοντα μείωσης απόδοσης $h_0(\xi)$ με $\xi = l/b$, ώστε να ληφθεί υπόψη η επίδραση της εστίασης στην απόδοση^{4,5}. Βρίσκουν

$$\eta = \tanh^2 \left[\frac{C^2 P_\omega(0) k_\omega h_0(\xi)}{\pi} \right]^{1/2} \quad (7.15)$$

Η συνάρτηση $h_0(\xi)$ έχει σχεδιαστεί στο Σχ. 7.2. Για $\xi = l/b < 0,4$, έχουμε $h_0(\xi) = \xi$, και το η στην (7.15) μειώνεται στη μορφή της (7.14), όπως αναμέναμε. Στο όριο στενής εστίασης, $\xi > 80$, η συνάρτηση $h_0(\xi)$ παίρνει την ασυμπτωτική μορφή $h_0(\xi) = 1,187\pi^2/\xi$, και η απόδοση πέφτει ραγδαία, με το ξ να αυξάνεται. Η μέγιστη τιμή της $h_0(\xi) = 1,068$

εμφανίζεται στο $\xi = 2.84$, με $h_0(\xi) = 1$ στο εύρος $1 \leq \xi \leq 6$. Αυτό δείχνει ότι, παρόλο που η βέλτιστη εστίαση συμβαίνει στη $b = l / 2.84$ για δεδομένο l , η απόδοση δε θα μειωθεί σημαντικά, ακόμα και αν $b = l$.

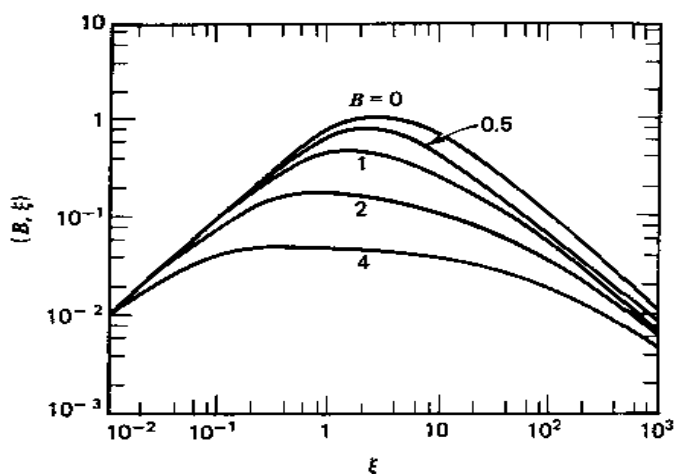
Με διπλή διάθλαση, η κατάσταση γίνεται πιο πολύπλοκη. Οι Boyd & Kleinman έδειξαν ότι στο όριο της χαμηλής απόδοσης μετατροπής, η (7.15) ισχύει ακόμα και αν η

$h_0(\xi)$ αντικατασταθεί από $h(B, \xi)$ [$h(0, \xi) = h_0(\xi)$], ή $\eta = \frac{C^2 P_\omega(0) k_\omega h(B, \xi)}{\pi}$, όπου $B = \frac{1}{2} \rho (k_\omega l)^{1/2}$ είναι μια διπλή παράμετρος διάθλασης, και

$$\rho = \tan^{-1} \left\{ \frac{n_0^2(\omega)}{2} \left[\frac{1}{n_e^2(2\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)} \right] \sin 2(H) \right\}$$

είναι η γωνία walk-off μεταξύ των διανυσμάτων Poynting των συγγραμμικά διαδιδόμενων θεμελιωδών και δευτέρας αρμονικής κυμάτων, κατά μήκος της διεύθυνσης σε γωνία (H) μακριά από τον οπτικό άξονα.

Γένεση δεύτερης αρμονικής μέσω εστιασμένων γκαουσιανών ακτινών



Σχ. 7.2 Παράγοντας μείωσης απόδοσης $h(B, \xi)$ σε αντιδιαστολή με το $\xi = l/b$, σε διάφορες τιμές της παραμέτρου διπλής διάθλασης B (Βιβλ. Αναφ.4).

Η συνάρτηση $h(B, \xi)$ για αρκετές τιμές του B φαίνεται στο Σχ. 7.2. Να σημειωθεί ότι η $h(B, \xi)$ εξαρτάται ελάχιστα από το ξ κοντά στη μέγιστη τιμή του $h_M(B)$. Αυτό το τελευταίο, μπορεί να υπολογιστεί σε ποσοστό περίπου 10%, με την έκφραση³

$$h_M(B) = \frac{h_M(0)}{1 + (4B^2/\pi) h_M(0)} \quad (7.17)$$

με $h_M(0) = 1,068$. Η εξίσωση αυτή, μαζί με την (7.16), δείχνουν ότι η μείωση απόδοσης εξαιτίας διπλής διάθλασης, γίνεται σημαντική όταν $(4B^2/\pi)h_M(0) \sim 1$. Μπορούμε να ορίσουμε ένα ενεργό μήκος

$$l_{\text{eff}} = \frac{\pi}{k_\omega \rho^2 h_M(0)} \simeq \frac{\pi}{k_\omega \rho^2} \quad (7.18)$$

Η εξίσωση (7.17) γίνεται

$$h_M(B) = \frac{h_M(0)}{1 + l/l_{\text{eff}}} \quad (7.19)$$

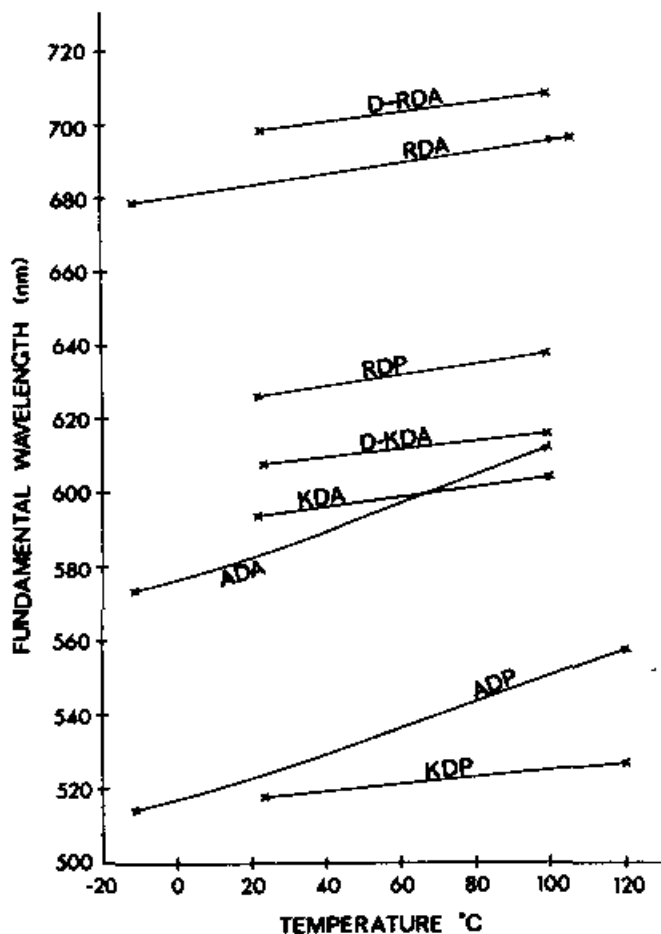
Αυτό δείχνει ξεκάθαρα ότι όταν $l_{\text{eff}} = l$ κατά την παρουσία διπλής διάθλασης, η απόδοση για τη γένεση της δεύτερης αρμονικής με βέλτιστη εστίαση, μειώνεται κατά έναν παράγοντα με τιμή 2, συγκρινόμενη με την περίπτωση χωρίς διπλή διάθλαση. Όταν $l_{\text{eff}} \ll l$, η απόδοση γίνεται

$$\eta_{\text{opt}} = \frac{C^2 P_\omega(0) k_\omega l_{\text{eff}} h_M(0)}{\pi} \quad (7.20)$$

Η επίδραση της διπλής διάθλασης στην η_{opt} είναι ασήμαντη, μόνο όταν $l \ll l_{\text{eff}}$. Τα αποτελέσματα αυτά, δεν εξαρτώνται κατά τρόπο κρίσιμο από την εστίαση, εφόσον $h(B, \xi) = h_M(B)$.

Θα μπορούσε κάποιος να χρησιμοποιήσει πιο φυσικά επιχειρήματα για να κατανοήσει αυτά τα αποτελέσματα. Εξαιτίας της διπλής διάθλασης, οι δέσμες θεμελιώδους και δευτέρας αρμονικής με προσαρμογή φάσης, μπορούν να αλληλεπικαλύπτουν μόνο πάνω από μια συγκεκριμένη απόσταση, $l_a = W_0 \sqrt{\pi} / \rho$, συχνά γνωστή και ως μήκος ανοίγματος. Για βέλτιστη εστίαση, θα θέλαμε να έχουμε $l = b = k_\omega W_0^2$, αλλά για να αποφευχθεί η μείωση της απόδοσης λόγω διπλής διάθλασης, πρέπει να έχουμε $l < l_a = \sqrt{\pi l / k_\omega \rho^2}$, το οποίο οδηγεί στο $l < l_{\text{eff}} = \pi / k_\omega \rho^2$, που είναι το ίδιο αποτέλεσμα με αυτό που περιγράφηκε στην προηγούμενη παράγραφο.

Η ανάλυση αυτή υποθέτει ότι η ένταση του λέιζερ στον κρύσταλλο δεν περιορίζεται από οπτική βλάβη. Φυσικά, δε συμβαίνει πάντα αυτό. Ως παράδειγμα, ας θεωρήσουμε έναν κρύσταλλο με $n = 1,5$, $l = 1 \text{ cm}$ και $\rho = 30 \text{ mrad}$ για $\lambda_\omega = 1,06 \text{ }\mu\text{m}$.



Σχ. 7.3 Θεμελιώδες μήκος κύματος ως προς τη θερμοκρασία κρυστάλλου με προσαρμογή φάσης 90° για κάποια από τα KDP ισομορφικά (κάθετος άξονας: θεμελιώδες μήκος κύματος σε nm και οριζόντιος άξονας: θερμοκρασία σε C°)

Τότε, $B = 3,65$ και από το Σχ. 7.2, $h(B = 3,65, \xi) \approx h_M(B)$ για $0,2 < \xi < 10$. Αφού το $l_{eff} = 0,04$ cm είναι πολύ μικρότερο από το l , έχουμε $h_M(B) \approx l_{eff}/l$, και σύμφωνα με την (7.20) $\eta \approx l_{eff}$. Συγκρίνοντας με την περίπτωση απουσίας walk-off και βέλτιστης εστίασης $b \rightarrow l$, έχουμε $\eta_{\rho=0} \approx l$ και επομένως, $\eta_{\rho=0}/\eta_\rho = l/l_{eff} = 2n\rho^2l/\lambda = 25$. Αυτό δείχνει ότι η χρήση της προσαρμογής φάσης 90° αποτελεί μεγάλο πλεονέκτημα στο να αποφευχθεί το φαινόμενο (επίδραση) walk-off. Η προσαρμογής φάσης 90° για τη γένεση της δεύτερης αρμονικής, μπορεί να επιτευχθεί μέσω της ρύθμισης της θερμοκρασίας σε πολλούς κρυστάλλους. Στο Σχ. 7.3, αναπαρίσταται το μήκος κύματος της προσαρμογής φάσης 90° ως συνάρτηση της θερμοκρασίας για έναν αριθμό KDP ισομορφικών.⁶

7.3 Γένεση τρίτης αρμονικής σε κρυστάλλους

Σε έναν κρύσταλλο με συμμετρία αναστροφής, η γένεση της δεύτερης αρμονικής είναι απαγορευτική με την προσέγγιση ηλεκτρικού δίπολου, παρόλο που μπορεί να προκληθεί με την εφαρμογή ενός dc ηλεκτρικού πεδίου⁷. Η γένεση της τρίτης αρμονικής, από την άλλη μεριά, είναι πάντα επιτρεπτή. Η θεωρία για τη γένεση της τρίτης αρμονικής στο όριο

της αμελητέας μείωσης αντλίας είναι το ίδιο με αυτό για την γένεση της δεύτερης αρμονικής με το $P^{(2)}(2\omega)$ να αντικαθίσταται από το $P^{(3)}(3\omega) = \chi^{(3)}(3\omega = \omega + \omega + \omega): E(\omega)E(\omega)E(\omega)$. Αφού το $|\chi^{(3)}|$ είναι συνήθως μικρό (συνήθως από -10^{-12} έως 10^{-15} esu συγκριτικά με το $|\chi^{(2)}|$ -10^{-7} ως 10^{-9} esu) και η ένταση του λέιζερ περιορίζεται συχνά από οπτικές ζημιές στους κρυστάλλους, η απόδοση μετατροπής για αυτήν την τρίτης τάξης μη γραμμική διαδικασία είναι μικρή. Επιπλέον, η προσαρμογή φάσης είναι πιο δύσκολο να επιτευχθεί. Επομένως, έχει μικρή πρακτική εφαρμογή.

Μια αποτελεσματική γεννήτρια τρίτης αρμονικής, μπορεί παρόλα αυτά, να κατασκευαστεί με δυο μη γραμμικούς κρυστάλλους σε σειρά⁸. Ο πρώτος παράγει μια δέσμη δεύτερης αρμονικής. Κατόπιν, η εκπεμπόμενη δέσμη της θεμελιώδους αρμονικής και η δέσμη εξόδου της δεύτερης αρμονικής συνδυάζονται στον δεύτερο κρύσταλλο, για να αποφέρουν μια έξοδο τρίτης αρμονικής, μέσω της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων. Και οι δυο διαδικασίες έχουν προσαρμογή φάσης (είτε Τύπου I είτε Τύπου II). Με μια δέσμη θεμελιώδους αρμονικής ικανοποιητικής έντασης, η ολική απόδοση της γένεσης της τρίτης αρμονικής μπορεί να είναι αρκετά υψηλή. Στο εμπόριο διατίθενται μονάδες με απόδοση που φτάνει μέχρι και το 20%.

Στη θεωρία, αυτό το είδος γένεσης τρίτης αρμονικής δύο βημάτων, μπορεί να συμβεί σε έναν μονό κρύσταλλο. Όμως, πέρα από εξαιρετικές περιπτώσεις, δεν είναι δυνατό να έχουμε ταυτόχρονη προσαρμογή φάσης και στη γένεση της δεύτερης αρμονικής και στη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων. Συνεπώς, η ολική απόδοση μετατροπής δε μπορεί να είναι σημαντική.

7.4 Γένεση αρμονικών σε αέρια

Η γένεση τρίτης αρμονικής μπορεί να υπάρξει και στα αέρια. Θα σκεφτόταν κάποιος ότι λόγω της πολύ χαμηλότερης ατομικής και μοριακής πυκνότητας στα αέρια σε σχέση με τα υγρά ή στερεά, η μη γραμμική επιδεκτικότητα τρίτης τάξης $|\chi^{(3)}|$ για ένα αέριο μέσο θα έπρεπε να είναι πολύ μικρότερη από αυτήν ενός υγρού ή στερεού και ότι η απόδοση για τη γένεση τρίτης αρμονικής στα αέρια θα ήταν τόσο χαμηλή, που δε θα μπορούσε ποτέ να είναι σημαντική. Αυτή η εικασία αποδεικνύεται λανθασμένη, όπως έδειξαν οι Miles & Harris.⁹ Πρώτον, το $|\chi^{(3)}|$ μπορεί να βελτιωθεί σημαντικά. Οι πιο έντονες μεταβάσεις στα αέρια, επιτρέπουν πολύ πιο έντονες αυξήσεις κοντά στους συντονισμούς, ειδικά σε εκείνα με υψηλότερες τιμές στα στοιχεία μετάβασης του πίνακα. Έπειτα, η περιοριστική ένταση του λέιζερ στα αέρια είναι κατά πολλές τάξεις μεγέθους

υψηλότερη από ότι σε ένα συμπυκνωμένο μέσο ($>$ λίγα GW/cm^2 σε αέρια συγκρινόμενη με τα μερικές εκατοντάδες MW/cm^2 στα στερεά). Σαν αποτέλεσμα, παρόλο που το $|\chi^{(3)}|$ είναι μικρό, η μη γραμμική πόλωση $|P^{(3)}|$ που προκαλείται από πεδίο υψηλής έντασης λέιζερ, μπορεί να είναι συγκρίσιμη με την $|P^{(2)}|$ που προκαλείται σε ένα στερεό με μέτρια ένταση δέσμης.

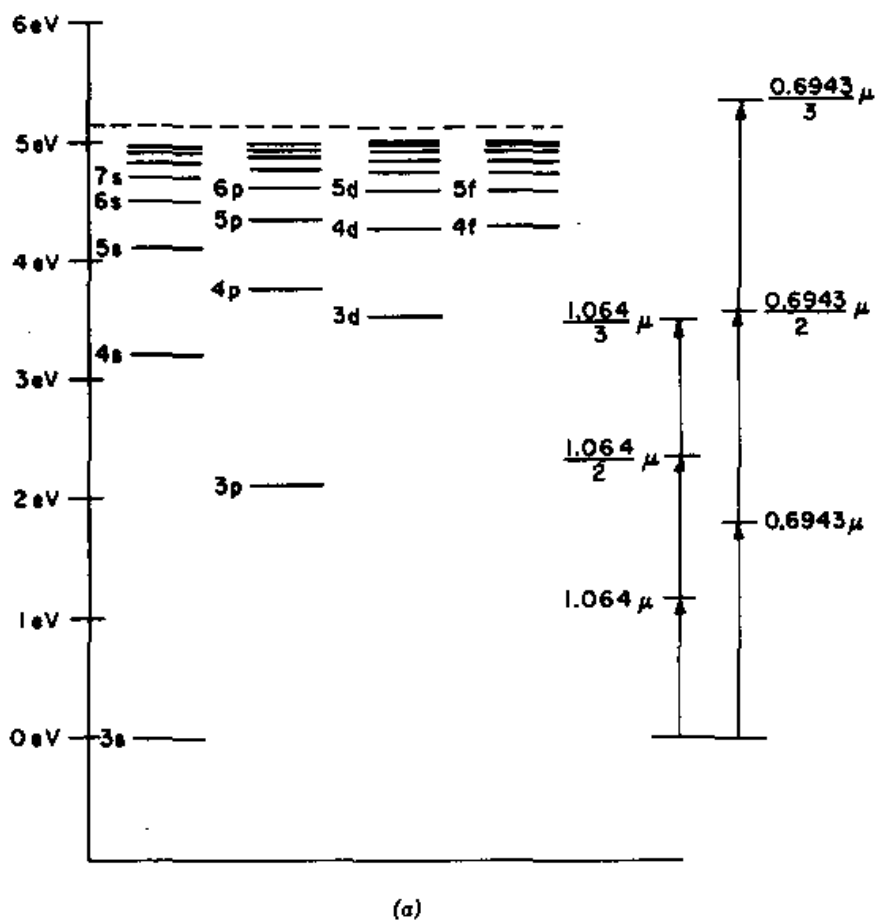
Σκεφτείτε τον ατμό νατρίου. Η μη γραμμική επιδεκτικότητα τρίτης τάξης για το νάτριο μπορεί να υπολογιστεί με αρκετή ακρίβεια από την γενική έκφραση του $\chi^{(3)}(3\omega)$ που παράγεται με την τεχνική που περιγράφεται στις Ενότητες 2.2 και 2.3:

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega = \omega + \omega + \omega) = \frac{Ne^4}{\hbar^3} \sum_{g, a, b, c} (r_i)_{ga} (r_j)_{ab} (r_k)_{bc} (r_l)_{cg} \rho_{gg}^{(0)} A_{abc}, \quad \text{όπου}$$

$$\begin{aligned} A_{abc} = & [(\omega_{cg} - \omega)(\omega_{bg} - 2\omega)(\omega_{ag} - 3\omega)]^{-1} \\ & + [(\omega_{cg} - \omega)(\omega_{bg} - 2\omega)(\omega_{ag} + \omega)]^{-1} \\ & + [(\omega_{cg} - \omega)(\omega_{bg} + 2\omega)(\omega_{ag} + \omega)]^{-1} \\ & + [(\omega_{cg} + 3\omega)(\omega_{bg} + 2\omega)(\omega_{ag} + \omega)]^{-1}. \end{aligned} \quad (7.21)$$

Εδώ το N είναι ο αριθμός των ατόμων ανά μονάδα όγκου και υποθέτουμε ότι οι συχνότητες είναι αρκετά μακριά από συντονισμούς, έτσι ώστε οι σταθερές απόσβεσης στους παρανομαστές να μπορούν να αγνοηθούν. Για αλκαλικά άτομα, οι συχνότητες μετάβασης και τα μέγιστα στοιχεία του πίνακα, είναι συχνά γνωστά. Επομένως, το $|\chi^{(3)}(3\omega)|$ μπορεί να υπολογιστεί από την (7.21). Αυτό έχει ήδη γίνει από τους Miles & Harris⁹. Το αποτέλεσμα για το Na φαίνεται στο Σχ. 7.4, μαζί με το διάγραμμα επιπέδου ενέργειας για το Na. Σε αυτό φαίνεται ότι ακόμα και όταν η 3ω είναι μερικά εκατοντάδες cm^{-1} μακριά από έναν συντονισμό $s \rightarrow p$, η αύξηση του συντονισμού του κοντινού πεδίου, μπορεί να κάνει την τιμή του $|\chi^{(3)}|/N$ μεγαλύτερη από 10^{-33} esu. Έπειτα, με $N = 10^{17}$ άτομα / cm^3 και με $|E(\omega)| \sim 2 \times 10^3$ esu να αντιστοιχεί σε μια δέσμη έντασης $1 \text{ GW}/\text{cm}^2$, η παραγόμενη μη γραμμική πόλωση $|P^{(3)}| = |\chi^{(3)} EEE|$ μπορεί να είναι μεγαλύτερη από 10^{-6} esu. Αυτό είναι συγκρίσιμο με $|P^{(2)}(2\omega)| = |\chi^{(2)} EE| \sim 10^{-5}$ esu, που παράγεται σε έναν KDP με $|\chi^{(2)}| \sim 10^{-9}$ esu και $|E| \sim 10^2$ esu ($2,5 \text{ MW}/\text{cm}^2$). Επομένως, η γένεση τρίτης αρμονικής σε ατμούς νατρίου θα πρέπει να είναι εύκολα παρατηρήσιμη με 3ω κοντινό συντονισμό, π.χ. με ένα Nd λέιζερ στο $1,06\mu\text{m}$.

Γένεση αρμονικής σε αέρια

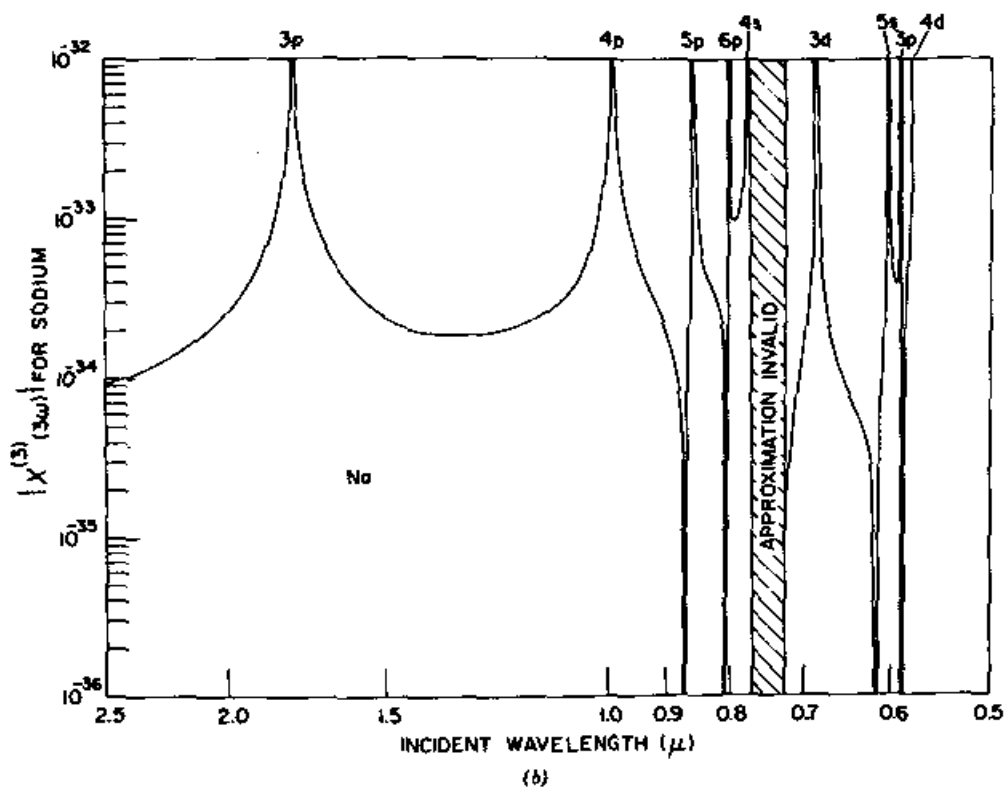


Σχ. 7.4 (α) Επίπεδα ενέργειας νατρίου (β) Τρίτης τάξης μη γραμμική πολωσιμότητα, $\chi^{(3)}(3\omega)/N$, ως προς το θεμέλιο μήκος κύματος για το νάτριο (Βιβλ. Αναφ. 9)

Για να έχουμε υψηλή απόδοση μετατροπής, πέρα από την αύξηση του συντονισμού και την αρκετά υψηλή ένταση αντλίας, η διαδικασία γένεσης τρίτης αρμονικής πρέπει να είναι σε συγγραμμική προσαρμογή φάσης με τη $n(\omega) = n(3\omega)$. Δεδομένου ότι ένα αέριο μέσο είναι ιστροπικό, η συνηθισμένη μέθοδος αξιοποίησης της ιδιότητας της διπλοθλαστικότητας ενός μέσου, για την προσαρμογή φάσης, δεν είναι εφαρμόσιμη εδώ. Εξάλλου, η προσαρμογή φάσης για τη γένεση τρίτης αρμονικής (ή οπτική ανάμιξη γενικότερα) δεν είναι πάντα εφικτή σε ένα αέριο μέσο. Όταν υπάρχει ανώμαλη διασπορά μεταξύ ω και 3ω , παρόλα αυτά, μπορεί να επιτευχθεί, χρησιμοποιώντας ένα αέριο δότη (αδρανές μη εύφλεκτο αέριο) για να αντισταθμίσει τη διαφορά των δεικτών διάθλασης στις ω και 3ω . Αυτό φαίνεται στο Σχ. 7.5. Με την ω κάτω και την 3ω πάνω από μια δυνατή $s \rightarrow p$ μετάβαση του αλκαλικού ατόμου, η ανώμαλη διασπορά προκαλεί $n_A(\omega) > n_A(3\omega)$ σε έναν καθαρά αλκαλικό ατμό. Εάν ένα αέριο δότης (π.χ. Xe) με κανονική

διασπορά $n_B(\omega) < n_B(3\omega)$ αναμιχθεί μέσα στο μέσο, τότε, προσαρμόζοντας την πυκνότητα του αερίου δότη, είναι πιθανό να επιτευχθεί προσαρμογή φάσης, με $n_A(\omega) + n_B(\omega) = n_A(3\omega) + n_B(3\omega)$.

Γένεση Αρμονικής

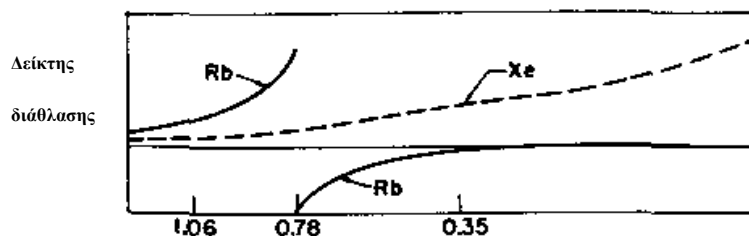


Σχ. 7.4 (Συνέχεια)(Κάθ. άξονας: $|\chi^{(3)}(3\omega)|$ για νάτριο, Οριζ. άξονας: προσπίπτον μήκος κύματος (μ))

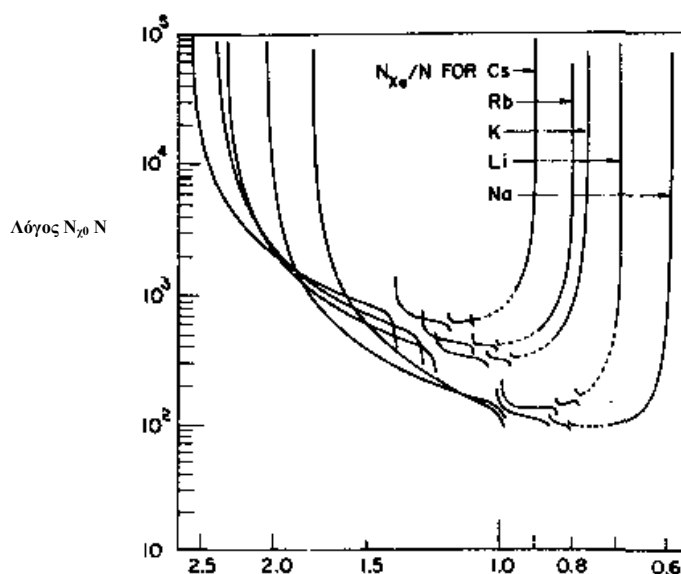
Υπάρχουν αρκετά σημαντικά πλεονεκτήματα χρήσης ενός αερίου μέσου για μη γραμμική οπτική μίξη.

1. Ένα ομογενές μέσο μακρύτερο από 10 εκ. είναι εύκολα διαθέσιμο.
2. Αφού το μέσο είναι ισοτροπικό, το πρόβλημα walk-off δεν υπάρχει. Βέλτιστη εστίαση μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να αυξηθεί ο βαθμός απόδοσης μετατροπής.
3. Πέρα από το υψηλό οπτικό κατώφλι ζημίας, ένα αέριο μέσο έχει επίσης αυτοδιορθωτική ικανότητα. Πέρα από εξαιρετικές περιπτώσεις, καμιά μόνιμη αλλαγή δε μπορεί να επηρεαστεί στο μέσο, από ιονισμό προκαλούμενο από λέιζερ ή διαχωρισμό.
4. Ο ατομικός ατμός είναι διαφανής στην ακτινοβολία σε σχεδόν όλες τις συχνότητες κάτω από το επίπεδο ιονισμού, με εξαίρεση, έναν αριθμό διακριτών σειρών απορρόφησης, και είναι το μόνο μη γραμμικό μέσο, που μπορεί κανείς να χρησιμοποιήσει στην ακραία UV περιοχή ή στην περιοχή μαλακών ακτίνων-X.

Ένα αέριο μέσο μπορεί τότε να φαίνεται ιδανικό για γένεση τρίτης αρμονικής, ειδικά για μετατροπή στην περιοχή UV. Υψηλή απόδοση μετατροπής θα μπορούσε υποθετικά να παραχθεί, χρησιμοποιώντας ένα λέιζερ υψηλής έντασης, με ένα λογικά αποδεκτό μακρύ κελί αερίου. Δυστυχώς, υπάρχουν πολλοί παράγοντες που συχνά περιορίζουν την



(α) Μήκος κύματος (μ)



(β) Μήκος κύματος πρόσπτωσης (μ)

Σχ. 7.5 (α) Δείκτες διάθλασης των Rb και Xe ως προς το μήκος κύματος. (β) Απαιτούμενος λόγος για το Xe σε αλκαλικά άτομα ως προς το θεμέλιο μήκος κύματος για προσαρμογή φάσης γένεσης τρίτης αρμονικής (Βιβλ.

Αναφ. 9)

απόδοση, μέσω του περιορισμού της έντασης του λέιζερ:

1. Η γραμμική απορρόφηση στις ω και 3ω περιορίζει την απόδοση (Ενότητα 6.6). Η αύξηση συντονισμού του $|\chi^{(3)}|$ βελτιώνει επίσης τη γραμμική απορρόφηση, αν και όχι κατά αναλογία.

2. Η διφωτονική και πολυφωτονική απορρόφηση μπορεί να γίνει σημαντική στον περιορισμό της απόδοσης, όταν χρησιμοποιείται δέσμη αντλίας υψηλής έντασης.

3. Η ανακατανομή πληθυσμού εξαιτίας της απορρόφησης μπορεί να προκαλέσει ασυνέχεια φάσης στην διαδικασία οπτικής μίξης.

4. Μια αλλαγή στον δείκτη διάθλασης που έχει προκληθεί από έναν άλλο μηχανισμό παραγωγής λέιζερ, μπορεί επίσης να αυξήσει την ασυνέχεια φάσης.

5. Η κατάρρευση – ζημία του μέσου προκαλούμενη από παραγωγή λέιζερ, ίσως περιορίσει τη διαδικασία μίξης.

Όλοι αυτοί οι παράγοντες γίνονται πολύ γρήγορα πιο σημαντικοί όταν οι ω και 3ω πλησιάζουν σε συντονισμό. Συνήθως, η παραπάνω περίπτωση (3), αποδεικνύεται τελικά ότι είναι μια περιοριστική διαδικασία και η περίπτωση (5), μπορεί πολύ εύκολα να συμβεί με μεγάλους παλμούς λέιζερ.

Η γένεση τρίτης αρμονικής σε αέρια έχει επιδειχθεί πειραματικά σε πολλές περιπτώσεις¹⁰. Με 30-psec, 300-MW Nd: YAG παλμούς λέιζερ με βέλτιστη εστίαση σε ένα σημείο 10^{-3}-cm^2 σε ένα 50-cm Rb (3 torr): αγωγός Xe (2000 torr), οι Bloom κ.α.¹¹, παρατήρησαν μια έξοδο τρίτης αρμονικής με προσαρμοσμένη φάση στα 3547 Å, με μια απόδοση μετατροπής 10%. Η ίδια ομάδα παρήγαγε επίσης γένεση τρίτης αρμονικής με προσαρμοσμένη φάση στα 3547 Å σε Na: Mg με 3,8% απόδοση. Έπειτα, παρατηρήθηκε επίσης UV γένεση τρίτης αρμονικής από 5320 ως 1773 Å και από 3547 ως 1182 Å σε Cd: Ar και Xe: αναμίξεις αερίου Ar από τους Kung κ.α.¹², με μέγιστη απόδοση 0,3%.

Αυτή η ανάλυση θα μπορούσε να επεκταθεί σε γένεση αρμονικής υψηλότερης τάξης σε αέρια, παρόλο που απόδοση μετατροπής αναμένεται να είναι πολύ χαμηλή, εξαιτίας των σχετικά μικρών μη γραμμικών επιδεκτικότητων. Προτάθηκε από τον Harris¹³ ότι η σύμφωνη ακτινοβολία υπεριώδους κενού και η ακτινοβολία μαλακών ακτινών-X, θα μπορούσαν να εξαχθούν από τη γένεση 5^{n5} και 7^{n5} αρμονικής σε ατμούς ατόμων. Αυτό επιδείχθηκε αργότερα από τους Reintjes κ.α.¹⁴.

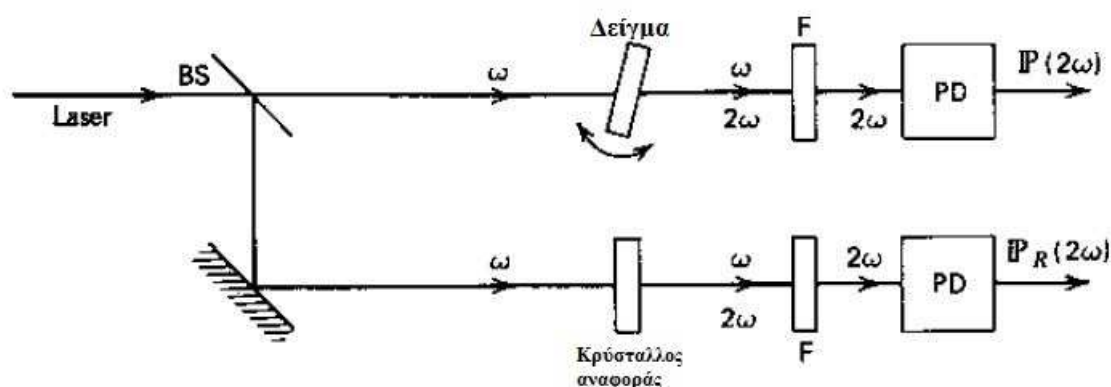
7.5 Μέτρηση μη γραμμικών οπτικών επιδεκτικότητων

Η καθιερωμένη θεωρία γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων και γένεσης αρμονικών μας επιτρέπει να εξάγουμε μη γραμμικές οπτικές επιδεκτικότητες $\chi^{(2)}$ ($\omega = \omega_1 + \omega_2$) και $\chi^{(n)}$ ($n\omega$) από την γένεση αθροίσματος συχνοτήτων και από τη γένεση αρμονικών. Εδώ θα αναλύσουμε τη μέτρηση της $\chi^{(2)}$ (2ω) ως παράδειγμα.

Όπως φαίνεται στην (7.1), το απόλυτο μέγεθος του $|\hat{\epsilon}_{2\omega} \cdot \chi^{(2)} : \hat{\epsilon}_\omega \hat{\epsilon}_\omega|$ μπορεί να εξαχθεί από την ήδη μετρημένη ισχύ εξόδου της δεύτερης αρμονικής, εάν τα $P(\omega)$, A , Δk , z , κ.λ.π. στην (7.1) είναι γνωστά. Έπειτα, επιλέγοντας το σετ πλώσεων $\hat{\epsilon}_\omega$ και $\hat{\epsilon}_{2\omega}$,

κατάλληλα ευθυγραμμισμένο με τον αντίστοιχο προσανατολισμό του κρυστάλλου, το χαρακτηριστικό τανυστικό στοιχείο του $\chi^{(2)}(2\omega)$, μπορεί να βρεθεί. Για πιο ακριβή προσδιορισμό του $\chi^{(2)}(2\omega)$, μετράται η έξοδος δεύτερης αρμονικής $P(2\omega)$ ως συνάρτηση της Δkz , ενώ λαμβάνεται υπόψη και η επίδραση της κατατομής της δέσμης στον υπολογισμό. Παρόλα αυτά, μια απόλυτη μέτρηση είναι πάντα δύσκολη, καθώς τα χαρακτηριστικά της ακτίνας λέιζερ, πρέπει να είναι ιδιαίτερα ακριβή. Αυτό, έχει επιχειρηθεί μόνο σε λίγες περιπτώσεις, κυρίως σε διυδρογονοφωσφορικό αμμώνιο (ADP)¹⁵. Οι μη γραμμικές επιδεκτικότητες των άλλων κρυστάλλων, μπορούν τότε να μετρηθούν σε σύγκριση με το ADP. Συγκεκριμένα, έχει γίνει προσεκτική σύγκριση μεταξύ KDP, χαλαζία και ADP¹⁶, και αυτοί οι τρεις κρύσταλλοι χρησιμοποιούνται πια στις μέρες μας, συχνά, ως υλικά αναφοράς στις μετρήσεις του $\chi^{(2)}$ δεδομένων υλικών.

Μέτρηση μη γραμμικών επιδεκτικότητας



Σχ. 7.6 Πειραματική διάταξη για τη μέτρηση της σχετικής επιδεκτικότητας δεύτερης αρμονικής ενός δείγματος

Στο σχετικό πείραμα, η δέσμη λέιζερ χωρίζεται στα δύο· η μια χρησιμοποιείται για τη γένεση της $P(2\omega)$ στο δείγμα και η άλλη για την γένεση της $P_R(2\omega)$ στον κρύσταλλο αναφοράς (Σχ. 7.6). Ο λόγος των δύο είναι

$$\frac{P(2\omega)}{P_R(2\omega)} = \frac{|\hat{e}_{2\omega} \cdot \chi^{(2)} : \hat{e}_\omega \hat{e}_\omega|^2 \epsilon_R(\omega) \sqrt{\epsilon_R(2\omega)} \sin^2(\Delta k l / 2)}{|\hat{e}_{2\omega} \cdot \chi_R^{(2)} : \hat{e}_\omega \hat{e}_\omega|^2 \epsilon(\omega) \sqrt{\epsilon(2\omega)} (\Delta k / 2)^2} \frac{(\Delta k_R / 2)^2}{\sin^2(\Delta k_R l / 2)} \quad (7.22)$$

υποθέτοντας ότι τα δύο μέλη έχουν ίσες εντάσεις λέιζερ. Εδώ, ο υπο-δείκτης R αναφέρεται στον κρύσταλλο αναφοράς. Με τις άλλες ποσότητες γνωστές, ο λόγος $|\hat{e}_{2\omega} \cdot \chi^{(2)} : \hat{e}_\omega \hat{e}_\omega| / |\hat{e}_{2\omega} \cdot \chi_R^{(2)} : \hat{e}_\omega \hat{e}_\omega|$ μπορεί να προσδιοριστεί από τη μέτρηση της $P(2\omega) / P_R(2\omega)$ ως προς τη Δkl . Όπως φαίνεται στην (7.22), το αποτέλεσμα είναι τώρα ανεξάρτητο

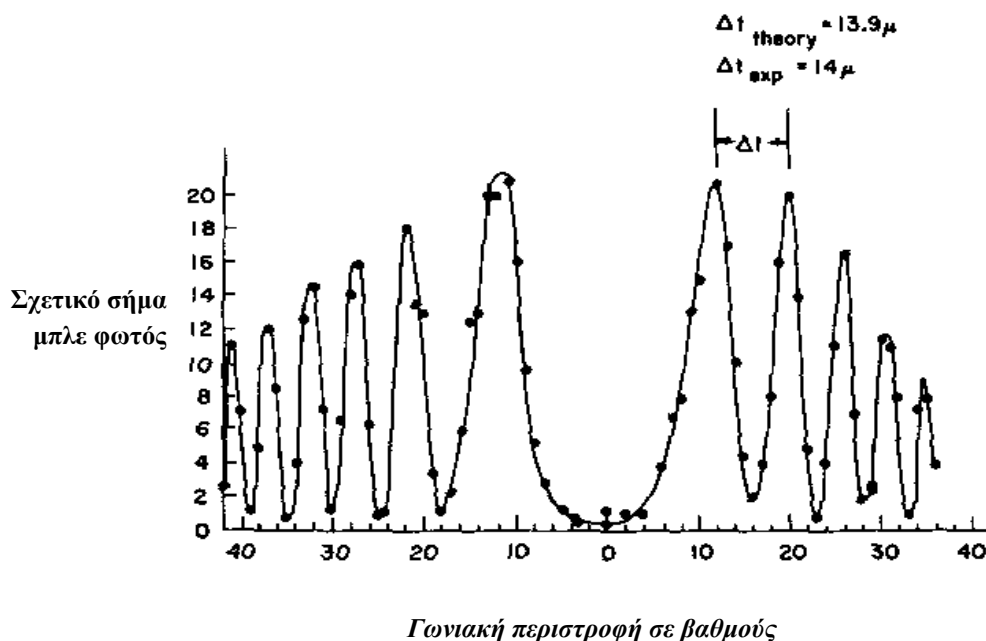
από τα χαρακτηριστικά του λέιζερ. Αυτό κάνει τη μέτρηση πολύ ευκολότερη, αφού η πολύ δύσκολη απόλυτη μέτρηση των χαρακτηριστικών του λέιζερ δεν είναι πλέον απαραίτητη.

Το αποτέλεσμα της $P(2\omega)/P_R(2\omega) \propto \sin^2(\Delta kl/2)$ ως συνάρτηση της Δkl εμφανίζεται ως μια ομάδα από κροσσούς συμβολής, γνωστοί ως οι κροσσοί Maker¹⁷. Συνήθως εξάγεται από περιστροφή μιας πλάκας του δείγματος, παράλληλης προς το επίπεδο γύρω από έναν άξονα. Το ενεργό πάχος του δείγματος δίνεται τότε από το $d \cos\theta$ με d να είναι το πάχος της πλάκας και θ η γωνία μεταξύ της κανονικής διεύθυνσης της πλάκας και της διεύθυνσης διάδοσης της δέσμης. Με $P(2\omega) \propto \sin^2[(\Delta k)d \cos\theta/2]$, οι κροσσοί Maker προκύπτουν από τη διακύμανση της θ . Στην πράξη, επιλέγεται επίσης και ο προσανατολισμός του κρυστάλλου, εάν είναι δυνατό, για να κάνει τη Δk ανεξάρτητη από τη θ . Ένα παράδειγμα φαίνεται στο Σχ. 7.7, όπου μια πλάκα χαλαζία χρησιμοποιείται με τον \hat{c} -άξονά του, παράλληλο προς την μπροστινή πλευρά, να είναι ο άξονας περιστροφής για τη διακύμανση της θ .

Η μη γραμμική επιδεκτικότητα είναι σε γενικές γραμμές μια σύνθετη ποσότητα. Ο παράγοντας φάσης του $\chi_{ijk}^{(2)}$ μπορεί να μετρηθεί από την συμβολή της γένεσης δεύτερης αρμονικής σε δυο πλάκες κρυστάλλων σε σειρά.¹⁸ Έστω ότι το πάχος των δύο κρυστάλλων d_1 και d_2 , αντίστοιχα, διαχωρίζεται μεταξύ τους από απόσταση s . Θεωρούμε ότι υπάρχει προσαρμογή φάσης στον πρώτο κρύσταλλο. Το πεδίο δεύτερης αρμονικής που παράγεται από τον πρώτο κρύσταλλο σε κανονική διεύθυνση είναι

$$E_{2\omega}(d_1) = \frac{i4\pi\omega}{cn_1(2\omega)} \chi_{1,eff}^{(2)} d_1 \mathcal{E}_\omega^2 e^{i2(\omega/c)n_1(\omega)d_1 - i2\omega t} \quad (7.23)$$

Γένεση αρμονικής



Σχ. 7.7 Σχετική ένταση δεύτερης αρμονικής ως συνάρτηση του οπτικού πάχους του κρυστάλλου, επιδεικνύοντας τους κροσσούς Maker. Αλλαγή στο οπτικό πάχος επιτυγχάνεται με τη γωνιακή περιστροφή του κρυστάλλου (Βιβλ. Αναφ. 17)

Τα πεδία εισόδου στην είσοδο του δεύτερου κρυστάλλου είναι

$$E_{\omega}(d_1 + s) = \mathcal{E}_{\omega} e^{i(\omega/c)[n_1(\omega)d_1 + n_0(\omega)s] - i\omega t}$$

$$E_{2\omega}(d_1 + s) = E_{2\omega}(d_1) e^{i(2\omega/c)n_0(2\omega)s} \quad (7.24)$$

όπου n_0 είναι ο δείκτης διάθλασης του μέσου μεταξύ δυο κρυστάλλων. Έπειτα, η έξοδος της δεύτερης αρμονικής από τον δεύτερο κρύσταλλο είναι

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(2\omega) &\propto |E_{2\omega}(d_1 + s) + \frac{4\pi\omega}{cn_2(2\omega)\Delta k} \chi_{2,\text{eff}}^{(2)} d_2 E_{\omega}^2(d_1 + s) (e^{i\Delta k d_2} - 1)|^2 \\ &= \left| \frac{4\pi\omega}{c} \mathcal{E}_{\omega}^2 \right|^2 \left| \frac{id_1}{n_1(2\omega)} \chi_{1,\text{eff}}^{(2)} e^{i(2\omega/c)[n_0(2\omega) - n_0(\omega)]s} \right. \\ &\quad \left. + \frac{d_2}{n_2(2\omega)\Delta k} (e^{i\Delta k d_2} - 1) \chi_{2,\text{eff}}^{(2)} \right|^2. \end{aligned} \quad (7.25)$$

Η έκφραση (7.25) δείχνει ότι η $P(2\omega)$ εξαρτάται από τη σχετική φάση των ενεργών μη γραμμικών επιδεκτικότητας των δυο κρυστάλλων $\chi_{1,\text{eff}}^{(2)}$ και $\chi_{2,\text{eff}}^{(2)}$. Εάν οι κρύσταλλοι ενσωματωθούν σε έναν κλειστό θάλαμο γεμάτο με ένα γνωστό αέριο και η πίεση του αερίου είναι κυμαινόμενη, τότε, εξαιτίας της διασποράς του αερίου, $n_o(2\omega) \neq n_o(\omega)$, η σχετική φάση των δυο αερίων στην (7.25) θα ποικίλει, καταλήγοντας σε ένα σετ κορυφών συμβολής. Αυτή η παρατηρούμενη συμβολή στην $P(2\omega)$ ως προς $[n_o(2\omega) - n_o(\omega)]s$, μας επιτρέπει να καθορίσουμε τη σχετική φάση των $\chi_{1,\text{eff}}^{(2)}$ και $\chi_{2,\text{eff}}^{(2)}$. Συνήθως, το $\chi_{ZZX}^{(2)}$ του KDP χρησιμοποιείται ως αναφορά. Για έναν μη απορροφητικό κρύσταλλο, το $\chi_{ijk}^{(2)}$ είναι πραγματικό, είτε θετικό είτε αρνητικό. Στον Πίνακα 7.1, παραθέτουμε τις τιμές του $\chi_{ijk}^{(2)}$ για έναν αριθμό μη γραμμικών οπτικών κρυστάλλων που συναντώνται σε ευρεία κλίμακα.

Πίνακας 7.1

Επιλεγμένες μη γραμμικές επιδεκτικότητες δεύτερης αρμονικής για έναν αριθμό κρυστάλλων

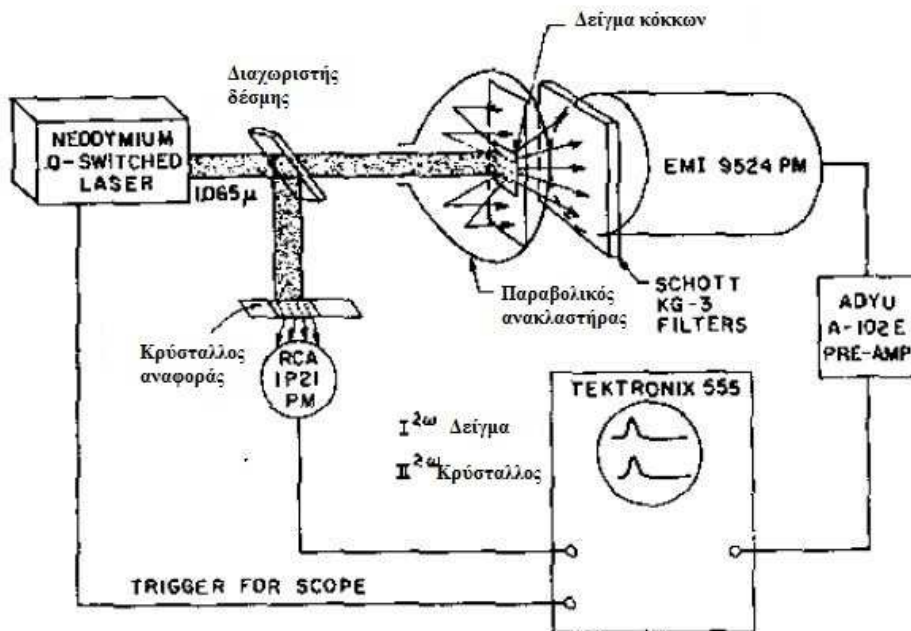
Υλικό	Τάξη συμμετρίας	$\chi^{(2)} \left(\frac{3}{4\pi} \times 10^{-8} \text{ esu} \right)^a$	Βασικό μήκος κύματος (μm)
$\alpha\text{-SiO}_2$ (quartz)	$32-D_3$	$\chi_{xxx}^{(2)} = 0.8 \pm 0.04$ $\chi_{xyz}^{(2)} = 0.018$	1.0582
Te	$32-D_3$	$\chi_{xxx}^{(2)} = 10^4$	10.6
$\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$	$nm2-C_{2v}$	$\chi_{xxx}^{(2)} = -29.1 \pm 1.5$ $\chi_{xyy}^{(2)} = -29.1 \pm 2.9$ $\chi_{zzz}^{(2)} = -40 \pm 2.9$	1.0642
LiNbO_3	$3m-C_{3v}$	$\chi_{yyy}^{(2)} = 6.14 \pm 0.56$ $\chi_{xxx}^{(2)} = -11.6 \pm 1.7$ $\chi_{zzz}^{(2)} = 81.4 \pm 21$	1.0582
BaTiO_3	$4mm-C_{4v}$	$\chi_{xxx}^{(2)} = -34.4 \pm 2.8$ $\chi_{zzz}^{(2)} = -36 \pm 2.8$ $\chi_{zzz}^{(2)} = -13.2 \pm 1$	1.0582
$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (ADP)	$42m-D_{2d}$	$\chi_{xyz}^{(2)} = 0.96 \pm 0.05$ $\chi_{zxy}^{(2)} = 0.97 \pm 0.06$	0.6943
KH_2PO_4 (KDP)	$\bar{4}2m-D_{2d}$	$\chi_{xyz}^{(2)} = 0.98 \pm 0.04$ $\chi_{zxy}^{(2)} = 0.94$	1.0582
ZnO	$6mm-C_{6v}$	$\chi_{xxx}^{(2)} = 4.2 \pm 0.4$ $\chi_{zzz}^{(2)} = 4.6 \pm 0.4$ $\chi_{zzz}^{(2)} = -14.0 \pm 0.4$	1.0582
LiIO_3	$6-C_6$	$\chi_{xxx}^{(2)} = -11.2 \pm 0.6$ $\chi_{zzz}^{(2)} = -8.4 \pm 2.8$	1.0642
CdSe	$6mm-C_{6v}$	$\chi_{xxx}^{(2)} = 62 \pm 15$ $\chi_{zzz}^{(2)} = 57 \pm 13$ $\chi_{zzz}^{(2)} = 109 \pm 25$	10.6
GaAs	$\bar{4}3m-T_d$	$\chi_{xyz}^{(2)} = 377 \pm 38$	10.6
GaP	$\bar{4}3m-T_d$	$\chi_{xyz}^{(2)} = 70$	3.39

Οι τιμές του $\chi^{(2)}$ έχουν παρθεί από το βιβλίο του R.J. Pressley, «Εγχειρίδιο των Λείζερ» (Chemical Rubber Co., Κλίβελαντ, Οχάιο, 1971), σελ. 497. Ως σύμβαση έχουμε θεωρήσει ότι το $\chi^{(2)}$ εδώ, είναι δυο φορές μεγαλύτερο από τους συντελεστές d που δίνονται στη βιβλιογραφία. Να σημειωθεί ότι το $\chi^{(2)}$ esu εδώ, σχετίζεται με το $\chi^{(2)}(m/v)$ μέσω του $\chi^{(2)}(esu) = 3/4\pi \times 10^4 \chi^{(2)}(m/v)$.

Για απορροφητικούς κρυστάλλους, το $\chi^{(2)}_{ijk}$ είναι σύνθετο και η μέτρηση της ανάκλασης της δεύτερης αρμονικής από την επιφάνεια, με τη βοήθεια της θεωρίας που αναπτύχθηκε στην Ενότητα 6.4, χρησιμοποιείται συχνά για να βρεθεί το $\chi^{(2)}_{ijk}$. Επίσης, η τεχνική συμβολής μπορεί να υιοθετηθεί για να μετρηθεί η φάση του $\chi^{(2)}_{ijk}$.

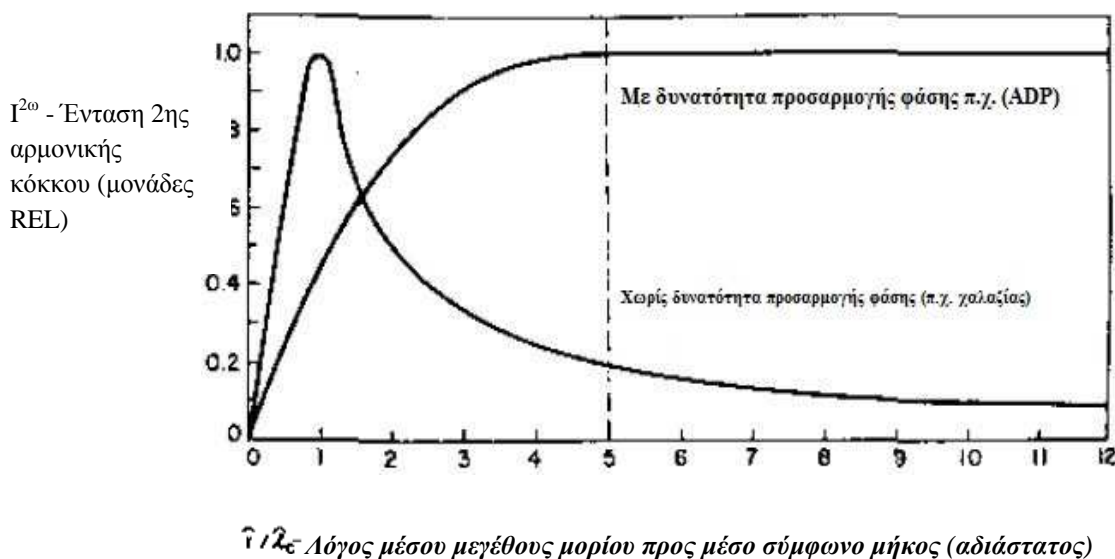
Οι προηγούμενες μέθοδοι επιτρέπουν ακριβή σχετική ή απόλυτη μέτρηση του $\chi^{(2)}_{ijk}$, αλλά για να μελετηθεί ο κρύσταλλος, θα πρέπει να είναι αξιοσημείωτου μεγέθους και καλής ποιότητας. Στην πράξη, όμως, απαιτείται ειδική προσπάθεια για να αναπτύξει ο κρύσταλλος μεγάλες διαστάσεις. Είναι επομένως σημαντικό, οι μη γραμμικές οπτικές σταθερές του κρυστάλλου, να μπορούν με κάποιον τρόπο να υπολογιστούν εκ των προτέρων. Η μέθοδος κόκκων που αναπτύχθηκε από τον Kurtz²⁰ είναι πιο χρήσιμη για αυτήν την περίπτωση.

Το Σχ. 7.8 δείχνει την πειραματική διάταξη. Δείγμα από αυτούς τους κόκκους εσωκλείεται σε ένα λεπτό κελί συγκεκριμένου πάχους, και συλλέγεται η έξοδος δεύτερης αρμονικής από το δείγμα, για όλη την στερεά γωνία 4π . Η έξοδος μετράται σε σχέση με τη γένεση της δεύτερης αρμονικής σε έναν κρύσταλλο αναφοράς. Η επιθυμητή πληροφορία μπορεί να εξαχθεί από τη μέτρηση της εξόδου της δεύτερης αρμονικής, ως συνάρτηση του μεγέθους του μορίου των κόκκων. Για ένα μέσο μέγεθος μορίου \bar{r} πολύ μικρότερο από το μέσο σύμφωνο μήκος, που ορίζεται από $\bar{l}_{coh} = \pi / \Delta k = \pi c / \omega[\bar{n}(2\omega) - \bar{n}(\omega)]$, η έξοδος δεύτερης αρμονικής $P(2\omega)$ αυξάνει σχεδόν γραμμικά με \bar{r} , αφού ουσιαστικά, όλα τα μόρια στη δέσμη έχουν προσαρμογή φάσης, ενώ ο αριθμός των μορίων στη διαδρομή του φωτός μειώνεται αντιστρόφως ανάλογα με το \bar{r} . Καθώς το \bar{r} γίνεται μεγαλύτερο από το \bar{l}_{coh} , η έξοδος $P(2\omega)$ μπορεί να αυξηθεί περαιτέρω, αν το υλικό είναι τέτοιο, που να μπορεί να εφαρμοστεί προσαρμογή φάσης. Αυτό συμβαίνει, επειδή μερικά μόρια, στη διαδρομή του φωτός, θα πρέπει να έχουν σωστό προσανατολισμό για προσαρμογή φάσης. Η έξοδος, όμως, δείχνει κορεσμό, καθώς η αντίστοιχη μείωση στον αριθμό των μορίων στη διαδρομή του φωτός περιορίζει το κέρδος της $P(2\omega)$ (Σχ. 7.9).



Σχ. 7.8 Σχηματική αναπαράσταση της συσκευής που χρησιμοποιήθηκε στη μέτρηση με κόκκους της μη γραμμικότητας δευτέρας τάξης. (S.K. Kurtz, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-4, 578 (1968)).

Γένεση δεύτερης αρμονικής με υπερβραχείς παλμούς



Σχ. 7.9 Τυπική έξοδος δεύτερης αρμονικής ως συνάρτηση κανονικοποιημένου μεγέθους μορίου για κόκκους κρυστάλλων με ή χωρίς δυνατότητα προσαρμογής φάσης. (S.K. Kurtz, *IEEE JQuant. Electron.* QE-4, 578 (1968)).

Για υλικά χωρίς δυνατότητα προσαρμογής φάσης, η έξοδος από κάθε μόριο παθαίνει κορεσμό, όταν $\bar{F} > \bar{F}_{coh}$, και επομένως η $P(2\omega)$ θα πρέπει να μειώνεται αντιστρόφως ανάλογα με το \bar{F} , σαν αποτέλεσμα της μείωσης του αριθμού των μορίων στη διαδρομή

του φωτός, όπως φαίνεται στο Σχ.7.9. Με αυτήν την τεχνική, έχουν εξερευνηθεί πολλά υλικά. Μπορούν να χωριστούν σε πέντε ομάδες:²⁰ κεντροσυμμετρικά, με δυνατότητα προσαρμογής φάσης, χωρίς δυνατότητα προσαρμογής φάσης, με μεγάλο μη γραμμικό συντελεστή και με μικρό μη γραμμικό συντελεστή.

7.6 Γένεση δεύτερης αρμονικής με υπερβραχείς παλμούς

Η γένεση δεύτερης αρμονικής με υπερβραχείς παλμούς απαιτεί κάποια ειδική μελέτη. Με μήκος παλμού μικρότερο από το μήκος του μέσου, η μη γραμμική πόλωση ποικίλει κατά πολύ κατά μήκος, σε έναν δοσμένο χρόνο. Η μόνη απλή περίπτωση συμβαίνει όταν οι ταχύτητες ομάδων των προπορευόμενων διαδιδόμενων κυμάτων θεμελιώδους και δεύτερης αρμονικής, είναι ίδιες. Τότε, οι δυο παλμοί θα διαδίδονται μαζί και θα αλληλεπιδρούν μεταξύ τους, σα να ήταν στατικό το πρόβλημα. Αυτή είναι η ημιστατική περίπτωση. Η λύση είναι πανομοιότυπη με αυτή της στατικής περίπτωσης, αν το $z - v_g t$ αντικαταστήσει το z , όπου v_g είναι η ταχύτητα ομάδας. Εάν η διασπορά ταχύτητας ομάδας δεν είναι αμελητέα, τότε η λύση γίνεται πολύ πιο πολύπλοκη. Από φυσικής άποψης, η μη προσαρμογή της ταχύτητας προκαλεί μετατόπιση του θεμελιώδους παλμού ως προς τον παλμό δεύτερης αρμονικής, καθώς διαδίδονται μαζί. Το γεγονός αυτό, μειώνει την ενεργό αλληλεπίδραση μήκους και ελαττώνει την απόδοση μετατροπής.^{21, 22}

Οι Akhmanov κ.α.²¹ έχουν εργαστεί πάνω σε μια αναλυτική μαθηματική αντιμετώπιση του προβλήματος. Άπειρα επίπεδα κύματα διαδίδονται κατά μήκος του z με υποθετικά βραδέως μεταβαλλόμενα πλάτη. Όπως φάνηκε από την Ενότητα 3.5, η διάδοση παλμού ενός κύματος, $\mathcal{E}(z,t)\exp[ikz - i\omega t]$, σε ένα μη γραμμικό μέσο μπορεί να περιγραφεί από την σχέση

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} - \frac{1}{v_g} \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t} = \frac{i2\pi\omega^2}{kc^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(z, t) e^{-i(kz - \omega t)}. \quad (7.26)$$

Στην παρούσα περίπτωση, οι ταχύτητες ομάδων των κυμάτων θεμελιώδους και δεύτερης αρμονικής είναι v_{1g} και v_{2g} , αντίστοιχα. Εάν χρησιμοποιήσουμε ως ανεξάρτητες μεταβλητές, τις z και $\eta \equiv t - z/v_{1g}$ αντί για z και t , τότε οι κυματικές εξισώσεις που διέπουν τα πλάτη των κυμάτων θεμελιώδους και δεύτερης αρμονικής $\mathcal{E}_\omega(z, \eta)$ και $\mathcal{E}_{2\omega}(z, \eta)$ σε κατάσταση προσαρμογής φάσης, γίνονται

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathcal{E}_\omega}{\partial z} &= \sigma \mathcal{E}_\omega \mathcal{E}_{2\omega}, \\ \frac{\partial \mathcal{E}_{2\omega}}{\partial z} + \nu \frac{\partial \mathcal{E}_{2\omega}}{\partial \eta} &= -\sigma \mathcal{E}_\omega^2 \end{aligned} \quad (7.27)$$

όπου $\nu = v_{2\mathbf{k}}^{-1} - v_{1\mathbf{k}}^{-1}$ και $\sigma = (2\pi\omega^2/k_1c^2)\hat{\mathbf{e}}_{2\omega} \cdot \chi^{(2)} : \hat{\mathbf{e}}_\omega \hat{\mathbf{e}}_\omega$, θεωρώντας $\mathcal{E}_{2\omega}(z=0) = 0$. Η λύση της (7.27) είναι σημαντική. Οι Akhmanov κ.α.²¹ έδειξαν ότι οι συζευγμένες μη γραμμικές εξισώσεις μπορούν να συνδυαστούν σε μια μονή διαφορική εξίσωση δεύτερης τάξης

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \left(\frac{1}{\mathcal{E}_\omega} \right) = F(\eta - \nu z) \frac{1}{\mathcal{E}_\omega} \quad (7.28)$$

όπου $F(\eta - \nu z) = \sigma^2(\mathcal{E}_\omega^2 + \mathcal{E}_{2\omega}^2) + \sigma\nu \partial \mathcal{E}_{2\omega} / \partial \eta$ είναι μια συνάρτηση μόνο του $(\eta - \nu z)$, όπως μπορεί να φανεί από τη μηδενιζόμενη Γιακομπιανή

$$\begin{vmatrix} \frac{\partial F}{\partial \eta}, & \frac{\partial F}{\partial z} \\ \frac{\partial}{\partial \eta}(\eta - \nu z), & \frac{\partial}{\partial z}(\eta - \nu z) \end{vmatrix} = 0$$

Η εξίσωση (7.28) είναι τώρα μια γραμμική εξίσωση με έναν κυμαινόμενο συντελεστή F . Μπορεί να λυθεί αναλυτικά για μια αυθαίρετα μεγάλη απόδοση μετατροπής.

Έστω ότι ο βασικός παλμός στο $z = 0$ παίρνει τη μορφή

$$\mathcal{E}_\omega(t) = A / \left(1 + \frac{t^2}{\tau^2} \right) \quad (7.29)$$

Εδώ, τ είναι το πλάτος παλμού. Επιπλέον, καθορίζουμε έναν αριθμό χαρακτηριστικών μηκών για το πρόβλημα: L είναι το μήκος του μέσου, $L_{NL} = 1/\sigma A$ η αλληλεπίδραση μήκους, όπου το 75% της βασικής ισχύος μετατρέπεται σε ισχύ δεύτερης αρμονικής στη στατική περίπτωση, $L_\nu = \tau/\nu$ είναι η απόσταση διάδοσης πάνω από την οποία, η αλληλοεπικάλυψη πλάτους των παλμών θεμελιώδους και δεύτερης αρμονικής ξεχωρίζουν ξεκάθαρα η μια από την άλλη. Με ένα νέο σετ μεταβλητών $\bar{\eta} \equiv \eta/\tau$, $\bar{z} \equiv z/L_\nu$, $\tau_{cr} \equiv \nu L_{NL}$, $f \equiv (\tau^2/\tau_{cr}^2 - 1)^{1/2}$ και $\xi \equiv [\tau^2/\tau_{cr}^2 - 1]^{1/2} \times [\tan^{-1}\bar{\eta} - \tan^{-1}(\bar{\eta} - \bar{z})]$, η λύση της (7.27) έχει τη μορφή

$$\mathcal{E}_\omega = \frac{A}{(1 + \tilde{\eta}^2)^{1/2} [1 + (\tilde{\eta} - \tilde{z})^2]^{1/2}} \left\{ \cosh \xi + \frac{\tilde{\eta}}{f} \sinh \xi \right\}^{-1}$$

$$\mathcal{E}_{2\omega} = A \frac{\tau_{cr}}{\tau} \left\{ \frac{\tilde{z} \cosh \xi + [f - \tilde{\eta}(\tilde{\eta} - \tilde{z})/f] \sinh \xi}{\cosh \xi + (\tilde{\eta}/f) \sinh \xi} \right\} / [1 + (\tilde{\eta} - \tilde{z})^2] \quad (7.30)$$

Όταν $L_v \gg L_{NL}$ ($\tau \gg \tau_{cr}$), η διασπορά ταχύτητας ομάδας είναι ξεκάθαρα αμελητέα, όσον αφορά την γένεση της δεύτερης αρμονικής. Σε αυτήν την ημι-στατική περίπτωση, η λύση στην (7.30) γίνεται

$$\mathcal{E}_\omega(z, \eta) = \frac{A}{1 + \tilde{\eta}^2} \operatorname{sech} \left[\frac{z}{(1 + \tilde{\eta}^2) L_{NL}} \right]$$

$$\mathcal{E}_{2\omega}(z, \eta) = \frac{A}{1 + \tilde{\eta}^2} \tanh \left[\frac{z}{(1 + \tilde{\eta}^2) L_{NL}} \right] \quad (7.31)$$

Τότε, το πλάτος παλμού δεύτερης αρμονικής είναι σχεδόν το μισό από αυτό της θεμελιώδους.

Όταν $L_v \cong L_{NL}$, η μη προσαρμογή της ταχύτητας ομάδας γίνεται σημαντική, και η γενική λύση της (7.30) πρέπει να χρησιμοποιηθεί. Υπάρχει μια σχετική μετατόπιση μεταξύ των παλμών θεμελιώδους και δεύτερης αρμονικής. Συνεπώς, η απόδοση μετατροπής μειώνεται, και ο παλμός δεύτερης αρμονικής διευρύνεται. Αυτό έχει επιβεβαιωθεί και πειραματικά²³. Από την άλλη μεριά, μπορεί κάποιος να χρησιμοποιήσει την έλλειψη προσαρμογής ταχύτητας ομάδας για να οξύνει έναν παλμό εισόδου δεύτερης αρμονικής μέσω ενίσχυσης. Εάν ο παλμός της θεμελιώδους είναι σημαντικά μακρύτερος από τον παλμό δεύτερης αρμονικής, και αν $v_{g2} > v_{g1}$, τότε οι δυο παλμοί μπορούν να διαταχθούν κατά τέτοιο τρόπο, που η ακμή οδήγησης του παλμού δεύτερης αρμονικής, να βλέπει πάντα το μη μειωμένο μέρος του παλμού θεμελιώδους και να ενισχύεται περισσότερο από την καθυστερημένη ακμή, καταλήγοντας σε μια οξύτερη έξοδο του παλμού.

Η μη προσαρμογή της ταχύτητας ομάδας είναι γενικά πιο σημαντική για υψηλότερες συχνότητες, λόγω της ανώμαλης διασποράς που προκαλείται από φάσματα απορρόφησης στην περιοχή UV. Για διάδοση παλμού 1-psec σε έναν KDP, για παράδειγμα, το $L_v \cong 3 \text{ cm}$ για $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ και $L_v \cong 0,3 \text{ cm}$ για $\lambda = 0,53 \mu\text{m}$. Επομένως, η

επίδραση της ταχύτητας ομάδας είναι πολύ πιο σημαντική για διπλασιασμό συχνότητας παλμών picosecond εντός της περιοχής UV.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing & P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 127, 1918 (1962); N. Bloembergen, *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965), p. 85.
2. J. Reintjes & R.C. Eckardt, *Appl. Phys. Lett.* 30, 91 (1977).
3. R.L. Byer & R.L. Herbst, in Y.R. Shen, ed., *Nonlinear Infrared Generation* (Springer-Verlag, Berlin, 1977), p. 81.
4. G.D. Boyd & D.A. Kleinman, J., *Appl. Phys.* 39, 3597 (1968).
5. D.R. White, E.L. Dawes & J.H. Marburger, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-6, 793 (1970).
6. R.S. Adhav & R.W. Wallace, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-9, 855 (1973).
7. R.W. Terhune, *Solid State Design* 5, 38 (1963).
8. Δες, για παράδειγμα, το κριτικό άρθρο του R. Piston, *Laser Focus* 14 (7), 66 (1978).
9. R.B. Miles & S.E. Harris, *Appl. Phys. Lett.* 19, 385 (1971); *IEEE J. Quant. Electron.* QE-9, 470 (1973).
10. J.F. Young, G.C. Bjokland, A.H. Kung, R.B. Miles & S.E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* 27, 1551 (1971).
11. D.M. Bloom, G.W. Bekkers, J.F. Young & S.E. Harris, *Appl. Phys. Lett.* 26, 687 (1975); D.M. Bloom, J.F. Young & S.E. Harris, *Appl. Phys. Lett.* 27, 390 (1975).
12. A.H. Kung, J.F. Young, G.C. Bjokland & S.E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* 29, 985 (1972); A.H. Kung, J.F. Young & S.E. Harris, *Appl. Phys. Lett.* 22, 301 (1973) [Erratum: 28, 239 (1976)].
13. S.E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* 31, 341 (1973).
14. J. Reintjes, C.Y. She, R.C. Eckardt, N.E. Karangelen, R.C. Elton & A.A. Andrews, *Phys. Rev. Lett.* 37, 1540 (1976); *Appl. Phys. Lett.* 30, 480 (1977).
15. G.E. Francois, *Phys. Rev.* 143, 597 (1966); J.E. Bjorkholm & A.E. Siegman, *Phys. Rev.* 154, 851 (1967).
16. J. Jerphagnon & S.K. Kurtz, *Phys. Rev.* B1, 1739 (1970).
17. P.D. Maker, R.W. Terhune, M. Nisenoff & C.M. Savage, *Phys. Rev. Lett.* 8, 21 (1962).
18. J.J. Wynne & N. Bloembergen, *Phys. Rev.* 188, 1211 (1969); R.C. Miller & W.A. Nordland, *Phys. Rev.* B2, 4896 (1970).

19. J. Ducuing & N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.* 10, 474 (1963); R.K. Chang & N. Bloembergen, *Phys. Rev.* 144, 775 (1966).
20. S.K. Kurtz & T.T. Perry, *J. Appl. Phys.* 39, 3798 (1968); S.K. Kurtz, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-4, 578 (1968).
21. S.A. Akhmanov, A.S. Chirkin, K.N. Drabovich, A.I. Kovrygin, R.V. Khokhlov & A.P. Sukhorukov, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-4, 598 (1968).
22. J. Comly & E. Garmire, *Appl. Phys. Lett.* 12, 7 (1968).
23. S. Shapiro, *Appl. Phys. Lett.* 13, 19 (1968).

Βιβλιογραφία

- Akhamanov, S.A., A.I. Kovrygin & A.P. Sukhorukov, in H. Rabin & C.L. Tang eds., *Quantum Electronics* (Academic Press, New York, 1972), Vol. 1, p. 476.
- Bloembergen, N., *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
- Kleinman, D.A., in F.T. Arecchi & E.O. Schutz-Dubois, eds., *Laser Handbook* (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 1229.
- Pressley, R.J., ed., *Handbook of Lasers*, (Chemical Rubber Co., Cleveland, Ohio, 1971), p. 489.
- Zernike, F., & J.E. Midwinter, "Applied Nonlinear Optics" (Wiley, New York, 1973).

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 8 – Γένεση Διαφοράς Συχνοτήτων

Θεωρητικά, η γένεση διαφοράς συχνοτήτων, δεν διαφέρει και πολύ από τη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων, αλλά το πρόβλημα από μόνο του είναι σημαντικό από τεχνικής άποψης, καθώς παρέχει ένα μέσο παραγωγής έντονης σύμφωνης ρυθμιζόμενης ακτινοβολίας, στο φάσμα των υπερύθρων. Κατά παράδοση, η ακτινοβολία μέλανος σώματος είναι η μόνη, πρακτικά, πηγή υπερύθρων. Παρόλα αυτά, καθώς διέπεται από την κατανομή Planck, έχει αδύναμη ισχύ ακτινοβολίας στο μέσο και μακρινό υπέρυθρο φάσμα. Μια ακτινοβολία μέλανος σώματος 1-cm^2 , 5000K ακτινοβολεί 3500W σε μια επιφάνεια στερεού 4π , αλλά το περιεχόμενο του μακρινού υπέρυθρου φάσματός του στο πλάτος ζώνης $50 \pm 1\text{cm}^{-1}$ είναι μόνο $3 \times 10^{-6} \text{ W/cm}^2 \text{ sterad}$. Τα υπέρυθρα λέιζερ μπορεί να φαίνονται ότι έχουν όλες τις επιθυμητές ιδιότητες ως πηγές υπερύθρων, αλλά η έξοδος των συχνοτήτων τους είναι γενικά διακριτή, με σχεδόν μηδενική δυνατότητα ρύθμισης. Η ρυθμιζόμενη υπέρυθρη ακτινοβολία, μπορεί παρόλα αυτά, να παραχθεί μέσω της γένεσης διαφοράς συχνοτήτων. Η γένεση διαφοράς συχνοτήτων είναι σύμφωνη με τη μέση υψηλή ή ένταση κορυφής, ιδιότητα που μπορεί να βρει πολλές εφαρμογές στο πεδίο των υπέρυθρων επιστημών. Το κεφάλαιο αυτό, πραγματεύεται κυρίως τη γένεση υπερύθρων μέσω της ανάμιξης διαφοράς συχνοτήτων. Το φαινόμενο της περίθλασης μελετάται στο όριο του μεγάλου μήκους κύματος. Η γένεση μακρινών υπερύθρων από υπερβραχείς παλμούς είναι ένα θέμα, που επίσης αναλύεται.

8.1 Λύση επίπεδου κύματος

Στην προσέγγιση του άπειρου επίπεδου κύματος, η θεωρία για τη γένεση διαφοράς συχνοτήτων ακολουθεί σχεδόν ακριβώς, την θεωρία της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων, αν οι εντάσεις αντλίας μπορούν να προσεγγιστούν ως σταθερά. Τότε, η ισχύς εξόδου στην $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ που παράγεται στο σύνολο είναι $P(\omega_2, z)$

$$= \frac{8\pi^3\omega_2^2}{c^3\sqrt{\epsilon(\omega_1)\epsilon(\omega_2)\epsilon(\omega_3)}} |\hat{e}_2 \cdot \chi^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1) : \hat{e}_3 \hat{e}_1|^2 \frac{\sin^2(\Delta kz/2)}{(\Delta kz/2)^2} z^2 \times \frac{\mathbf{P}(\omega_1)\mathbf{P}(\omega_3)}{A}. \quad (8.1)$$

Με προσαρμογή φάσης και με την παρουσία σημαντικής μείωσης αντλίας, η λύση της ενότητας 6.7, πρέπει να χρησιμοποιηθεί. Όμως, η συνηθισμένη αρχική συνοριακή

συνθήκη είναι $u_2(z=0) = 0$ [δηλ. $\mathcal{E}_2(0)=0$, η σημειογραφία εδώ ακολουθεί αυτήν της Ενότητας 6.7] στην παρούσα περίπτωση. Η εξίσωση που πρέπει να λυθεί, γίνεται ($\theta=-\pi/2$)

$$\frac{du_2^2}{d\xi} = +2[u_2^2(m_1 - u_2^2)(m_3 + u_2^2)]^{1/2} \quad (8.2)$$

με $m_1 = u_3^2(0)$ και $m_3 = u_1^2(0)$. Η λύση παίρνει τη μορφή

$$\begin{aligned} u_2^2(\xi) &= -u_1^2(0)\text{sn}^2[iu_3(0)\xi, \gamma], \\ u_1^2(\xi) &= u_1^2(0) - u_1^2(0)\text{sn}^2[iu_3(0)\xi, \gamma], \\ u_3^2(\xi) &= u_3^2(0) + u_1^2(0)\text{sn}^2[iu_3(0)\xi, \gamma] \end{aligned} \quad (8.3)$$

$$\begin{aligned} \text{sn}^{-1}\left(\frac{iu_2}{u_1(0), \gamma}\right) &= \int_0^{iu_2/u_1(0)} \frac{dy}{[(1-y^2)(1-\gamma^2y^2)]^{1/2}} \\ \gamma &= \frac{iu_1(0)}{u_3(0)}. \end{aligned}$$

όπου

Στην ιδιαίτερη απλώς περίπτωση όπου $u_2^2(\xi) \ll u_3^2(0)$ ή $|\gamma^2y^2| \ll 1$, έχουμε $\text{sn}[iu_3(0)\xi] \cong i\sinh[u_3(0)\xi]$ και επομένως

$$\begin{aligned} u_2^2(\xi) &= u_1^2(0)\sinh^2[u_3(0)\xi], \\ u_1^2(\xi) &= u_1^2(0)\cosh^2[u_3(0)\xi], \\ u_3^2(\xi) &= u_3^2(0) - u_1^2(0)\sinh^2[u_3(0)\xi] \cong u_3^2(0). \end{aligned} \quad (8.4)$$

Για $|u_3(0)\xi| \ll 1$, αυτή η λύση οδηγεί στην (8.1) με $\Delta k=0$. Τα παραπάνω αποτελέσματα μπορούν φυσικά να εξαχθούν άμεσα από τις συζευγμένες κυματικές εξισώσεις της (6.25), θέτοντας \mathcal{E}_3 ως σταθερά. Η πιο γενική λύση με $\mathcal{E}_3 \cong$ σταθερά, $\mathcal{E}_1(0) \neq 0$, $\mathcal{E}_2(0) \neq 0$, και $\Delta k \neq 0$, μπορεί επίσης να εξαχθεί, αλλά αυτό το αφήνουμε για το επόμενο κεφάλαιο, όπου εκεί θα γίνει μια σύνδεση με την παραμετρική ενίσχυση.

Η προσέγγιση του επίπεδου κύματος, που υιοθετήθηκε εδώ, είναι καλή, εφόσον το μήκος κύματος εξόδου είναι πολύ μικρότερο από την διατομή της δέσμης. Τα προηγούμενα αποτελέσματα περιγράφουν αρκετά καλά τη γένεση για το μέσο και εγγύς υπέρυθρο, μέσω της ανάμιξης διαφοράς συχνοτήτων. Οι πειραματικές αναφορές στο θέμα

αυτό είναι πολλές και υπάρχουν πολλές περιλήψεις τους σε πρόσφατα άρθρα.^{1,2} Ένα σημαντικό γεγονός που πρέπει να συνειδητοποιήσουμε είναι ότι η απόδοση της γένεσης υπερύθρων αναμένεται να είναι χαμηλή, εξαιτίας της εξάρτησής της από το τετράγωνο της συχνότητας εξόδου, όπως φαίνεται στην (8.1).

8.2 Γένεση μακρινού υπερύθρου μέσω ανάμιξης διαφοράς συχνοτήτων

Η προσέγγιση του άπειρου επίπεδου κύματος παύει να ισχύει για γένεση μακρινού υπερύθρου στο όριο μεγάλου μήκους κύματος, καθώς η διάθλαση γίνεται σημαντική, όταν η διάμετρος της δέσμης αντλίας γίνεται συγκρίσιμη με το μήκος κύματος μακρινού υπερύθρου. Πρέπει να βρεθεί μια καλύτερη λύση της κυματικής εξίσωσης

$$\left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_2^2}{c^2} \epsilon(\omega_2) \cdot \right] \mathbf{E}(\omega_2) = \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \mathbf{P}^{(2)}(\omega_2) \quad (8.5)$$

με $P^{(2)}(\omega_2) = \chi^{(2)}(\omega_2 \approx \omega_3 - \omega_1) : E(\omega_3)E^*(\omega_1)$. Αφού η απόδοση μετατροπής αναμένεται να είναι μικρή εξαιτίας της μικρής ω_2 , η μείωση του πεδίου αντλίας μπορεί να αγνοηθεί και το πλάτος του $P^{(2)}$ μπορεί να θεωρηθεί ανεξάρτητο της διάδοσης.

Αν αγνοηθούν οι συνοριακές ανακλάσεις, υποθέτοντας ότι ο μη γραμμικός κρύσταλλος ενσωματώνεται σε ένα άπειρο γραμμικό μέσο με προσαρμογή δείκτη, η λύση μακρινού υπερύθρου της (8.5) αποκτά την οικεία μορφή⁵

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_2) = \left(\frac{\omega_2}{c} \right)^2 \int_V d^3r' (1 - \hat{r}\hat{r}') \cdot \frac{\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}', \omega_2) e^{ik_2|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \quad (8.6)$$

όπου V είναι ο όγκος της αλληλεπίδρασης των πεδίων αντλίας στο μη γραμμικό μέσο. Με $P^{(2)}(\mathbf{r}', \omega_2)$ γνωστό, το $E(\mathbf{r}, \omega_2)$ μπορεί να υπολογιστεί. Σκεφτείτε, για παράδειγμα, την περίπτωση όπου τα πεδία αντλίας $E(\omega_1) \approx \mathbf{e}_1(\mathbf{r})\exp(ik_1z - i\omega_1t)$ και $E(\omega_3) = \mathbf{e}_3(\mathbf{r})\exp(ik_3z - i\omega_3t)$, μπορούν να προσεγγιστούν με τα $\mathbf{e}_1(\mathbf{r})$ και $\mathbf{e}_3(\mathbf{r})$ να είναι σταθερά σε έναν κύλινδρο, καθορισμένα από το $(x^2 + y^2) \leq a^2$ και μηδενικά οπουδήποτε αλλού. Η μη γραμμική πόλωση υποτίθεται ότι έχει τη μορφή

$$\begin{aligned}
(1 - \hat{r}) \cdot \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}', \omega_2) &\equiv \mathbf{P}^{(2)} e^{i(k_2 z' - \omega_2 t)} \quad \text{for } (x^2 + y^2) \leq a^2 \\
&= 0 \quad \text{for } (x^2 + y^2) > a^2 \\
k_{2z} &\equiv k_3 - k_1.
\end{aligned} \tag{8.7}$$

Με αυτήν την έκφραση του $\mathbf{P}^{(2)}$, το ολοκλήρωμα στην (8.6) μπορεί αμέσως να εκτιμηθεί. Έστω $\mathbf{r} = \hat{z}r \cos \phi + \hat{x}r \sin \phi$ (δες Σχ. 8.1), $\mathbf{r}' = \hat{x}\rho' \cos \theta + \hat{y}\rho' \sin \theta + \hat{z}z'$ και

$$\exp \frac{(ik_2 |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \cong \exp \frac{[ik_2 r - ik_2 (\mathbf{r} \cdot \mathbf{r}'/r)]}{r} \quad \text{για το μακρινό πεδίο.}$$

Η εξίσωση (8.6) γίνεται τότε

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_2) &= \frac{\omega_2^2}{c^2} \mathbf{P}^{(2)} \frac{e^{i(k_2 r - \omega_2 t)}}{r} \int_{-l/2}^{l/2} dz' e^{-ik_2 z'(1 - \cos \phi + \Delta k/k_2)} \\
&\quad \times \int_0^a d\rho' \int_0^{2\pi} \rho' d\theta e^{-ik_2 \rho' \cos \theta \sin \phi} \\
&= \frac{2\pi\omega_2^2}{c^2} \mathbf{P}^{(2)} \frac{e^{i(k_2 r - \omega_2 t)}}{r} \left(\frac{\sin \alpha}{\alpha} \right) l \int_0^a d\rho' \rho' J_0 \left(\frac{\beta \rho'}{a} \right)
\end{aligned} \tag{8.8} \text{ με}$$

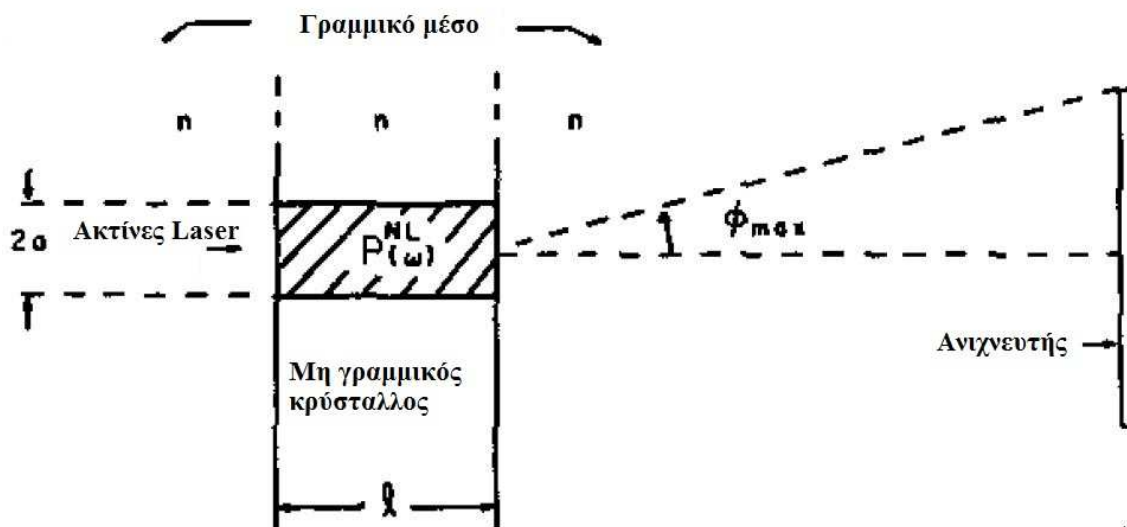
$\alpha = \frac{k_2 l}{2} \left(1 + \frac{\Delta k}{k_2} - \cos \phi \right)$, $\beta = k_2 a \sin \phi$, $\Delta k = k_{2z} - k_2$ και J_η να είναι η συνάρτηση Bessel. Τώρα έχουμε

$$|\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_2)|^2 = \left(\frac{\omega_2^2}{c^2} \right) |\chi_{\text{eff}}^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3|^2 \frac{l^2 (\pi a^2)^2}{r^2} \left(\frac{\sin \alpha}{\alpha} \right)^2 \left[\frac{2J_1(\beta)}{\beta} \right]^2 \tag{8.9}.$$

Η ολοκλήρωση του $c \sqrt{\epsilon(\omega_2)} |\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_2)|^2 / 2\pi$ στην επιφάνεια του ανιχνευτή (Σχ. 8.1) αποφέρει την ολική ισχύ μακρινού υπερύθρου $\mathbf{P}(\omega_2)$ που συλλέγεται από τον ανιχνευτή

$$\mathbf{P}(\omega_2) = \int_0^{\phi_{\text{max}}} |\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_2)|^2 2\pi r^2 \sin \phi d\phi \tag{8.10}$$

Το αποτέλεσμα από πλευράς φυσικής είναι κατανοητό. Ο όρος $[2J_1(\beta)/\beta]^2$ προκύπτει από τη διάθλαση από μια κυκλική οπή ως συνήθως, και ο όρος $(\sin \alpha/a)^2$ περιγράφει τη συνθήκη προσαρμογής φάσης.



Σχ. 8.1 Σχηματική αναπαράσταση για υπολογισμούς ισχύος εξόδου. Οι δέσμες λέιζερ παράγουν μια μη γραμμική πόλωση στον κρύσταλλο στη γένεση διαφοράς συχνοτήτων. Η πόλωση τότε αντιμετωπίζεται ως μια πηγή για τη γένεση διαφοράς συχνοτήτων.

Στο όριο του $k_2 a \gg 1$, έτσι ώστε η επίδραση της περίθλασης αναμένεται να είναι αμελητέα, $2J_1(\beta)/\beta$ είναι σημαντικό μόνο για $\phi \leq 1/k_2 a$, και τότε το $(\sin a/a)^2$ μειώνεται σχεδόν στον συνηθισμένο παράγοντα προσαρμογής φάσης $[\sin(\Delta k l/2)/(\Delta k l/2)]^2$. Επίσης, για $k_2 a \gg 1$, αν ο ανιχνευτής είναι αρκετά μεγάλος, έτσι ώστε $\phi_{max} \gg 1/k_2 a$, έχουμε $\int_0^{\phi_{max}} \sin^2 \phi d\phi \approx \frac{1}{2} \phi_{max}$. Η ισχύς εξόδου $P(\omega_2)$ που υπολογίστηκε από την (8.10), μπορεί τότε να έχει τέτοια έκφραση, που να είναι ακριβώς ίδια με αυτήν στην (8.1), η οποία εξήχθη από την προσέγγιση του άπειρου επίπεδου κύματος.

Η θεωρία εδώ, λαμβάνει με κατάλληλο τρόπο υπόψη της, την επίδραση της περίθλασης. Οι εξισώσεις (8.9) και (8.10) μπορούν στην πραγματικότητα να χρησιμοποιηθούν για έναν υπολογισμό τάξης μεγέθους της εξόδου μακρινών υπερύθρων. Στο όριο μεγάλου μήκους κύματος, η έξοδος προσεγγίζει την εξάρτηση ω^4 από τη συχνότητα, όπως θα περίμενε κανείς από τη θεωρία ακτινοβολίας δίπολου. Αυτό υπονοεί ότι η απόδοση της γένεσης διαφοράς συχνοτήτων θα πρέπει να μειωθεί δραστικά στα μεγάλα μήκη κύματος, στην περιοχή μακρινών υπερύθρων. Ακόμη κι έτσι, με τα κοινά διαθέσιμα λέιζερ, η έξοδος των μακρινών υπερύθρων από γένεση διαφοράς συχνοτήτων, μπορεί ακόμα να είναι πολύ πιο έντονη από μια πηγή ακτινοβολίας μέλανος σώματος.

Αρκετές απλοποιημένες προσεγγίσεις έχουν χρησιμοποιηθεί στην παραγωγή που οδηγεί στην (8.9). Είναι πιθανό να χρησιμοποιηθεί μια πιο ρεαλιστική έκφραση για το $P^{(2)}(r', \omega_2)$ στην (8.6) και να υπολογιστεί αριθμητικά το ολοκλήρωμα, ώστε να αποφέρει

ένα καλύτερο αποτέλεσμα. Όμως, η υπόθεση ότι το μη γραμμικό μέσο ενσωματώνεται σε ένα γραμμικό μέσο με προσαρμοσμένο δείκτη, είναι αρκετά ιδανικό και συνήθως αποτελεί μια φτώχη σε αποτελέσματα προσέγγιση. Στην πράξη, ένας μη γραμμικός κρύσταλλος στον αέρα έχει έναν πολύ διαφορετικό δείκτη διάθλασης στα μήκη κύματος μακρινού υπερύθρου, σε σχέση με αυτόν του αέρα. Συνεπώς, οι ανακλάσεις των κυμάτων μακρινού υπερύθρου στις συνοριακές επιφάνειες είναι πολύ σημαντικές. Κατά τον χειρισμό κυμάτων στα σύνορα ενός μη γραμμικού κρυστάλλου, δε μπορεί κανείς να χρησιμοποιήσει την προσέγγιση μακρινού πεδίου. Αυτό κάνει την παραπάνω θεωρητική προσέγγιση ακατάλληλη για τον χειρισμό συνοριακών επιδράσεων. Για να ληφθούν σωστά υπόψη οι συνοριακές επιδράσεις, θα πρέπει κάποιος, να διασπάσει το χωρικά εξαρτώμενο πεδίο μακρινών υπερύθρων σε χωρικές συνιστώσες Fourier και να εφαρμόσει τις συνοριακές συνθήκες σε κάθε συνιστώσα ξεχωριστά. Ο υπολογισμός, ως φυσική συνέπεια, γίνεται πιο πολύπλοκος και η αριθμητική λύση είναι συχνά αναγκαία για να υπάρξει αποσαφήνιση. Εδώ, συζητάμε μόνο μερικά από τα φυσικά αποτελέσματα και παραπέμπουμε τους αναγνώστες στη βιβλιογραφία για λεπτομέρειες στον υπολογισμό.^{5,6}

Αφού ο δείκτης διάθλασης μακρινών υπερύθρων ενός στερεού είναι συνήθως μεγάλος (~ 5), η ανάκλαση στο σύνορο στερεού – αέρα, μπορεί να είναι υψηλή. Ακόμα και πολλαπλές ανακλάσεις μπορεί να είναι σημαντικές και σε μια πλάκα κρυστάλλου, προκαλούν την εμφάνιση του παράγοντα Fabry-Perot σε κάθε συνιστώσα Fourier στην έξοδο. Το μεγάλο μήκος κύματος του πεδίου μακρινών υπερύθρων, κάνει τη γωνία προσαρμογής φάσης λιγότερο σημαντική, έτσι ώστε η προσαρμογή φάσης να μπορεί να ικανοποιηθεί προσεγγιστικά από την έξοδο των μακρινών υπερύθρων, σε έναν αρκετά ευρύ κώνο. Αυτός ο κώνος είναι ουσιαστικά διευρυμένος έξω από τον κρύσταλλο, μέσω της διάθλασης στο σύνορο. Μέρος της ακτινοβολίας μακρινών υπερύθρων ίσως ποτέ μη καταφέρει να βγει έξω από τον κρύσταλλο, εξαιτίας της ολικής ανάκλασης. Η εστίαση των ακτινών αντλίας βοηθάει γενικά, αλλά η απορρόφηση ζημιώνει την έξοδο των μακρινών υπερύθρων, όπως ήταν αναμενόμενο. Το πεδίο εξόδου στην (8.6) μαζί με έναν μέσο συντελεστή εκπομπής, μπορεί στην πραγματικότητα να είναι μια πολύ καλή προσέγγιση, αν η ρεαλιστική $P^{(2)}(r', \omega_2)$ χρησιμοποιηθεί στον υπολογισμό. Η εξίσωση (8.1) που εξήχθη από την προσέγγιση του άπειρου επίπεδου κύματος, όμως, δίνει μια ελλιπή περιγραφή της γένεσης μακρινών υπερύθρων.

Πειραματικά, η γένεση μακρινών υπερύθρων μέσω της ανάμιξης διαφοράς συχνότητων, έχει παρατηρηθεί σε πολλές περιπτώσεις,^{2,5} με συχνότητες εξόδου να κυμαίνονται από 1 μέχρι μερικές εκατοντάδες αντίστροφα εκατοστά (cm^{-1}). Για

παράδειγμα, στον LiNbO_3 , $\chi^{(2)}_{\text{YYY}}(\omega = \omega_1 - \omega_2) = 4.5 \times 10^{-8}$ esu για $\omega_1 \sim \omega_2$, γύρω από τη συχνότητα του λέιζερ ρουμπινιού. Εάν οι ακτίνες λέιζερ αντλίας είναι 1 MW σε μια περιοχή $0,2 \text{ cm}^2$, αναμένεται να παραχθεί μια ισχύς μακρινών υπερύθρων $\sim 3 \text{ mW}$ στα 10 cm^{-1} από την (8.10), από έναν LiNbO_3 κρύσταλλο πάχους $0,05 \text{ cm}$, υπό τη συνθήκη προσαρμογής φάσης. Σε συνθήκες πραγματικού πειράματος, ανιχνεύθηκε 1 mW στα $8,1 \text{ cm}^{-1}$, από έναν κρύσταλλο $0,047 \text{ cm}$.⁴ Μια διακριτά ρυθμιζόμενη CW έξοδος μακρινών υπερύθρων 10^{-7} W έχει επίσης παρατηρηθεί από την ανάμιξη δύο λέιζερ CO_2 (25 W) σε GaAs .⁷ Ρυθμιζόμενη ακτινοβολία μακρινών υπερύθρων, μπορεί επίσης να παραχθεί από διεγερμένη διασπορά πολαριτόνιου κα από μεταβάσεις spin-flip Raman. Μεταφέρουμε την ανάλυση αυτού του θέματος στο Κεφάλαιο 10.

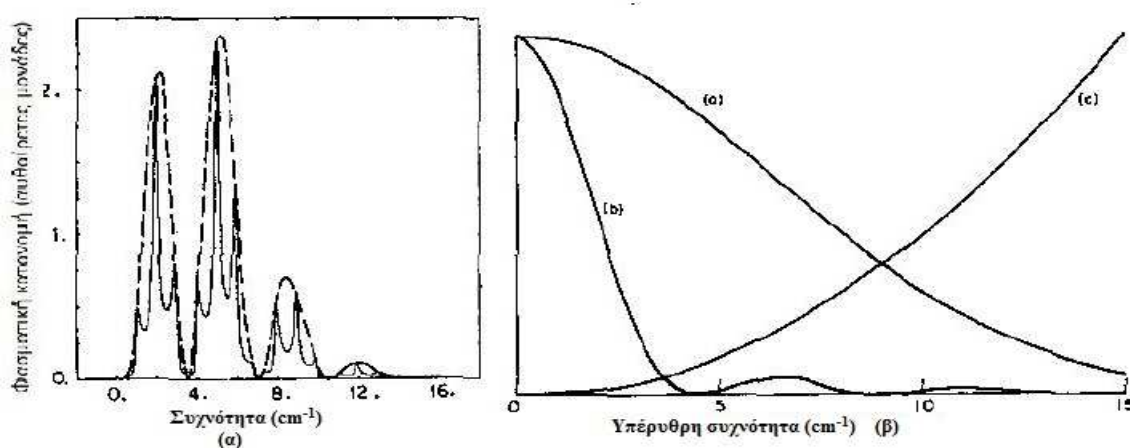
8.3 Γένεση μακρινών υπερύθρων μέσω υπερβραχέων παλμών

Αυτή η ανάλυση σε προηγούμενες ενότητες για τη γένεση υπερύθρων από οπτική ανάμιξη εφαρμόζεται σε περιπτώσεις, όπου οι δέσμες αντλίας είναι σχεδόν μονοχρωματικές. Θεωρείται ότι, οι δυο παλμοί αντλίας είναι αρκετά μεγάλοι και η φασματική καθαρότητα της υπέρυθρης εξόδου, που είναι γενικά συσχετισμένη με τα φασματικά πλάτη του λέιζερ, περιορίζεται από το πλάτος του παλμού. Εδώ, όμως, θεωρούμε την περίπτωση της γένεσης μακρινών υπερύθρων μέσω ενός μόνο σύντομου λέιζερ παλμού.^{8,9} Εάν το πλάτος παλμού είναι τόσο μικρό όσο 1 psec , το αντίστοιχο φασματικό πλάτος, θα πρέπει να είναι τουλάχιστον 15 cm^{-1} . Τότε, σε ένα μη γραμμικό κρύσταλλο, οι διάφορες φασματικές συνιστώσες του παλμού, μπορούν να συγκρουστούν μεταξύ τους και να παράγουν ακτινοβολία μακρινών υπερύθρων, μέχρι εύρους υποχιλιοστού. Κάποιος, ίσως το θεωρήσει αυτό ως μια διαδικασία οπτικής ανόρθωσης, στην οποία παράγεται ένας dc picosecond παλμός. Όμως, αντίθετα με την περίπτωση που συζητήθηκε στην Ενότητα 5.1, εδώ, ενδιαφερόμαστε μόνο για την ακτινοβόλουσα συνιστώσα του ανορθωμένου πεδίου. Αυτή η γένεση ακτινοβόλουσας εξόδου υπόκειται σε επιρροές της προσαρμογής φάσης, της περίθλασης, της συνοριακής ανάκλασης, της απόδοσης ακτινοβολίας, κ.ο.κ.¹⁰

Η γένεση μακρινών υπερύθρων από υπερβραχείς παλμούς διέπεται ως συνήθως, από την κυματική εξίσωση

$$\left[\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{E} \right] = - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}, t) \quad (8.11)$$

Με δεδομένο το $P^{(2)}(r', t)$, η (8.11) με κατάλληλες συνοριακές συνθήκες, μπορεί τουλάχιστον στη θεωρία, να λυθεί. Η έξοδος μακρινών υπερέθρων και η φασματική ισχύς της, μπορούν τότε να υπολογιστούν. Η λύση της γένεσης μακρινών υπερέθρων από έναν μόνο βραχύ παλμό σε μια λεπτή πλάκα ενός μη γραμμικού κρυστάλλου, μπορεί να εξαχθεί μέσω μετασχηματισμού Fourier των $E(r,t)$, $P^{(2)}(r,t)$, αγνοώντας τη διασπορά του ϵ και του $\chi^{(2)}$ στην $P^{(2)}(r,t) = \chi^{(2)}: E(r,t) E^*(r,t)$.¹⁰ Εδώ, παρουσιάζουμε μια φυσική περιγραφή της λύσης.

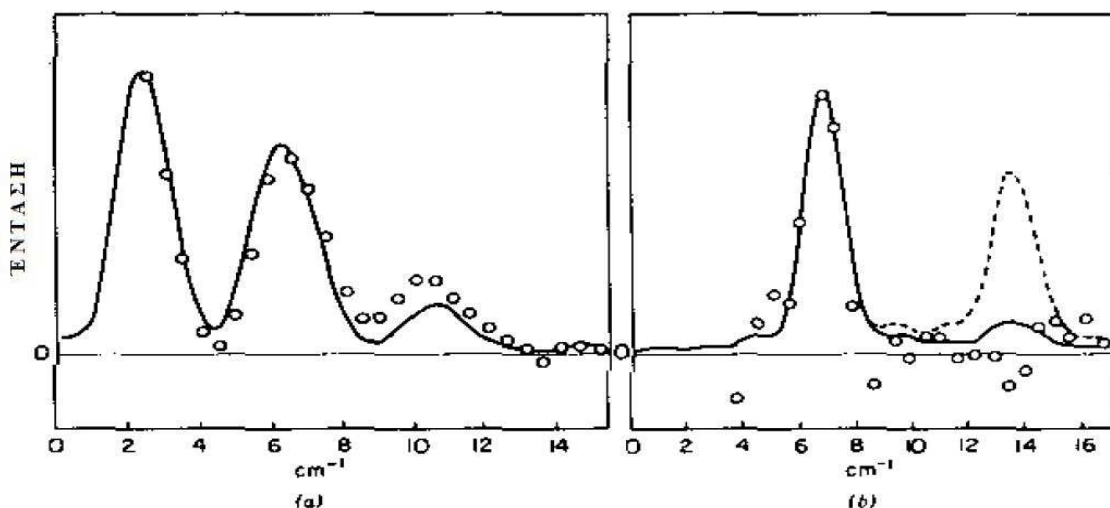


Σχ. 8.2 (α) Η υπολογισμένη φασματική έξοδος μακρινών υπερέθρων για έναν λέιζερ παλμό 2 psec Nd, κανονικώς προσπίπτουσα σε μια πλάκα 1 mm LiNbO_3 . Ο κρύσταλλος είναι προσανατολισμένος με τον άξονα c παράλληλο προς τις επίπεδες επιφάνειες της πλάκας, και ο παλμός λέιζερ είναι πολωμένος κατά μήκος του άξονα c . Η συνεχόμενη καμπύλη κάτω από τη διακεκομμένη περιβάλλουσα προκύπτει από τη γεωμετρία Fabry-Perot της πλάκας. (β) Καμπύλες που δείχνουν τις τρεις μέγιστες συνεισφορές στο φάσμα εξόδου μακρινών υπερέθρων στο (α). Η καμπύλη a δίνει τη φασματική ισχύ του ανορθωμένου παλμού εισόδου. Η καμπύλη b δίνει την επίδραση της προσαρμογής φάσης για προσαρμογή φάσης στην $\omega = 0$. Η καμπύλη c δίνει την απόδοση ακτινοβολίας δίπολου. (Βιβλ. Αναφ. 5).

Το Σχ. 8.2^α δείχνει την υπολογισμένη φασματική ισχύ για ακτινοβολία μακρινών υπερέθρων που έχει παραχθεί από έναν 2 psec Nd λέιζερ παλμό από μια πλάκα 1 mm LiNbO_3 . Αρχικά, η γεωμετρία της πλάκας Fabry-Perot προκαλεί τη συμβολή περιγραμμάτων υπό την διακεκομμένη περιβάλλουσα. Η διακεκομμένη περιβάλλουσα του φάσματος είναι βασικά, το προϊόν των τριών συμβολών όπως φαίνεται στο Σχ. 8.2β: η καμπύλη a αναπαριστά τη φασματική ισχύ του ανορθωμένου παλμού εισόδου, η καμπύλη b περιγράφει την εξάρτηση της απόδοσης της ακτινοβολίας από την ω^2 , με μια περισσότερο έντονη χαμηλή συχνότητα αποκοπής $\omega \rightarrow 0$, λόγω περίθλασης· η καμπύλη c είναι η καμπύλη προσαρμογής φάσης με την κορυφή προσαρμογής φάσης της στην $\omega = 0$

για τον χαρακτηριστικό προσανατολισμό του κρυστάλλου, με τον άξονα c κατά μήκος της μπροστινής επιφάνειας της πλάκας. Επομένως, η υπολογισμένη φασματική ισχύς στο Σχ. 8.2α μπορεί να κατανοηθεί από φυσικής άποψης.

Ένας τέτοιος θεωρητικός υπολογισμός δίνει στην πραγματικότητα μια πολύ καλή περιγραφή της πειραματικής παρατήρησης. Το Σχ. 8.3α δείχνει μια σύγκριση μεταξύ θεωρίας και πειράματος για τη γένεση μακρινών υπερέθρων από έναν 0,775-mm LiNbO_3 με τον c άξονα στην μπροστινή επιφάνεια της πλάκας, μέσω ενός παλμοσυρμού, από ένα λέιζερ εγκλειδωσης ρυθμών Nd/glass κανονικής πρόσπτωσης.⁸ Το περίγραμμα Fabry-Perot απουσιάζει εδώ, επειδή το φάσμα έχει μετριασθεί από την πραγματική ανάλυση του οργάνου. Προσανατολίζοντας τον κρύσταλλο, ώστε να επιτευχθεί προσαρμογή φάσης στην πεπερασμένη ω , περιμένει κανείς, από την παραπάνω ανάλυση, ότι μια μονή κορυφή προσαρμογής φάσης στην $\omega \neq 0$, ίσως επικρατήσει φάσμα εξόδου.



Σχ. 8.3 (α) Φάσμα μακρινών υπερέθρων που έχει παραχθεί από παλμούς εγκλειδωσης ρυθμών σε έναν LiNbO_3 με προσαρμογή φάσης στη μηδενική συχνότητα. Τα πειραματικά σημεία εξήχθησαν από το συμβολόγραμμα Michelson και η συνεχόμενη καμπύλη από τον θεωρητικό υπολογισμό, θεωρώντας Γκαουσιανού λέιζερ παλμούς με πλάτος παλμού 1,8 psec. (β) Φάσμα μακρινών υπερέθρων που έχει παραχθεί από παλμούς εγκλειδωσης ρυθμών σε έναν LiNbO_3 , προσανατολισμένο να έχει εμπρόσθια κατεύθυνσης και οπίσθια προσαρμογή φάσης στα 13,5 και 6,7 cm^{-1} , αντίστοιχα. Τα πειραματικά σημεία εξήχθησαν από τον συμβολόγραμμα Michelson. Οι συνεχόμενες και διακεκομμένες καμπύλες υπολογίστηκαν, θεωρώντας Γκαουσιανούς λέιζερ παλμούς, με πλάτος παλμού 2,3 και 1,8 psec, αντίστοιχα. (Βιβλ. Αναφ. 8)

Ένα παράδειγμα φαίνεται στο Σχ. 8.3b. Και πάλι, η θεωρία και το πείραμα συμφωνούν κανονικά. Οι δυο κορυφές στις θεωρητικές καμπύλες αντιστοιχούν σε γένεση ακτινοβολίας μακρινών υπερέθρων με προσαρμογή φάσης, στις πρόσθιες και οπίσθιες

κατευθύνσεις, αντίστοιχα. Το σχήμα αυτό δηλώνει ότι μπορούμε να έχουμε μια ρυθμιζόμενη έξοδο μακρινών υπερύθρων, περιστρέφοντας απλώς το μη γραμμικό κρύσταλλο. Όπως φαίνεται, ο παλμός ακόμα έχει ένα αρκετά μεγάλο πλάτος γραμμής, δείχνοντας ότι είναι επίσης ένας παλμός διάρκειας picoseconds. Παρόλα αυτά, αφού το πλάτος γραμμής εξόδου είναι σημαντικά στενότερο από το πλάτος γραμμής του λέιζερ, τότε ο παλμός εξόδου πρέπει να είναι σημαντικά μακρύτερος από τον παλμό εισόδου. Το γεγονός ότι η έξοδος παραμένει ακόμα σημαντική, αφότου η είσοδος έχει λίγο – πολύ εξασθενήσει, είναι αρκετά ενδιαφέρον, λαμβάνοντας υπόψη ότι η απόκριση του μέσου στον παλμό εισόδου είναι ουσιαστικά στιγμιαία σε αυτήν την περίπτωση. Με μια ισχύ κορυφής εισόδου 0,2 GW σε διατομή 1 cm², μια έξοδος μακρινών υπερύθρων με ισχύ κορυφής 200 W, έχει ανιχνευθεί από κρύσταλλο 0,78-mm LiNbO₃.⁸

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. R.L. Byer, in Y.R. Shen, ed. *Nonlinear Infrared Generation* (Springer-Verlag, Berlin, 1977).
2. F. Zernike, in C.L. Tang, ed., *Methods of Experimental Physics*, Vol. XV: *Quantum Electronics*, Part B (Academic Press, New York, 1979), p. 143.
3. Δες, για παράδειγμα, J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, 2nd ed. (Wiley, New York, 1975), Chapter 9.
4. D.W. Faries, K.A. Gehring, P.L. Richards & Y.R. Shen, *Phys. Rev.* 180, 363 (1969).
5. Y.R. Shen, *Prog. Quant. Electron.* 4, 207 (1976).
6. J.R. Morris & Y.R. Shen, *Phys. Rev.* A15, 1143 (1977).
7. B. Lax, R.L. Aggarwal & G. Favrot, *Appl. Phys. Lett.* 23, 679 (1973); B. Lax & R.L. Aggarwal, *J. Opt. Soc. Am.* 64, 533 (1974).
8. K.H. Yang, P.L. Richards & Y.R. Shen, *Appl. Phys. Lett.* 19, 285 (1971).
9. T. Yajima & N. Takeuchi, *Jap. J. Appl. Phys.* 10, 907 (1971).
10. J.R. Morris & Y.R. Shen, *Optics Comm.* 3, 81 (1971).

Βιβλιογραφία

- Shen, Y.R., *Prog. Quant. Electron.* 4, 207 (1976)
- Shen, Y.R., ed., *Nonlinear Infrared Generation* (Springer-Verlag, Berlin, 1977).
- Warner, J., in H.Rabin & C.L. Tang, eds. *Quantum Electronics* (Academic Press, New York, 1973), vol. I, p. 703.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 9 – Παραμετρική ενίσχυση και ταλάντωση

Η αλληλεπίδραση τριών κυμάτων που αναλύθηκε σε προηγούμενα κεφάλαια εκδηλώνεται με τη ροή ενέργειας από τα δυο πεδία χαμηλότερων συχνοτήτων στο πεδίο αθροίσματος συχνοτήτων ή και αντίστροφα. Το τελευταίο συμβαίνει στη γένεση διαφοράς συχνοτήτων, που σε γενικές γραμμές, μπορεί να εκκινηθεί με μια μονή δέσμη αντλίας στο άθροισμα συχνοτήτων. Η γένεση διαφοράς συχνοτήτων μπορεί τότε να θεωρηθεί ως διαδικασία, αντίστροφη της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων, κάτι που είναι γενικά γνωστό ως παραμετρική διαδικασία μετατροπής. Η παραμετρική ενίσχυση και ταλάντωση στη συχνότητα ακτινοβολίας και στη μικροκυματική περιοχή, αναπτύχθηκαν πριν από την εφεύρεση του λέιζερ.¹ Η ίδια διαδικασία αναμενόταν να ισχύει και στην οπτική περιοχή και στην πραγματικότητα, επιδείχθηκε το 1965.² Από τότε, έχει γίνει ένα σημαντικό φαινόμενο, επειδή επιτρέπει την κατασκευή ευρέως ρυθμιζόμενων σύμφωνων υπέρυθρων πηγών μέσω ελεγχόμενη αποσύνθεσης της συχνότητας αντλίας. Σε αυτό το κεφάλαιο, εξερευνούμε τη θεωρία του παραμετρικού φθορισμού, ενίσχυσης και ταλάντωσης, παράλληλα με κάποιες πρακτικές μελέτες.

9.1 Παραμετρική ενίσχυση

Ως μια αντίστροφη διαδικασία της γένεσης αθροίσματος συχνοτήτων, η γενική θεωρία παραμετρικής ενίσχυσης είναι η ίδια με αυτήν της γένεσης διαφοράς συχνοτήτων. Στην πραγματικότητα, η μόνη διαφορά των δύο διαδικασιών είναι οι συνθήκες εισόδου. Ακόμα κι εκεί, η διαφορά δεν είναι ξεκάθαρη, αλλά κανονικά θεωρούμε την παραμετρική ενίσχυση, ως μια διαδικασία που ξεκίνησε από μια μονή δέσμη αντλίας, ενώ η γένεση διαφοράς συχνοτήτων ξεκινά από δυο δέσμες αντλίας, με λίγο-πολύ συγκρίσιμες εντάσεις. Η διαφορά εξαφανίζεται όταν μια σημαντικά μικρή ποσότητα της ενέργειας αντλίας μεταφερθεί στα δυο πεδία χαμηλότερων συχνοτήτων. Επομένως, η θεωρητική περιγραφή της παραμετρικής ενίσχυσης με άπειρα επίπεδα κύματα, ξεκινά ξανά από την ομάδα των τριών συζευγμένων κυματικών εξισώσεων (3.4). Στην προσέγγιση βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους με $\mathbf{E}(\omega_i) = \mathcal{E}_i(\mathbf{z})\exp[i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t + \phi_i)]$ και ένα επίπεδο σύνορο στο $z = 0$, γίνονται (δες Ενότητες 3.3 και 6.7)

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}_1 &= \frac{i\omega_1^2}{k_{1z}} K \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 e^{i \Delta k z + i\theta_0}, \\
\frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}_2^* &= \frac{-i\omega_2^2}{k_{2z}} K \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* e^{-i \Delta k z - i\theta_0}, \\
\frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}_3 &= \frac{i\omega_3^2}{k_{3z}} K \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 e^{-i \Delta k z - i\theta_0}
\end{aligned} \tag{9.1}$$

όπου $K = \frac{2\pi}{c^2} \hat{e}_3 \cdot \chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2); \hat{e}_1 \hat{e}_2$ and $\Delta k = k_{3z} - k_{1z} - k_{2z}$ και

$\theta_0 = \varphi_3 - \varphi_1 - \varphi_2$ είναι η αρχική διαφορά φάσης των πεδίων στο $z = 0$.³ Υποθέτουμε εδώ ότι $\theta_0 = -\pi/2$. Η λύση της (9.1) με $\Delta k \approx 0$ έχει συζητηθεί σε προηγούμενα κεφάλαια σε σχέση με τη γένεση αθροίσματος και διαφοράς συχνοτήτων. Στην παραμετρική ενίσχυση, το $E(\omega_3)$ είναι γνωστό ως το κύμα αντλίας, $E(\omega_1)$ [ή $E(\omega_2)$] το κύμα σήματος, και $E(\omega_2)$ [ή $E(\omega_1)$] το σταθερό ακλόνητο κύμα. Λαμβάνουμε υπόψη μας εδώ πρώτα την περίπτωση της αμελητέας μείωσης αντλίας με $\Delta k \neq 0$.

Η υπόθεση της αμελητέας μείωσης αντλίας σημαίνει ότι η \mathcal{E}_3 μπορεί να θεωρηθεί ως σταθερά. Η εξίσωση (9.1) μικραίνει τότε, σε ένα σετ δυο γραμμικά συζευγμένων εξισώσεων μεταξύ \mathcal{E}_1 και \mathcal{E}_2^* . Γράφοντας $\mathcal{E}_1 \approx C_1 e^{i\gamma_1 z}$ και $\mathcal{E}_2 = C_2 e^{i\gamma_2 z}$, βρίσκουμε αμέσως $\gamma_1 = -\gamma_2 + \Delta k$, και

$$\begin{vmatrix}
i\gamma_1, & \frac{-\omega_1^2}{k_{1z}} K \mathcal{E}_3 \\
\frac{-\omega_2^2}{k_{2z}} K \mathcal{E}_3^*, & (i\gamma_1 - i\Delta k)
\end{vmatrix} = 0. \tag{9.2}$$

Αυτό οδηγεί στη λύση

$$\begin{aligned}
\gamma_{1\pm} &= \frac{1}{2}[\Delta k \pm ig], \\
g &= [g_0^2 - (\Delta k)^2]^{1/2}, \quad g_0^2 = \left(\frac{4\omega_1^2\omega_2^2}{k_{1z}k_{2z}} \right) K^2 \mathcal{E}_3^2, \\
\mathcal{E}_1 &= [C_{1+}e^{-(1/2)gz} + C_{1-}e^{(1/2)gz}] e^{+i(1/2)\Delta kz}, \\
\mathcal{E}_2^* &= [C_{2+}e^{-(1/2)gz} + C_{2-}e^{(1/2)gz}] e^{-i(1/2)\Delta kz}, \\
C_{1\pm} &= \pm \frac{1}{2g} \left[(i\Delta k \pm g) \mathcal{E}_1(0) - \frac{\omega_1}{\omega_2} \left(\frac{k_{2z}}{k_{1z}} \right)^{1/2} g_0 \mathcal{E}_2^*(0) \right], \\
C_{2\pm} &= \mp \frac{1}{2g} \left[(i\Delta k \mp g) \mathcal{E}_2^*(0) - \frac{\omega_2}{\omega_1} \left(\frac{k_{1z}}{k_{2z}} \right)^{1/2} g_0 \mathcal{E}_1(0) \right].
\end{aligned} \tag{9.3}$$

Αυτή η λύση παρουσιάζει τις ακόλουθες φυσικές ιδιότητες. Εάν το $K\mathcal{E}_3$ είναι μικρό έτσι ώστε $g_0^2 < (\Delta k)^2$, τότε το g είναι καθαρά φανταστικό. Εάν το $K\mathcal{E}_3$ είναι αρκετά μεγάλο έτσι ώστε $g_0^2 > (\Delta k)^2$, τότε το g είναι πραγματικός και θετικός και για μεγάλο gz , και το \mathcal{E}_1 και το \mathcal{E}_2^* αυξάνονται εκθετικά με z . Επομένως, το $g_0 = (\Delta k)$ είναι το κατώφλι για παραμετρική ενίσχυση. Το παραμετρικό κέρδος είναι καθαρά ένα μέγιστο με $g = g_0$ στην προσαρμογή φάσης, $\Delta k = 0$. Η εισαγωγή συντελεστών εξασθένισης στις ω_1 και ω_2 στον παραπάνω τύπο είναι απλή. Όπως ήταν αναμενόμενο, αυξάνουν το κατώφλι και μειώνουν το κέρδος.

Ως παράδειγμα, θεωρήστε παραμετρική ενίσχυση σε έναν LiNbO_3 με $\chi_{\text{eff}}^{(2)} = 2,7 \times 10^{-8}$ esu στο $\lambda_1 \sim \lambda_2 \approx 1,06 \mu\text{m}$, με $n_1 = n_2 = 2,23$. Το μέγιστο κέρδος βρίσκεται ότι είναι $g_0 \approx 0,9 \times 10^{-2} \mathcal{E}_3 \text{ cm}^{-1}$. Για ένα πεδίο αντλίας $\mathcal{E}_3 = 100$ esu που αντιστοιχεί σε $2,5 \text{ MW / cm}^2$, το κέρδος είναι $0,9 \text{ cm}^{-1}$. Επομένως, το ολικό εκθετικό κέρδος gl ακόμα και σε κρύσταλλο μήκους $l = 5 \text{ cm}$ δεν είναι πολύ μεγάλο. Για να επιτευχθεί ένα συνολικό κέρδος $g_0 l \sim 40$, πρέπει είτε να χρησιμοποιήσουμε μια δέσμη αντλίας πολύ μεγαλύτερης έντασης (κάτι που είναι εφικτό μόνο με παλμούς picosecond, αν θέλουμε να αποφύγουμε τη ζημιά στον κρύσταλλο) ή να χρησιμοποιήσουμε μια οπτική κοιλότητα για να αυξήσουμε το ενεργό μήκος. Στην τελευταία περίπτωση, το σύστημα ίσως γίνει ταλαντωτής, όπως θα συζητηθεί αργότερα.

Όπως σημειώθηκε στην (9.3), η ασυνέχεια φάσης Δk περιορίζει το κέρδος πολύ δραστικά. Επομένως, στο όριο της υψηλής απόδοσης μετατροπής, χρειάζεται μόνο να μελετήσουμε την περίπτωση της ασυνέχειας φάσης, παρόλο που η γενική λύση του (9.1) με $\Delta k \neq 0$, έχει δουλευτεί από τους Armstrong κ.α.⁴ Ακολουθώντας τη σημειογραφία και την παραγωγή στην Ενότητα 6.7, βρίσκουμε, υποθέτοντας ότι $\theta_0 \approx -\pi/2$ στην (9.1),

$\frac{d}{d\xi} u_2^2 = 2[u_2^2(m_1 - u_2^2)(m_3 - u_2^2)]^{1/2}$, η οποία έχει τη λύση (υποθέτοντας ότι $u_1^2(0) < u_2^2(0)$)

$$\begin{aligned}
 u_2^2(\xi) &= (u_2^2(0) - u_1^2(0))\text{sn}^2 \\
 &\times \left[i\sqrt{u_3^2(0) + u_2^2(0)} \xi + \text{sn}^{-1} \left(i \frac{u_2(0)}{\sqrt{u_1^2(0) - u_2^2(0)}}, \gamma \right), \gamma \right] \\
 u_3^2(\xi) &= u_2^2(0) + u_3^2(0) - u_2^2(\xi) \\
 u_1^2(\xi) &= u_1^2(0) - u_2^2(0) + u_2^2(\xi) \\
 \gamma^2 &= \frac{u_2^2(0) - u_1^2(0)}{u_2^2(0) + u_3^2(0)}. \tag{9.5}
 \end{aligned}$$

Στην περίπτωση του $u_2(0) = 0$, αυτό το αποτέλεσμα μπορεί να δειχθεί ότι καταλήγει στην (8.3) και το οποίο εξήχθη για τη γένεση διαφοράς συχνοτήτων.

9.2 Παραμετρικός ταλαντωτής διπλού συντονισμού

Όπως αναφέρθηκε νωρίτερα, μια οπτική κοιλότητα μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να αυξηθεί το ολικό κέρδος στην παραμετρική ενίσχυση. Τότε, μπορεί να συμβεί επίσης, παραμετρική ταλάντωση. Το γεγονός ότι αυτή η ρυθμιζόμενη έξοδος είναι πιθανή κατά την απουσία εισόδου, κάνει τον παραμετρικό ταλαντωτή μια πρακτικά πιο χρήσιμη συσκευή, σε σχέση με τον παραμετρικό ενισχυτή.

Όπως φαίνεται στο Σχ. 9.1, ένας παραμετρικός ταλαντωτής συντίθεται από ένα μη γραμμικό οπτικό κρύσταλλο που βρίσκεται μέσα σε μια οπτική κοιλότητα. Για λόγους απλούστευσης, υποθέτουμε ότι η κοιλότητα σχηματίστηκε από δυο επίπεδα παράλληλα κάτοπτρα. Δυο τύποι κοιλότητων χρησιμοποιούνται συνήθως. Η κοιλότητα διπλού συντονισμού έχει κάτοπτρα που αντανακλούν έντονα και στην ω_1 και στην ω_2 , ενώ η κοιλότητα μονού συντονισμού έχει κάτοπτρα που αντανακλούν έντονα είτε στην ω_1 είτε στην ω_2 . Συνήθως, και τα δύο κάτοπτρα είναι διάφανα στο κύμα αντλίας. Εάν το παραμετρικό κέρδος μονής διόδου είναι μικρό, η ένταση αντλίας μπορεί να θεωρηθεί ως ανεξάρτητη της απόστασης στην κοιλότητα.

Ας μελετήσουμε πρώτα την περίπτωση διπλού συντονισμού.³⁻⁵ Τα πεδία στην κοιλότητα στην κοιλότητα μπορούν να γραφτούν ως

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}(\omega_1) &= 2\mathcal{E}_1(t)\sin k_1 z e^{-i\omega_1 t}, \\
\mathbf{E}(\omega_2) &= 2\mathcal{E}_2(t)\sin k_2 z e^{-i\omega_2 t}, \\
\mathbf{E}(\omega_3) &= \mathcal{E}_3 e^{ik_3 z - i\omega_3 t}
\end{aligned}
\tag{9.6}$$

με $\omega_1 \equiv \omega_{10}$, $\omega_2 \equiv \omega_{20}$, και $\omega_3 \approx \omega_1 + \omega_2 = \omega_{10} + \omega_{20} + \Delta\omega$.

Η συνθήκη κοιλότητας απαιτεί

$$k_1 = \frac{\omega_{10} n_1}{c} = \frac{m_1 \pi + \Phi_1}{l} \quad \text{and} \quad k_2 = \frac{\omega_{20} n_2}{c} = \frac{m_2 \pi + \Phi_2}{l} \tag{9.7}$$

όπου m_1 και m_2 είναι θετική ακέραιοι, l είναι το μήκος της κοιλότητας (υποθέτουμε εδώ, για λόγους απλούστευσης, ότι το μήκος κρυστάλλου είναι ίσο με το μήκος της κοιλότητας) και $2\Phi_1$ και $2\Phi_2$ είναι οι μετατοπίσεις της φάσης κυκλικής διαδρομής στην ω_1 και ω_2 , εξαιτίας των συνοριακών ανακλάσεων και διαθλάσεων. Οι συζευγμένες κυματικές εξισώσεις σε αυτήν την περίπτωση, γίνονται

$$\begin{aligned}
\left[k_1^2 + \frac{n_1^2}{c^2} \left(\Gamma_1 \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \right] \mathbf{E}(\omega_1) &= + \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \chi^{(2)} : \mathbf{E}^*(\omega_2) \mathbf{E}(\omega_3), \\
\left[k_2^2 + \frac{n_2^2}{c^2} \left(\Gamma_2 \frac{\partial}{\partial t} + \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \right] \mathbf{E}^*(\omega_2) &= + \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \chi^{(2)} : \mathbf{E}^*(\omega_3) \mathbf{E}(\omega_1).
\end{aligned}
\tag{9.8}$$



Σχ. 9.1 Σχηματικό διάγραμμα ενός παραμετρικού ταλαντωτή

Εδώ, Γ_1 και Γ_2 είναι οι σταθερές απόσβεσης στις ω_1 και ω_2 . Αποτελούν την απώλεια εξασθένισης εξαιτίας της απορρόφησης και της διασποράς στην κοιλότητα συν την απώλεια εκπομπής κατόπτρου. Με έναν συντελεστή εξασθένισης έντασης $\alpha_i(\omega_i)$ ανά μονάδα μήκους και δυο κάτοπτρα ίσης δυνατότητας ανάκλασης $R_i(\omega_i)$, το Γ_i εξάγεται από τον ορισμό $e^{-2\Gamma_i n l / c} = R_i^2 e^{-2\alpha_i l}$ ή

$$\begin{aligned}\Gamma_i &= \frac{c}{n_i} \left[\alpha_i - \frac{1}{l} \ln R_i \right] \\ &\equiv \frac{c}{n_i} \left[\alpha_i + \frac{1}{l} (1 - R_i) \right] \quad \text{if } R_i \approx 1.\end{aligned}\quad (9.9)$$

Θεωρούμε ότι $\Gamma_1 = \Gamma_2$. Με την προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, η $|\partial^2 \mathcal{E}_i / \partial t^2| \ll |\dot{\omega}_i \partial \mathcal{E}_i / \partial t|$, (9.8) καταλήγει στην

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{2} \Gamma \right] \mathcal{E}_1(t) \sin k_1 z = i \omega_{10} \left(\frac{c}{n_1} \right)^2 K \mathcal{E}_2^*(t) \mathcal{E}_3 \sin k_2 z e^{ik_3 z} \quad (9.10\alpha)$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{2} \Gamma \right] \mathcal{E}_2^*(t) \sin k_2 z = -i \omega_{20} \left(\frac{c}{n_2} \right)^2 K \mathcal{E}_1(t) \mathcal{E}_3 \sin k_1 z e^{ik_3 z} \quad (9.10\beta), \text{ όπου}$$

$$K = \frac{2\pi}{c^2} \hat{e}_1 \cdot \chi^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3) : \hat{e}_2 \hat{e}_3$$

και αντιμετωπίζουμε το \mathcal{E}_3 ως σταθερά.

Πολλαπλασιάζοντας τις (9.10α) και (9.10β) με $\sin k_1 z$ και $\sin k_2 z$, αντίστοιχα, και εφαρμόζοντας ολοκλήρωμα στις εξισώσεις από $z = 0$ έως $z = l$, βρίσκουμε

$$\begin{aligned}\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{2} \Gamma \right] \mathcal{E}_1(t) &= i \frac{1}{2} \omega_{10} \left(\frac{c}{n_1} \right)^2 K \mathcal{E}_3 \mathcal{E}_2^*(t) \frac{\sin(\Delta k l / 2)}{(\Delta k l / 2)} e^{i \Delta k l / 2}, \\ \left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{2} \Gamma \right] \mathcal{E}_2^*(t) &= -i \frac{1}{2} \omega_{20} \left(\frac{c}{n_2} \right)^2 K \mathcal{E}_3 \mathcal{E}_1(t) \frac{\sin(\Delta k l / 2)}{(\Delta k l / 2)} e^{-i \Delta k l / 2}.\end{aligned}\quad (9.11)$$

Η λύση αυτού του σετ γραμμικά συζευγμένων εξισώσεων μπορεί να γραφτεί με τη μορφή

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_1(t) &= (D_{1+} e^{s_+ t} + D_{1-} e^{s_- t}) e^{-i(1/2)\Delta\omega t}, \\ \mathcal{E}_2^*(t) &= (D_{2+} e^{s_+ t} + D_{2-} e^{s_- t}) e^{i(1/2)\Delta\omega t}, \\ s_{\pm} &= \frac{1}{2} [-\Gamma \pm G], \\ G &= [G_0^2 - (\Delta\omega)^2]^{1/2}, \\ G_0^2 &= \frac{\omega_{10} \omega_{20} c^4}{n_1^2 n_2^2} K^2 \mathcal{E}_3^2 \frac{\sin^2(\Delta k l / 2)}{(\Delta k l / 2)^2}\end{aligned}\quad (9.12)$$

όπου $D_{1\pm}$ και $D_{2\pm}$ είναι συντελεστές που θα καθοριστούν από την (9.11) μαζί με τις αρχικές τιμές $\mathcal{E}_1(0)$ και $\mathcal{E}_2^*(0)$. Στην ανάλυση για τον παραμετρικό ταλαντωτή, όμως, δεν

είναι δυνατό να βρεθούν τα $D_{1\pm}$ και $D_{2\pm}$. Ενδιαφερόμαστε περισσότερο για τη συνθήκη κατώφλιου για την ταλάντωση. Η εξίσωση (9.12) δείχνει ότι η ταλάντωση αρχίζει όταν $G \approx G_{th} = \Gamma$ ή όταν το κατώφλι έντασης αντλίας για παραμετρική ταλάντωση είναι

$$I_{th} = \frac{n_3 c}{2\pi} (\mathcal{E}_3^2)_{th} = \frac{(\Delta\omega)^2 + \Gamma^2}{\frac{2\pi\omega_{10}\omega_{20}c^3}{n_1^2 n_2^2 n_3} K^2 \frac{\sin^2(\Delta k l/2)}{(\Delta k l/2)^2}}, \quad (9.13)$$

Είναι ξεκάθαρο, ότι το κατώφλι είναι ελάχιστο για $\Delta\omega = 0$ και $\Delta k = 0$. Επομένως, εάν χρησιμοποιήσουμε τον ίδιο LiNbO₃ κρύσταλλο, που περιγράφηκε στο παράδειγμα παραμετρικής ενίσχυσης και τον εισάγουμε μεταξύ δυο επίπεδων κατόπτρων $R_1 = R_2 = 0,98$, ξεχωρισμένα μεταξύ τους από το μήκος κρυστάλλου $l = 5 \text{ cm}$, βρίσκουμε ένα ελάχιστο κατώφλι αντλίας $(I_{th})_{min} = 2,5 \text{ kW/cm}^2$, θεωρώντας ότι η απώλεια εξασθένισης α_i είναι αμελητέα. Αυτή είναι μια αρκετά χαμηλή ένταση και μπορεί να επιτευχθεί ακόμα και με ένα CW λέιζερ. Ο CW παραμετρικός ταλαντωτής διπλού συντονισμού επιδείχθηκε για πρώτη φορά από τους Smith κ.α. το 1968.⁶

Η λύση στην (9.12) δείχνει επίσης ότι οι συχνότητες εξόδου του σήματος και των ανενεργών κυμάτων είναι $\omega_1 = \omega_{10} + \frac{1}{2} \Delta\omega$ και $\omega_2 = \omega_{20} + \frac{1}{2} \Delta\omega$ (9.14), με ω_{10} και ω_{20} να είναι οι συχνότητες συντονισμού κοιλότητας, που δίνονται από την (9.7) και η $\Delta\omega = \omega_3 - \omega_{10} - \omega_{20}$ ελαχιστοποιείται αυτόματα, για να επιτευχθεί το χαμηλότερο δυνατό κατώφλι αντλίας. Η ρύθμιση των συχνοτήτων εξόδου αναλύεται στην Ενότητα 9.3. Ένα σοβαρό μειονέκτημα του παραμετρικού ταλαντωτή διπλού συντονισμού είναι ότι έχει χαμηλή σταθερότητα.^{7, 8} Ας υποθέσουμε ότι αρχικά ο ταλαντωτής με μήκος κοιλότητας l , λειτουργεί στην $\omega_1 = \omega_{10} = m_1 \pi c/n_1 l$, $\omega_2 = \omega_{20} = m_2 \pi c/n_2 l$ και $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$. Μια μικρή αλλαγή στο μήκος κοιλότητας Δl εξαιτίας εξωτερικών διαταραχών, μετατοπίζει τις συχνότητες εξόδου σε $\omega'_1 = \omega'_{10} = (m_1 + \Delta m) \pi c/n_1 (l + \Delta l)$, $\omega'_2 = \omega'_{20} = (m_2 + \Delta m) \pi c/n_2 (l + \Delta l)$ και $\omega'_1 + \omega'_2 = \omega_3$. Βρίσκουμε έπειτα

$$\Delta m \equiv \omega_3 \left(\frac{\Delta l}{l} \right) / \left(\frac{\pi c}{n_1 l} \right) \left(\frac{n_2 - n_1}{n_2} \right)$$

. Αυτή η μετατόπιση στις συχνότητες εξόδου εξαιτίας της Δl , δίνεται επομένως, από την

$$\begin{aligned}
\delta\omega &= \omega'_1 - \omega_1 = \omega_2 - \omega'_2 \\
&= \left[\frac{n_2}{n_2 - n_1} \omega_3 - \omega_1 \right] \frac{\Delta l}{l} \\
&\cong \frac{n_2}{n_2 - n_1} \omega_3 \frac{\Delta l}{l}.
\end{aligned} \tag{9.15}$$

Επομένως, μια αλλαγή της $\Delta l/l = 10^{-7}$, που μετατοπίζει τη συχνότητα ενός ρυθμού της κοιλότητας κατά 10^{-7} μόνο, θα κάνει τις συχνότητες εξόδου του παραμετρικού ταλαντωτή διπλού συντονισμού, να αλλάξουν, κατά περισσότερο από $10^{-5}\omega_3$, αν $|n_2 - n_1|/n_2 \cong 10^{-2}$. Αυτό δείχνει ότι η έξοδος του ταλαντωτή θα είναι πολύ ασταθής και θα υπόκειται σε εξωτερικές δονήσεις και θερμικές διακυμάνσεις.

Για λειτουργία σταθερής κατάστασης, ένας ταλαντωτής πρέπει να έχει το κέρδος του σταθερά συγκρατημένο στην τιμή κατωφλίου, αφού διαφορετικά, η έξοδος θα μεγάλωνε συνεχώς με τον χρόνο ή θα εξασθενούσε ως το μηδέν. Αυτό, κάνει τον υπολογισμό της απόδοσης μετατροπής αρκετά απλό.⁵ Το πεδίο αντλίας στην κοιλότητα αυτο-ρυθμίζεται, μέσω της μείωσης αντλίας από την παραμετρική μετατροπή, για να αποφέρει ένα κέρδος ταλαντωτή συγκρατημένο στην τιμή κατωφλίου. Τα αδρανή πεδία (idle fields) και τα πεδία σήματος αυξάνουν, καθώς αυξάνεται η ενέργεια αντλίας, αλλά με το να είναι στάσιμα κύματα, τα πλάτη τους είναι σταθερά, κατά πλάτος της κοιλότητας. Το μέρος της ισχύος αντλίας, που είναι συζευγμένο στο σήμα και στα αδρανή πεδία, θα πρέπει να φαίνεται ως ισχύς απώλειας στην κοιλότητα και στο σήμα και ως ανενεργή έξοδος μέσω των κατόπτρων της κοιλότητας. Ας θεωρήσουμε την περίπτωση προσαρμογής φάσης, $\Delta k = 0$. Στην προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, η εξίσωση για \mathcal{E}_3 παίρνει τη μορφή της (9.1). Με $\theta_0 = -\pi/2$, το πεδίο αντλίας εμπρόσθιας κατεύθυνσης διάδοσης στο $z = l$ είναι

$$\mathcal{E}_3^+(l) = \mathcal{E}_3^+(0) - \left(\frac{\omega_3 c}{n_3} \right) K \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 l. \tag{9.16}$$

Έπειτα, τα παραγόμενα πεδία στις ω_1 και ω_2 στην κοιλότητα μπορούν να αντιδράσουν σε αυτό και να παράγουν οπίσθια κυματική διάδοση στην ω_3 με

$$\mathcal{E}_3^-(0) = \frac{\omega_3 c}{n_3} K \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 l. \tag{9.17}$$

Η διατήρηση της ενέργειας απαιτεί

$$\begin{aligned} n_3 \{ |\mathcal{E}_3^+(0)|^2 - |\mathcal{E}_3^+(l)|^2 - |\mathcal{E}_3^-(0)|^2 \} &= n_1 |\mathcal{E}_1|^2 (1 - e^{-2\Gamma_1 n_1 l/c}) \\ &\quad + n_2 |\mathcal{E}_2|^2 (1 - e^{-2\Gamma_2 n_2 l/c}) + n_2 |\mathcal{E}_2|^2 (1 - e^{-2\Gamma_2 n_2 l/c}) \\ &= (n_1^2 |\mathcal{E}_1|^2 \Gamma_1 + n_2^2 |\mathcal{E}_2|^2 \Gamma_2) 2l/c \end{aligned} \quad (9.18).$$

Το γεγονός ότι ο αριθμός των φωτονίων που παράγονται στις ω_1 και ω_2 πρέπει να είναι ίδιος, οδηγεί στην

$$\frac{n_1^2 |\mathcal{E}_2|^2 \Gamma_1}{\omega_1} = \frac{n_2^2 |\mathcal{E}_2|^2 \Gamma_2}{\omega_2}. \quad (9.19)$$

Συνδυάζοντας την (9.16) με την (9.19), προκύπτει

$$\begin{aligned} \frac{n_2^2 \Gamma_2 |\mathcal{E}_2|^2}{\omega_2 n_3 |\mathcal{E}_3^+(0)|^2} &= \frac{n_1^2 \Gamma_1 |\mathcal{E}_1|^2}{\omega_1 n_3 |\mathcal{E}_3^+(0)|^2} \\ &= \frac{c}{\omega_3 l} \left[\frac{1}{\sqrt{N}} - \frac{1}{N} \right] \end{aligned} \quad (9.20), \text{ όπου } N = \left[\frac{\omega_1 \omega_2 c^4}{n_1^2 n_2^2} K^2 |\mathcal{E}_3^+(0)|^2 \right] / \Gamma_1 \Gamma_2.$$

Αν πάρουμε $\omega_1 = \omega_{10}$, $\omega_2 = \omega_{20}$, και $\Gamma_1 = \Gamma_2$ και χρησιμοποιήσουμε την έκφραση του κέρδους G_0 στην (9.12) για $\Delta k = 0$, έχουμε $N = G^2_0 / \Gamma^2 = G^2_0 / G^2_{th}$. Αφού το G^2_0 είναι ανάλογο της έντασης αντλίας, το N έχει φυσική σημασία του πόσες φορές η ένταση αντλίας είναι πάνω από την τιμή κατωφλίου, με το $N = 1$ να αντιστοιχεί στο κατώφλι. Η ολική ισχύς εξόδου (σήματος και ανενεργής, συμπεριλαμβανομένης της απώλειας εξασθένισης στην κοιλότητα) είναι

$$\mathbf{P}_1 + \mathbf{P}_2 = \left(\frac{c}{2\pi} \right) \frac{[n_1^2 |\mathcal{E}_1|^2 2\Gamma_1 + n_2^2 |\mathcal{E}_2|^2 2\Gamma_2] l}{c}. \quad \text{Η ολική απόδοση μετατροπής, δίνεται}$$

$$\eta = \frac{\mathbf{P}_1 + \mathbf{P}_2}{\mathbf{P}_3} = \frac{2}{N} (\sqrt{N} - 1), \quad (9.21), \text{ που μπορεί να φτάσει το 50\% για } N = 4.$$

9.3 Παραμετρικός ταλαντωτής μονού συντονισμού

Εξαιτίας της εγγενούς αστάθειας, οι παραμετρικοί ταλαντωτές διπλού συντονισμού χρησιμοποιούνται σπάνια στην πράξη, παρόλο που έχουν χαμηλότερα κατώφλια ταλάντωσης. Η αστάθεια μπορεί να εξαλειφθεί χρησιμοποιώντας μια κοιλότητα μονού

συντονισμού.^{9, 10} Έστω ότι τα κάτοπτρα είναι διάφανα στις ω_1 και ω_3 και πάρα πολύ ανακλαστικά μόνο στην ω_2 . Τότε, μπορούμε να περιγράψουμε τα τρία πεδία ως

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\omega_1) &= \mathcal{E}_1(z, t) e^{ik_1 z - i\omega_1 t}, \\ \mathbf{E}(\omega_2) &= 2\mathcal{E}_2(t) \sin k_2 z e^{-i\omega_2 t}, \\ \mathbf{E}(\omega_3) &= \mathcal{E}_3(z) e^{ik_3 z - i\omega_3 t} \end{aligned} \quad (9.22)$$

με $\omega_{20} = m_2 \pi c/n_2 l$ και $\omega_1 + \omega_{20} \approx \omega_3$. Ξεκάθαρα, σε αυτήν την περίπτωση, μια μικρή κλασματικού επιπέδου αλλαγή του $\Delta l/l$ προκαλεί μόνο μια μετατόπιση του $\delta\omega = \omega_{20}(\Delta l/l)$ στις συχνότητες εξόδου.

Για να βρεθεί το κατώφλι της ταλάντωσης, μπορούμε και πάλι να λύσουμε τις συζευγμένες κυματικές εξισώσεις για $E(\omega_1)$ και $E(\omega_2)$. Θα πρέπει, όμως, να χρησιμοποιήσουμε μια κάπως διαφορετική προσέγγιση εδώ. Μπορούμε να αρχίσουμε με τη λύση της παραμετρικής ενίσχυσης στην (9.3) και να εφαρμόσουμε την συνθήκη, σύμφωνα με την οποία, για μια παραμετρική ταλάντωση, ένα κέρδος μονής διέλευσης, πρέπει να είναι ίσο με την κυκλική απώλεια. Θεωρούμε ότι έχουμε την περίπτωση προσαρμογής φάσης $\Delta k = 0$. Οι κυκλικές εξασθενήσεις των δυο πεδίων είναι $e^{-\Gamma_1 n_1 l/c}$ και $e^{-\Gamma_2 n_2 l/c}$, αντίστοιχα. Έπειτα, από την (9.3) έχουμε

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_1(0) &= e^{-\Gamma_1 n_1 l/c} \left[\mathcal{E}_1(0) \cosh \frac{1}{2} g_{th} l + i \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{1/2} \mathcal{E}_2^*(0) \sinh \frac{1}{2} g_{th} l \right], \\ \mathcal{E}_2^*(0) &= e^{-\Gamma_2 n_2 l/c} \left[\mathcal{E}_2^*(0) \cosh \frac{1}{2} g_{th} l - i \left(\frac{n_1}{n_2} \right)^{1/2} \mathcal{E}_1(0) \sinh \frac{1}{2} g_{th} l \right] \end{aligned} \quad (9.23) \quad \text{και}$$

$$\begin{vmatrix} \cosh \frac{1}{2} g_{th} l - e^{\Gamma_1 n_1 l/c}, & i \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{1/2} \sinh \frac{1}{2} g_{th} l \\ -i \left(\frac{n_1}{n_2} \right)^{1/2} \sinh \frac{1}{2} g_{th} l, & \cosh \frac{1}{2} g_{th} l - e^{\Gamma_2 n_2 l/c} \end{vmatrix} = 0. \quad (9.24)$$

επομένως

Αυτό οδηγεί στη συνθήκη κατωφλίου για ταλάντωση

$$\begin{aligned} \cosh \frac{1}{2} g_{th} l &= \frac{1 + e^{(\Gamma_1 n_1 + \Gamma_2 n_2) l/c}}{e^{\Gamma_1 n_1 l/c} + e^{\Gamma_2 n_2 l/c}} \\ &= 1 + \frac{(e^{\Gamma_1 n_1 l/c} - 1)(e^{\Gamma_2 n_2 l/c} - 1)}{e^{\Gamma_1 n_1 l/c} + e^{\Gamma_2 n_2 l/c}}. \end{aligned} \quad (9.25).$$

Το αποτέλεσμα εδώ είναι αρκετά γενικό και είναι εφαρμόσιμο επίσης στην περίπτωση διπλού συντονισμού, όπου τα $\frac{1}{2} g_{th}l$, $\Gamma_1 n_1 l/c$ και $\Gamma_2 n_2 l/c$ είναι πολύ μικρότερα από 1. Η εξίσωση (9.25) καταλήγει στην $g_{th}^2 = 4 n_1 n_2 \Gamma_1 \Gamma_2 / c^2$, που μπορεί να φανεί ότι είναι ίδια με τη συνθήκη κατωφλίου ($G_{th} = \Gamma$), που εξήχθη στην προηγούμενη ενότητα. Τώρα, για ταλαντωτή μονού συντονισμού, μόνο τα $\frac{1}{2} g_{th}l$ και $\Gamma_2 n_2 l/c$ είναι πολύ μικρότερα από τη μονάδα, αλλά $\exp(\Gamma_1 n_1 l/c) \gg 1$, λόγω της μεγάλης απώλειας εκπομπής των κατόπτρων. Έπειτα, βρίσκουμε ότι η συνθήκη κατωφλίου είναι

$$\begin{aligned} g_{th}^2 l^2 &= 8 \frac{(e^{\Gamma_1 n_1 l/c} - 1) \Gamma_2 n_2 l/c}{1 + e^{\Gamma_1 n_1 l/c}} \\ &= \frac{8 \Gamma_2 n_2 l}{c}. \end{aligned} \quad (9.26).$$

Συγκριτικά με την περίπτωση του διπλού συντονισμού, ο λόγος του τετραγώνου του κέρδους κατωφλίου, που είναι ίσος με το λόγο αντλίας κατωφλίου, είναι

$$\begin{aligned} \frac{(g_{th}^2)_{Singly}}{(g_{th}^2)_{Doubly}} &= \frac{(I_{th})_{Singly}}{(I_{th})_{Doubly}} \\ &\approx \frac{2}{1 - R_1}. \end{aligned} \quad (9.27)$$

Για $R_1 = 0,98$, αυτός ο λόγος δείχνει ότι το κατώφλι αντλίας για ταλαντωτή μονού συντονισμού είναι 100 φορές μεγαλύτερος από αυτόν του ταλαντωτή διπλού συντονισμού. Επομένως, οι παραμετρικοί ταλαντωτές μονού συντονισμού συνήθως απαιτούν λείζερ παλμών, ως πηγές αντλίας.

Η απόδοση μετατροπής μπορεί πάλι να υπολογιστεί από τη μελέτη του αριθμού της ενέργειας ή των φωτονίων, γνωρίζοντας ότι το κέρδος του ταλαντωτή πρέπει να συγκρατηθεί στο κατώφλι σε λειτουργία σταθερής κατάστασης (steady-state). Σε αυτήν την περίπτωση, η \mathcal{E}_2 είναι μια σταθερά και τα $\mathcal{E}_1(l)$ και $\mathcal{E}_3(l)$ εξάγονται από τις συζευγμένες κυματικές εξισώσεις στην (9.1)

$$\frac{\partial \mathcal{E}_1}{\partial z} = \frac{\omega_1 c}{n_1} K \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 \quad \text{και} \quad \frac{\partial \mathcal{E}_3}{\partial z} = -\frac{\omega_3 c}{n_3} K \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2. \quad (9.28).$$

Τα κύματα οπισθοδρομικής κίνησης στις ω_1 και ω_2 είναι αμελητέα. Με $\mathcal{E}_1(0) = 0$, βρίσκουμε

$$|\mathcal{E}_1(l)|^2 = \left(\frac{\omega_1 n_3}{\omega_3 n_1} \right) |\mathcal{E}_3(0)|^2 \sin^2 \beta l \quad (9.29) \quad \text{και} \quad |\mathcal{E}_3(l)|^2 = |\mathcal{E}_3(0)|^2 \cos^2 \beta l, \quad \text{όπου}$$

$$\beta^2 = \frac{\omega_1 \omega_3 c^2}{n_1 n_3} K^2 |\mathcal{E}_2|^2.$$

Ο αριθμός φωτονίων που παράγεται στην ω_1 στο κέρδος μονής διέλευσης, πρέπει να είναι ίσος με τον αριθμό των φωτονίων στην ω_2 που παράγεται και μετά χάνεται σε μια κυκλική διαδρομή γύρω από την κοιλότητα, έτσι ώστε

$$\frac{(2\Gamma_2 n_2 l/c) n_2 |\mathcal{E}_2|^2}{\omega_2} = \frac{n_1 |\mathcal{E}_1(l)|^2}{\omega_1} = \left(\frac{n_3}{\omega_3} \right) |\mathcal{E}_3(0)|^2 \sin^2 \beta l. \quad (9.30).$$

Η τελευταία ισότητα οδηγεί στη σχέση

$$\frac{\sin^2 \beta l}{\beta^2 l^2} = \frac{1}{N'}, \quad (9.31), \quad \text{όπου το} \quad N' = \frac{(\omega_1 \omega_2 c^2 / n_1 n_2) K^2 |\mathcal{E}_3(0)|^2}{8(\Gamma_2 n_2 l/c)} = \frac{g_0}{g_{th}}$$

έχει και πάλι τη φυσική σημασία, του πόσες φορές η ένταση αντλίας είναι πάνω από την τιμή κατωφλίου.

Η απόδοση μετατροπής δίνεται τότε από τη σχέση

$$\begin{aligned} \eta &= \frac{\mathbf{P}_1 + \mathbf{P}_2}{\mathbf{P}_3} \\ &= \frac{n_1 |\mathcal{E}_1(l)|^2 + (2\Gamma_2 n_2 l/c) n_2 |\mathcal{E}_2|^2}{n_3 |\mathcal{E}_3(0)|^2} \\ &= \sin^2 \beta l \end{aligned} \quad (9.32)$$

με $\sin^2 \beta l$ καθορισμένο από την (9.31). Για $N' = 4$ βρίσκουμε $\eta = 90\%$. Αυτό είναι φυσικά κάτι ιδανικό, αφού έχουμε χρησιμοποιήσει την προσέγγιση σταθερής κατάστασης επίπεδου κύματος στην παραγωγή. Για $N' = 4$, βρίσκουμε $\eta = 90\%$. Αυτό είναι φυσικά κάπως ιδανικό, αφού έχουμε χρησιμοποιήσει την προσέγγιση επίπεδου κύματος σταθερής κατάστασης στην παραγωγή. Ένας πιο ρεαλιστικός υπολογισμός με προφίλ Γκαουσιανής δέσμης έχει αποτελέσει αντικείμενο μελέτης του Bjorkholm.¹¹ Οι αποδόσεις μετατροπής της εξόδου στις ω_1 και ω_2 , οριζόμενες ως έξοδος σε αντιδιαστολή με την είσοδο, είναι

$$\begin{aligned}\eta_{\text{out}}(\omega_1) &= \left(\frac{\omega_1}{\omega_3}\right)\eta, \\ \eta_{\text{out}}(\omega_2) &= \frac{1 - R_2}{\Gamma_2 n_2 l / c} \left(\frac{\omega_2}{\omega_3}\right)\eta.\end{aligned}\quad (9.33)$$

Μια συνολική απόδοση μετατροπής εξόδου, $\eta_{\text{out}}(\omega_1) + \eta_{\text{out}}(\omega_2)$ σε ποσοστό που φτάνει και το 70%, έχει επιτευχθεί πειραματικά.

9.4 Προσαρμογή συχνότητας των παραμετρικών ταλαντωτών

Οι συχνότητες της εξόδου ενός παραμετρικού ταλαντωτή καθορίζονται από την ενέργεια και τη διατήρηση της ορμής $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ και $k_3 = k_1 + k_2$. Μαζί, αποφέρουν τη σχέση $\omega_3[n_3(\omega_3) - n_2(\omega_3 - \omega_1)] = \omega_1[n_1(\omega_1) + n_2(\omega_3 - \omega_1)]$ (9.34). Η εξίσωση (9.34) επιβάλλει τη συχνότητα σήματος ω_1 , εάν οι διασπορές των δεικτών διάθλασης $n_i(\omega_i)$ είναι γνωστές. Όπως συζητήθηκε νωρίτερα, στη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων, η (9.34) μπορεί να ικανοποιηθεί μόνο σε ανιστροπικούς κρυστάλλους. Με αρνητικούς μονοαξονικούς κρυστάλλους στην περιοχή κανονικής διασποράς, το $n_3(\omega_3)$ πρέπει να είναι ασύνηθες, ενώ τα $n_1(\omega_1)$ και $n_2(\omega_2)$ μπορούν να είναι και τα δύο είτε συνηθισμένα (προσαρμογή φάσης τύπου I) ή ένα σύνηθες και ένα ασύνηθες (προσαρμογή φάσης τύπου II).

Η εξίσωση (9.34) δείχνει ότι οι συχνότητες εξόδου του ταλαντωτή (ή οι συχνότητες για μέγιστο παραμετρικό κέρδος) μπορούν να προσαρμοστούν, εάν το $n(\omega)$ μπορεί να ποικίλει μέσω εξωτερικών παραμέτρων. Θεωρούμε εδώ, ότι η προσαρμογή της συχνότητας γίνεται μέσω γωνιακής περιστροφής του κρυστάλλου και μέσω θερμοκρασίας. Επίσης, θεωρούμε εδώ τον τύπο I προσαρμογής φάσης, για την ακόλουθη ανάλυση.

Στη γωνιακή προσαρμογή, έστω ότι οι συχνότητες εξόδου είναι ω_1 και ω_2 , όταν ο κρύσταλλος είναι προσανατολισμένος σε γωνία θ μεταξύ του άξονά του c και του άξονα της κοιλότητας. Έχουμε $\omega_3 n_3^e(\omega_3, \theta) = \omega_1 n_1^o(\omega_1) + \omega_2 n_2^o(\omega_2)$. (9.35). Εάν ο κρύσταλλος, τώρα, περιστραφεί κατά $\theta + \Delta\theta$, οι συχνότητες εξόδου θα αλλάξουν αντίστοιχα σε $\omega_1 + \Delta\omega$ και $\omega_2 - \Delta\omega$. Η εξίσωση (9.35) γίνεται

$$\begin{aligned}\omega_3 \left[n_3^e(\omega_3, \theta) + \frac{\partial n_3^e}{\partial \theta} \Delta\theta \right] &= (\omega_1 + \Delta\omega) \left[n_1^o(\omega_1) + \frac{\partial n_1^o}{\partial \omega_1} \Delta\omega + O(\Delta\omega^2) \right] \\ &+ (\omega_2 - \Delta\omega) \left[n_2^o(\omega_2) - \frac{\partial n_2^o}{\partial \omega_2} \Delta\omega + O(\Delta\omega^2) \right]\end{aligned}\quad (9.36) \text{ ή}$$

$$\Delta\omega \cong \omega_3 \frac{\partial n_3^e}{\partial \theta} \Delta\theta / \left\{ \left[\omega_1 \frac{\partial n_1^0}{\partial \omega_1} - \omega_2 \frac{\partial n_2^0}{\partial \omega_2} \right] + n_1^0(\omega_1) - n_2^0(\omega_2) \right\} \quad (9.37), \text{ όπου } O(\Delta\omega^2) \text{ είναι}$$

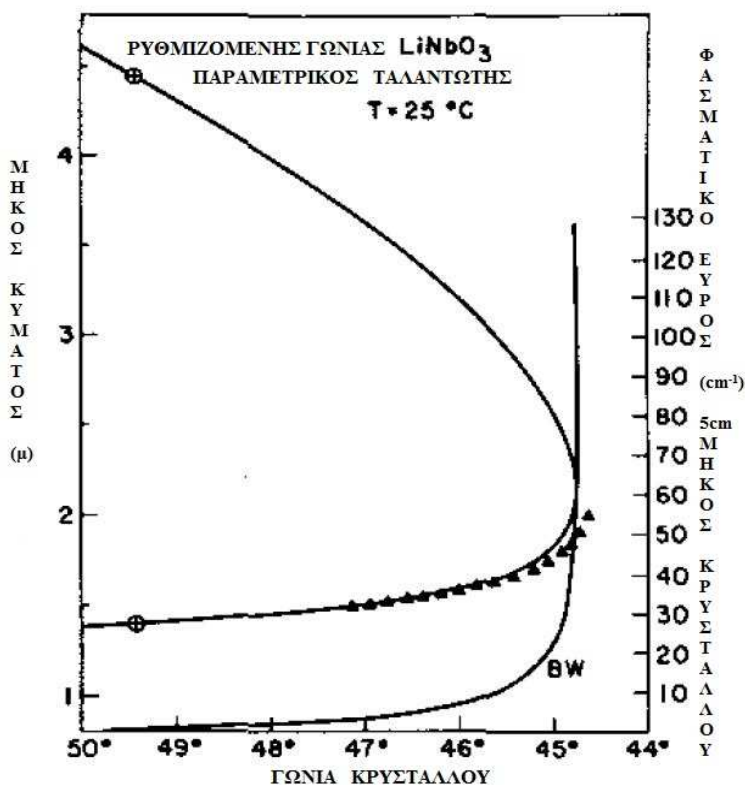
όροι τάξεων υψηλότεροι ή ίσοι με το $(\Delta\omega)^2$. Για μονοαξονικούς κρυστάλλους, βρίσκει κανείς ότι

$$\frac{dn_3^e}{d\theta} = -\frac{(n_3^e)^3}{2} \sin 2\theta \left[\left(\frac{1}{n_3^{em}} \right)^2 - \left(\frac{1}{n_3^0} \right)^2 \right]. \quad (9.38).$$

Έπειτα, με δεδομένες τις διασπορές του $n_i(\omega_i)$, η καμπύλη γωνιακής προσαρμογής ω_1 (ή ω_2) σε αντιδιαστολή με τη θ , μπορεί να υπολογιστεί από τις (9.37) και (9.38). Όμως, καθώς η ω_1 πλησιάζει την $\omega_3/2$, οι τετραγωνικοί όροι της $\Delta\omega$ στην (9.36) γίνονται σημαντικοί. Κρατώντας τους όρους $(\Delta\omega)^2$ στην (9.36) κοντά στο εκφυλισμένο σημείο λειτουργίας $\theta \approx \theta_0$ και $\omega_1 = 1/2 \omega_3$, βρίσκουμε αντί της (9.37),

$$\Delta\omega = \left\{ \omega_3 \left(\frac{\partial n_3^e}{\partial \theta} \right)_{\theta_0} / \left[2 \frac{\partial n}{\partial \omega} + \frac{\omega_3}{2} \frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} \right]_{(1/2)\omega_3} \right\}^{1/2} (\Delta\theta)^{1/2}. \quad (9.39)$$

Ρύθμιση συχνότητας Παραμετρικών ταλαντωτών



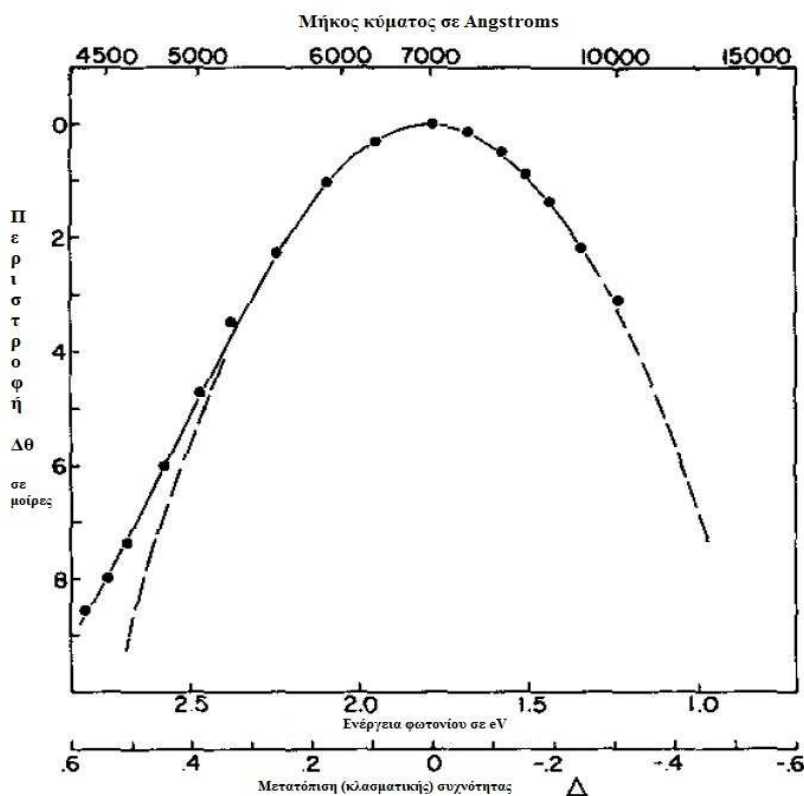
Σχ. 9.2 Εύρος προσαρμογής και πλάτος ζώνης κέρδους για τον γωνιακά ρυθμιζόμενο, μονού συντονισμού LiNbO_3 παραμετρικού ταλαντωτή. Το μήκος κύματος αντλίας είναι $1,06\mu\text{m}$ (Βιβλ. Αναφ. 14).

Ως παραδείγματα, δείχνουμε στα σχήματα 9.2 και 9.3 τις γωνιακές καμπύλες προσαρμογής ενός LiNbO_3 , ο οποίος αντλείται από μια δέσμη λέιζερ μεγέθους 1,06- μm και ενός ADP, ο οποίος με τη σειρά του, αντλείται από μια δέσμη 0,347- μm . Η προσαρμογή είναι της τάξης των 1000 cm^{-1} ανά μοίρα περιστροφή, μακριά από το σημείο εκφυλισμού. Η προσαρμογή της θερμοκρασίας ακολουθεί παρόμοια αντιμετώπιση. Υποθέτουμε ότι σε θερμοκρασία T

$$\omega_3 n_3^e(\omega_3, T) \approx \omega_1 n_1^0(\omega_1, T) + \omega_2 n_2^0(\omega_2, T) \quad (9.40)$$

Στο $T + \Delta T$, οι συχνότητες εξόδου αλλάζουν σε $\omega_1 + \Delta\omega$ και $\omega_2 - \Delta\omega$, και έχουμε, μακριά από εκφυλισμένο σημείο λειτουργίας,

$$\begin{aligned} \omega_3 \left[n_3^e(\omega_3, T) + \frac{\partial n_3^e}{\partial T} \Delta T \right] &= (\omega_1 + \Delta\omega) \left[n_1^0(\omega_1, T) + \frac{\partial n_1^0}{\partial T} \Delta T + \frac{\partial n_1^0}{\partial \omega_1} \Delta\omega \right] \\ &+ (\omega_2 - \Delta\omega) \left[n_2^0(\omega_2, T) + \frac{\partial n_2^0}{\partial T} \Delta T - \frac{\partial n_2^0}{\partial \omega_2} \Delta\omega \right] \\ \Delta\omega &= \frac{\omega_3 (\partial n_3^e / \partial T) - \omega_1 (\partial n_1^0 / \partial T) - \omega_2 (\partial n_2^0 / \partial T)}{n_1^0 - n_2^0 + \omega_1 (\partial n_1^0 / \partial \omega) - \omega_2 (\partial n_2^0 / \partial \omega)}. \end{aligned} \quad (9.41)$$



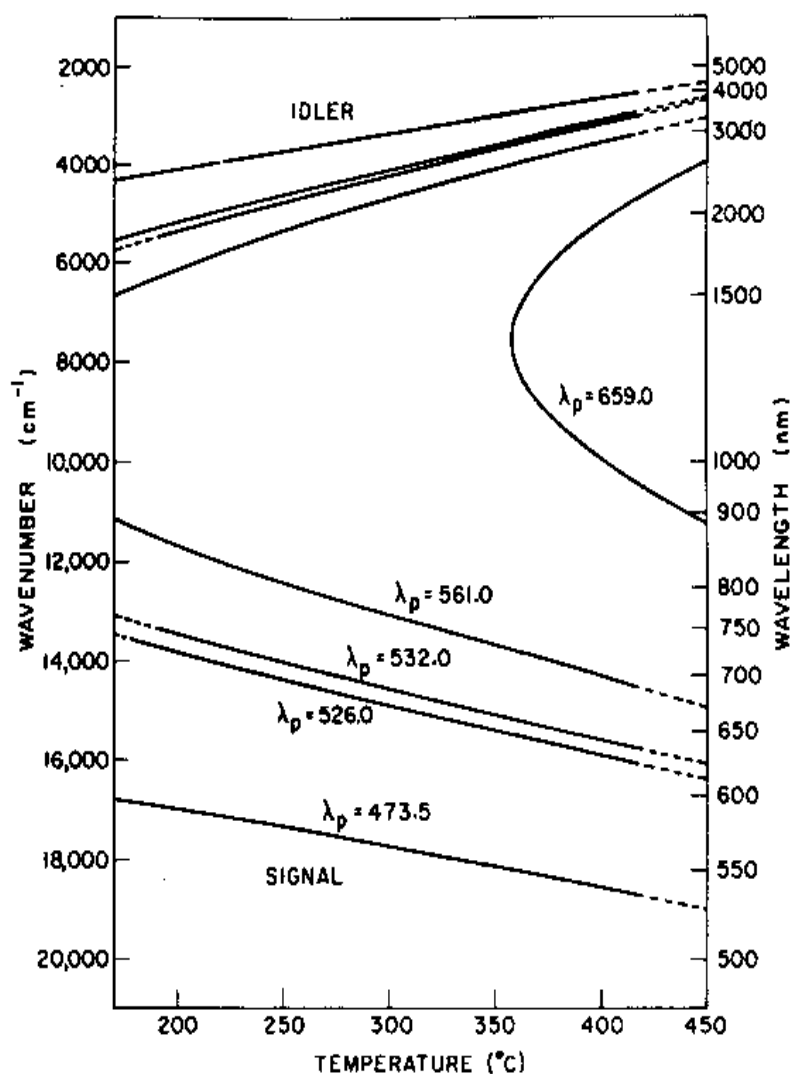
Σχ. 9.3 Καμπύλη προσαρμογής για τον γωνιακά ρυθμισμένο ADP παραμετρικό ταλαντωτή. Το μήκος κύματος αντλίας είναι 0,347 μm . Η γωνία $\Delta\theta$ μετρήθηκε ως προς τη γωνία στην οποία εκφυλίζονται το σήμα και οι πιο ανενεργές συχνότητες. Η διακεκομμένη καμπύλη είναι μια θεωρητική καμπύλη. (D.Magde & H. Mahr, *Phys. Rev. Lett.* 18, 905 (1967)).

Κοντά στο εκφυλισμένο σημείο λειτουργίας, $T-T_0$ και $\omega_1 = \omega_3/2$, βρίσκουμε

$$\Delta\omega = \left\{ \omega_3 \left[\frac{\partial n_3^e}{\partial T} - \frac{\partial n_1^e}{\partial T} \right]_{T_0} / \left[2 \frac{\partial n_1}{\partial \omega} + \frac{\omega_3}{2} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} \right) \right]_{(1/2)\omega_3} \right\}^{1/2} (\Delta T)^{1/2}. \quad (9.42)$$

Οι καμπύλες προσαρμογής θερμοκρασίας του LiNbO_3 για μερικές συχνότητες αντλίας λέιζερ, φαίνονται στο Σχ. 9.4 ως παράδειγμα. Με ένα μήκος κύματος αντλίας στα $0,53\mu\text{m}$, το σημείο εκφυλισμού είναι στους $T_0 \cong 49.3^\circ \text{C}$ και η προσαρμογή είναι $300\text{cm}^{-1}/(^\circ)$. Ενώ η $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 = 0$ καθορίζει τις συχνότητες εξόδου, η $\Delta k l = 2\pi$, καθορίζει το πλάτος ζώνης του κέρδους, ενός παραμετρικού ταλαντωτή. Αφού

$$\Delta k l = \left| n_1 - n_2 + \omega_1 \left(\frac{\partial n_1}{\partial \omega_1} \right) - \omega_2 \left(\frac{\partial n_2}{\partial \omega_2} \right) \right| l \delta\omega / c \quad (9.43)$$



Σχ. 9.4 Καμπύλες προσαρμογής για τον ρυθμιζόμενο θερμοκρασιακά LiNbO_3 παραμετρικό ταλαντωτή σε διάφορες συχνότητες αντλίας. (R.L. Byer, έκδ. H. Rabin & C.L. Tang, 'Quantum Electronics' (Academic Press, NY, 1975), τόμος 1, σελ. 631)).

το πλάτος ζώνης δίνεται από τη σχέση

$$\delta\omega = 2\pi c / l \left| n_1 - n_2 + \omega_1 \left(\frac{\partial n_1}{\partial \omega_1} \right) - \omega_2 \left(\frac{\partial n_2}{\partial \omega_2} \right) \right|. \quad (9.44).$$

Γύρω από το εκφυλισμένο σημείο λειτουργίας, μια καλύτερη προσέγγιση δίνει

$$\delta\omega = \left\{ \frac{2\pi c}{l} \left/ \left[2 \frac{\partial n}{\partial \omega} + \frac{\omega_3}{2} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2} \right) \right]_{\omega_{1/2}} \right. \right\}^{1/2} \quad (9.45)$$

Το αποτέλεσμα εδώ δείχνει ότι κοντά στο σημείο εκφυλισμού, το πλάτος ζώνης μπορεί να είναι αρκετά μεγάλο, $\sim 100\text{cm}^{-1}$ για $l = 1\text{cm}$. Μακριά από το σημείο εκφυλισμού, το $\delta\omega$ είναι συνήθως γύρω στα $5 - 10 \text{ cm}^{-1}$. Ένας πιο σκεδαστικός κρύσταλλος αποφέρει ένα στενότερο πλάτος ζώνης. Το πλάτος γραμμής μπορεί να γίνει σημαντικά στενότερο, χρησιμοποιώντας στοιχεία επιλογής συχνότητας στην κοιλότητα.

Table 9.1

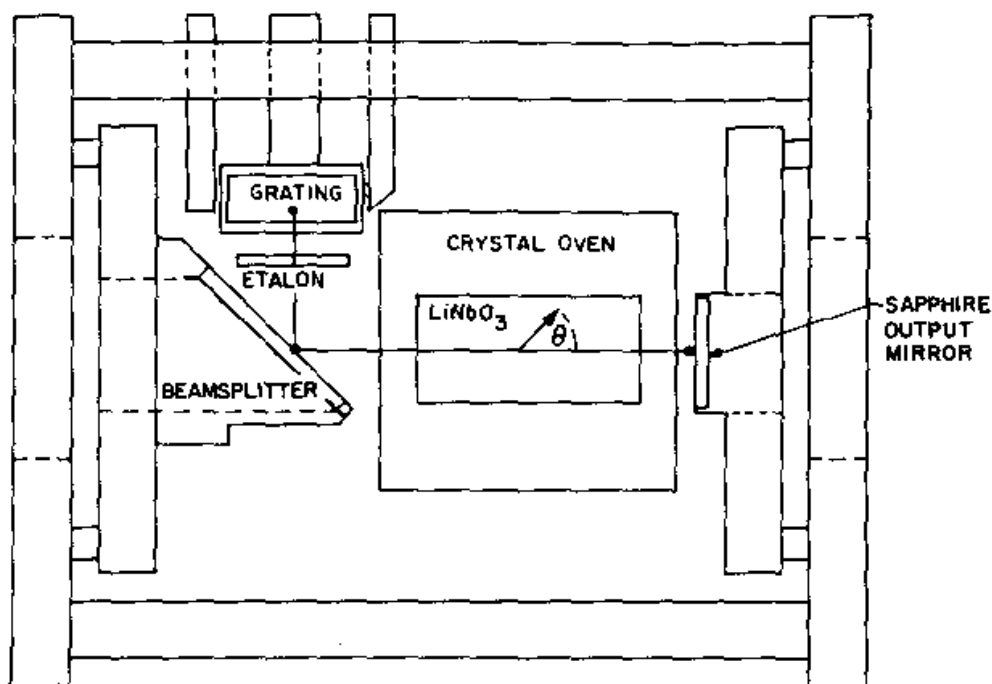
Αντιπροσωπευτικοί παραμετρικοί ταλαντωτές

Λείζερ αντλίας	Μη γραμμικό Υλικό	Ισχύς εξόδου & Πλάτος παλμού	Απόδοση Μετατροπής	Εύρος ρύθμισης	Βιβλιογραφική Αναφορά
Nd : Γυαλί και δεύτερες & τρίτες αρμονικές στα 0.532 and 0.35 μm	KDP	100 kW (20 ns)	3%	0.957-1.17 μm (0.532 μm pump) 0.48-0.58 m and 0.96-1.16 μm (0.35 μm pump)	A. A. Akhmanov, A. I. Kovtigin, V. A. Kolosov, A. S. Fiskarkas, V. V. Fadeev, and R. V. Khoklov, <i>JETP Lett.</i> 3, 241 (1966) S. A. Akhmanov, O. N. Chunsky, V. V. Fadeev, R. V. Khoklov, D. H. Klyshki, A. I. Kovtigin, and A. S. Fiskarskas, Presented at Symp. Modern Optics, Brooklyn, 1967 J. M. Yarborough and G. A. Massey, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 18, 438 (1971) R. W. Wallace, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 17, 497 (1970)
Nd : YAG που λειτουργεί ADP στην τέταρτη αρμονική αρμονική 0.266 μm	ADP	100 kW (2 ns)	25%	0.42-0.73 μm	
Nd : YAG που λειτουργεί στη δεύτερη αρμονική μήκη κύματος: 0.472, 0.532, 0.579, 0.635 μm	LiNbP ₃	0.1-10 kW (-200 ns)	-45%	0.55-3.65 μm	
Nd : YAG 1.06 μm	LiNbO ₃	0.1-1 MW (-15 ns)	-40%	1.4-4.4 μm	R. L. Herbst, R. N. Fleming, and R. L. Byer, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 25, 520 (1974) E. C. Johnson, and H. E. Puthoff, J. Soo Hoo, and S. S. Saxena, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 18, 181 (1971)
Ruby 0.6943 μm	LiNbO ₃	3 W	10 ⁻⁶	66-200 μm	

Πίνακας 9.1 Αντιπροσωπευτικοί παραμετρικοί ταλαντωτές

Nd : Γεωλί που λειτουργεί στη δεύτερη αρμονική 0.53 μm	α-HfO₃ LiIO₃	-10 MW (20 ns)	10%	0.68-2.4 μm	A. I. Izraïlenko, A. I. Kovrigin, and P. V. Nikles, <i>JETP Lett.</i> 12 , 331 (1970); and A. I. Kovrigin P. V. Nikles, <i>JETP Lett.</i> 13 , 313 (1971)
Λείζερ ρουμπινίου 0.6943 μm Ruby laser 0.6943 μm	LiIO₃ LiIO₃	2 kW (20 ns) 100 kW (15 ns)	-1% 10%	0.77-4 μm 1.1-1.9 μm	L. S. Goldberg, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 17 , 489 (1970) A. J. Campillo and C. L. Tang, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 19 , 36 (1971); A. J. Campillo, <i>IEEE J. Quant. Electron.</i> 8 , 809 (1972) G. Nath and G. Paufi, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 22 , 75 (1973)
Λείζερ ρουμπινίου που λειτουργεί στη δεύτερη αρμονική 0.347 μm Nd : YAG 1.833 μm	LiIO₃ CdSe	10 kW (5 ns) -1 kW (100 ns)	8% 40%	0.415-2.1 μm 2.2-2.3 μm 10.5-9.7 μm	R. L. Herbst and R. L. Byer, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 21 , 189 (1972) A. A. Davydov, L. A. Kulevskii, A. M. Prokhorov, A. D. Savel'ev, and V. V. Smirnov, <i>JETP Lett.</i> 15 , 513 (1972)
CaF₂ : Dy 2.36 μm	CdSe	5 kW (30 ns)	0.5%	3.3 μm 7.86 μm	J. A. Weiss and L. S. Goldberg, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 24 , 389 (1974)
HF laser 2.87 μm	CdSe	800 W (-300 ns)	10%	4.3-4.5 μm 8.1-8.3 μm	
Nd : CaWO₄ 1.065 μm	Ag₃AsS₃	100 W (25 ns)	-0.1%	1.22-8.5 μm	D. C. Hanna, B. Luther Davies, H. N. Rutt, and R. C. Smith, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 20 , 34 (1972); D. C. Hanna, B. Luther Davies, and B. C. Smith, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 22 , 440 (1973)

Πίνακας 9.1 Αντιπροσωπευτικοί παραμετρικοί ταλαντωτές (συνέχεια)



Σχ. 9.5 Σχέδιο κοιλότητας μεμονωμένου συντονισμού για έναν παραμετρικό ταλαντωτή γωνιακής προσαρμογής. (Βιβλ. Αναφ. 14).

Το Σχ. 9.5 δείχνει έναν LiNbO_3 παραμετρικό ταλαντωτή μεμονωμένου συντονισμού, σχεδιασμένο από τον Byer.^{13, 14} Ο διαχωριστής δέσμης εκπέμπει 90% της δέσμης αντλίας και αντανακλά 99% από το σήμα δέσμης. Η καμπύλη γωνιακής προσαρμογής αυτού του ταλαντωτή φαίνεται στο Σχ. 9.2 μαζί με το πλάτος ζώνης του κέρδους. Εάν ένα 600-line/mm υπό διαμορφούμενο φράγμα (blaze grating) στα 1,8 μm , χρησιμοποιηθεί ως το όπισθεν κάτοπτρο της κοιλότητας, το σήμα εξόδου έχει τότε πλάτος γραμμής (linewidth) γύρω στο cm^{-1} για σημείο δέσμης (beam spot) μεγέθους 1,6 mm. Με έναν πρισματικό διευρυντή δέσμης στην κοιλότητα, προκειμένου να αυξηθεί το μέγεθος του σημείου δέσμης στο φράγμα, το πλάτος γραμμής μπορεί να γίνει στενότερο κατά μια τάξη μεγέθους. Εναλλακτικά, ένα etalon 1-mm με κλίση, μπορεί να εισαχθεί στην κοιλότητα για να μειώσει το πλάτος γραμμής σε λιγότερο από $0,1\text{cm}^{-1}$. Άλλα στοιχεία επιλογής συχνότητας, όπως φίλτρα διπλοθλαστικών στοιχείων και συναρμολογούμενα etalon, μπορούν επίσης να χρησιμοποιηθούν στην κοιλότητα για τη μείωση του πλάτους γραμμής εξόδου.

Στον Πίνακα 9.1 αναπαράγουμε τη λίστα που έφτιαξαν οι Byer & Herbst¹⁴ και η

οποία περιγράφει τα χαρακτηριστικά λειτουργίας για μερικούς αντιπροσωπευτικούς παραμετρικούς ταλαντωτές.

9.5 Παραμετρικός φθορισμός

Η παραμετρική ταλάντωση συμβαίνει μέσω της ενίσχυσης του θορύβου φωτονίων, η οποία προκαλείται από παραμετρική διασπορά ή φθορισμό. Σε γενικές γραμμές, στην παραμετρική διαδικασία, ένα φωτόνιο στην ω_3 σκεδάζεται ως ένα φωτόνιο στην ω_1 και ένα φωτόνιο στην ω_2 με $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ και $k_1 + k_2 \equiv k_3$. Η παραμετρική σκέδαση ή φθορισμός αναφέρεται στην διαδικασία παραμετρικής σκέδασης, όπου οι αρχικοί αριθμοί φωτονίων στην ω_1 και ω_2 είναι μηδέν. Αυτή η μη γραμμική οπτική εκπομπή μπορεί με κατάλληλο τρόπο να περιγραφεί μόνο μέσω των κβαντισμό των πεδίων.¹⁵

Στην παραμετρική διαδικασία με αμελητέα απώλεια αντλίας, το έντονο πεδίο αντλίας μπορεί να αντιμετωπιστεί ως μια σταθερά κλασσικού πεδίου. Η Χαμιλτονιανή που διέπει το πρόβλημα, μπορεί να γραφτεί ως

$$\mathcal{H} = \sum_{i=1,2} \hbar \omega_i (a_i^\dagger a_i + \frac{1}{2}) + \frac{1}{2} \hbar G_0 [a_1^\dagger a_2^\dagger e^{-i\omega_3 t} + a_1 a_2 e^{i\omega_3 t}] \quad (9.46)$$

όπου a_i^\dagger και a_i είναι τελεστές δημιουργίας και μηδενισμού για φωτόνια στην ω_i αντίστοιχα, και το G_0 δίνεται στην (9.12). Η εξίσωση κίνησης Heisenberg για έναν τελεστή X είναι

$$\frac{dX}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [X, \mathcal{H}] \quad (9.47), \text{ από την οποία εξάγουμε } \frac{da_1^\dagger}{dt} = i\omega_1 a_1^\dagger + i\frac{1}{2} G_0 a_2 e^{i\omega_3 t}$$

$$\frac{da_2}{dt} = -i\omega_2 a_2 - i\frac{1}{2} G_0 a_1^\dagger e^{-i\omega_3 t}. \quad (9.48). \text{ Το παραπάνω σετ εξισώσεων μπορεί να λυθεί}$$

και να δώσει

$$\begin{aligned} a_1^\dagger(t) &= [a_1^\dagger(0) \cosh \frac{1}{2} G_0 t + i a_2(0) \sinh \frac{1}{2} G_0 t] e^{i\omega_1 t} \\ a_2(t) &= [a_2(0) \cosh \frac{1}{2} G_0 t - i a_1(0) \sinh \frac{1}{2} G_0 t] e^{-i\omega_2 t}. \end{aligned} \quad (9.49)$$

Τότε, (υποθέτοντας ότι $\langle a_1(0) \rangle = \langle a_2(0) \rangle = 0$), οι μέσοι αριθμοί για φωτόνια στην ω_1 και ω_2 είναι αντίστοιχα

$$\begin{aligned}
\langle n_1(t) \rangle &= \langle a_1^\dagger(t) a_1(t) \rangle \\
&= \langle n_1(0) \rangle \cosh^2 \frac{1}{2} G_0 t + (1 + \langle n_2(0) \rangle) \sinh^2 \frac{1}{2} G_0 t \\
\langle n_2(t) \rangle &= \langle a_2^\dagger(t) a_2(t) \rangle \\
&= \langle n_2(0) \rangle \cosh^2 \frac{1}{2} G_0 t + (1 + \langle n_1(0) \rangle) \sinh^2 \frac{1}{2} G_0 t. \quad (9.50)
\end{aligned}$$

Το αποτέλεσμα εδώ δείχνει ξεκάθαρα ότι ο αριθμός των φωτονίων στις ω_1 και ω_2 μπορεί να αυξηθεί από το μηδέν στην παραμετρική διαδικασία. Για $\langle n_1(0) \rangle = 0$ και $\langle n_2(0) \rangle = 0$, έχουμε $\langle n_1(t) \rangle = \langle n_2(t) \rangle = \sinh^2 \frac{1}{2} G_0 t$. (9.51).

Ενώ ο παραμετρικός φθορισμός οδηγεί σε παραμετρική ταλάντωση, μπορεί επίσης να παρέχει αρχικά φωτόνια ως είσοδο ενός παραμετρικού ενισχυτή. Εάν το κέρδος μονής διέλευσης ενός ενισχυτή είναι μεγάλο, η έξοδος μπορεί να είναι σημαντική. Αυτή η παραμετρική ενίσχυση μονής διέλευσης του θορύβου πρωτονίων σε έναν μη γραμμικό κρύσταλλο είναι γνωστή ως παραμετρικός υπερφθορισμός.^{15,16} Για να βρεθεί η ισχύς εξόδου, σημειώνουμε στην (9.50) ότι η έξοδος στην ω_1 (ή στην ω_2) αυξάνεται πραγματικά από τον αρχικό θόρυβο φωτονίων στην ω_2 (ή ω_1). Μπορούμε να θεωρήσουμε ότι δημιουργείται ένα φωτόνιο ανά ρυθμό στην ω_2 (ή ω_1) μέσω της παραμετρικής σκέδασης στο τέλος της εισόδου, $z=0$ και να χρησιμοποιήσουμε την (9.3) για να υπολογίσουμε την έξοδο του παραμετρικού ενισχυτή στην ω_1 (ή ω_2). Για ένα φωτόνιο σε κάθε ρυθμό, η αντίστοιχη ένταση εισόδου στην ω_2 είναι $h\omega_2 c/n_2 V$ και η έξοδος στην ω_1 στο $z=l$ είναι

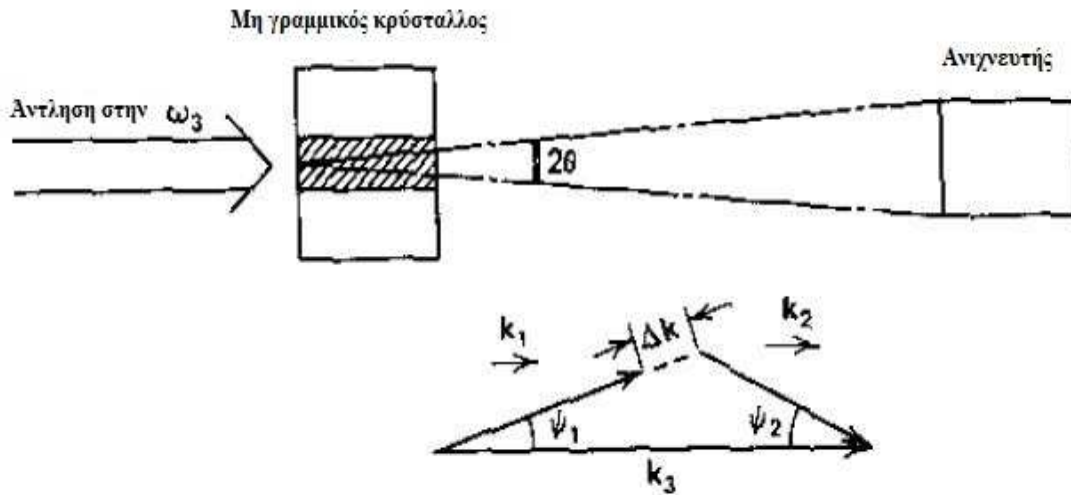
$$I_s(\omega_1) = \left(\frac{g_0^2 \hbar \omega_1 c}{g^2 V} \right) \sinh^2 \frac{1}{2} gl. \quad (9.52)$$

Ο αριθμός των ρυθμών στο συχνοτικό εύρος ω_2 έως $\omega_2 + d\omega$ και σε μια στερεά γωνία που εκτείνεται κατά k_2 από ψ_2 ως $\psi_2 + d\psi$ (δες Σχ. 9.6) είναι, για μικρό ψ_2 ,

$$\begin{aligned}
dN &= \frac{2\pi k_2^2 \sin \psi_2 dk_2 d\psi_2}{8\pi^3/V} \\
&= \frac{V n_2}{4\pi^2 c} k_1^2 \psi_1 d\psi_1 d\omega. \quad (9.53)
\end{aligned}$$

Τότε, η ολική ισχύς εξόδου σε μια δέσμη διατομής A μεταξύ ω_1 και $\omega_1 - d\omega$, που συλλέγεται από ένα μακρινό ανιχνευτή με μικρή γωνία συλλογής θ , δίνεται από

$$\begin{aligned}
 P(\omega_1) d\omega &= \int I_s(\omega_1) A dN \\
 &= (d\omega) \frac{n_1^2 n_2 \hbar \omega_1^3 g_0^2 l^2 A}{16 \pi^2 c^2} \int_0^\theta d\psi_1 \frac{\sinh^2 \frac{1}{2} g l}{(\frac{1}{2} g l)^2} \psi_1.
 \end{aligned}
 \tag{9.54}$$



Σχ. 9.6 Γεωμετρία παραμετρικού φθορισμού που συλλέγεται από έναν φωτοανιχνευτή

Εδώ, η $g^2 = g_0^2 - (\Delta k)^2$ είναι μια συνάρτηση του ψ_1 μέσω της Δk . Στην μπροστινή κατεύθυνση, το $\psi_1 = 0$, η συνθήκη προσαρμογής φάσης $\Delta k = 0$ ικανοποιείται στην $\omega_1 = \omega_1^0$ και $\omega_2 = \omega_2^0$ τέτοιο ώστε $\omega_1^0 n_1 + \omega_2^0 n_2 = \omega_3 n_3$. Από το Σχ. 9.6, βρίσκουμε για μικρό ψ_1 και ψ_2 ,

$$k_1^2 - (k_2 + \Delta k - k_3)^2 = 2k_2 k_3 (1 - \cos \psi_1)$$

$$\begin{aligned}
 \Delta k &\cong (k_3 - k_1 - k_2) + \left(\frac{k_1 k_3}{2k_2} \right) \psi_1^2 \\
 &= -a \Delta\omega + b \psi_1^2
 \end{aligned}
 \tag{9.55}, \text{ όπου}$$

$$\begin{aligned}
 a &= \left[\left(\frac{dk_1}{d\omega_1} \right)_{\omega_1^0} - \left(\frac{dk_2}{d\omega_2} \right)_{\omega_2^0} \right], \\
 \Delta\omega &= \omega_1 - \omega_1^0 = \omega_2^0 - \omega_2, \\
 b &= \frac{k_1 k_3}{2k_2}.
 \end{aligned}$$

Η εξίσωση (9.54) γίνεται

$$P(\omega_1) = \frac{n_1^2 n_2 \hbar \omega_1^3 g_0^2 l^2 A}{16\pi^2 c^2} \int_0^\theta \frac{\sinh^2 \left\{ \left[g_0^2 - (-a\Delta\omega + b\psi_1^2)^2 \right]^{1/2} l/2 \right\}}{\left\{ \left[g_0^2 - (-a\Delta\omega + b\psi_1^2)^2 \right]^{1/2} l/2 \right\}^2} \psi_1 d\psi_1. \quad (9.56)$$

Αυτό το αποτέλεσμα δείχνει ότι το $P(\omega_1)$ είναι μέγιστο στην $\omega_1 = \omega_1^0$, δηλαδή, όταν τα κύματα στις ω_1 , ω_2 και ω_3 έχουν ίδια φάση στην μπροστινή κατεύθυνση. Τα σημεία ήμισυς ισχύος εμφανίζονται στην $\omega_1 = \omega_1^0 + |\Delta\omega_+|$ και $\omega_1 = \omega_1^0 - |\Delta\omega_-|$ και η $|\Delta\omega_-|$ δίνεται προσεγγιστικά από την

$$\frac{\sinh^2 \left\{ \left[g_0^2 - (b\theta^2 \mp a|\Delta\omega_\pm|)^2 \right]^{1/2} l/2 \right\}}{\left\{ \left[g_0^2 - (b\theta^2 \mp a|\Delta\omega_\pm|)^2 \right]^{1/2} l/2 \right\}^2} \bigg/ \frac{\sinh^2(g_0 l/2)}{(g_0 l/2)^2} \\ \simeq e^{[g_0^2 - (b\theta^2 \mp a|\Delta\omega_\pm|)^2]^{1/2} l} / e^{g_0 l} = \frac{1}{2},$$

η οποία δίνει για $g_0 \gg b\theta^2$,

$$|\Delta\omega_+| = \frac{1}{a} \left[\left(\frac{2g_0}{l} \ln 2 \right)^{1/2} + b\theta^2 \right] \\ |\Delta\omega_-| = \frac{1}{a} \left[\left(\frac{2g_0}{l} \ln 2 \right)^{1/2} - b\theta^2 \right]. \quad (9.57)$$

Επομένως, το πλάτος ζώνης του παραμετρικού υπερφθορισμού που παρατηρήθηκε από τον ανιχνευτή είναι

$$\Delta\omega_{\text{BW}} = |\Delta\omega_+| + |\Delta\omega_-| \\ = \frac{2}{a} \left(\frac{2g_0}{l} \ln 2 \right)^{1/2}. \quad (9.58)$$

Ένας πρόχειρος υπολογισμός, χρησιμοποιώντας την (9.56) δίνει, για $g_0 l = 50$ και ω_3 στο εγγύς υπέρυθρο, ένα $P(\omega_1)/A$ τόσο μεγάλο, που φτάνει τα 10^7 W / cm^2 ανά cm^{-1} σε έναν 10-mrad πρόσθιο κώνο. Ακόμα και σε έναν κρύσταλλο LiNbO_3 , το $g_0 l = 50$ απαιτεί ένταση δέσμης αντλίας, περίπου 150 MW/cm^2 . Αυτή η ένταση όμως, μπορεί να αποκτηθεί εύκολα με παλμούς λέιζερ εγκλείδωσης ρυθμών, χωρίς να καταστραφεί ο κρύσταλλος. Πράγματι, ο παραμετρικός υπερφθορισμός έχει γίνει ο πιο ρεαλιστικός τρόπος για να παραχθούν ρυθμιζόμενοι παλμοί διάρκειας picoseconds στην περιοχή του κοντινού υπέρυθρου.¹⁷ Η γενική χρονο-εξαρτώμενη περιγραφή της παραμετρικής

ενίσχυσης ή του υπερφθορισμού από υπερβραχείς παλμούς αντλίας έχει δοθεί από τους Akhmanov κ.α.,¹⁸ αλλά τα ποιοτικά χαρακτηριστικά είναι ίδια με αυτά που συζητήθηκαν στην Ενότητα 7.6. Συγκεκριμένα, αν η ασυμφωνία στην ταχύτητα ομάδας μπορεί να αγνοηθεί, τότε η ημι-στατική λύση είναι ακόμα εφαρμόσιμη στο κινούμενο πλαίσιο (frame) των διαδιδόμενων παλμών.

Ο παραμετρικός φθορισμός ή υπερφθορισμός μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί για να καθορίσει πειραματικά τις συχνοτικές καμπύλες προσαρμογής των παραμετρικών ταλαντωτών.^{15,16} Αυτό είναι περισσότερο χρήσιμο, όταν τα δεδομένα του δείκτη διάθλασης των κρυστάλλων δεν είναι άμεσα διαθέσιμα.

9.6 Παραμετρικός ταλαντωτής οπισθοδρομικής διάδοσης

Η περίπτωση της παραμετρικής ενίσχυσης με αντίθετα διαδιδόμενα σήματα και ανενεργό κύμα δείχνει ενδιαφέροντα χαρακτηριστικά και αξίζει ειδική μελέτη. Τα δυο κύματα αναπτύσσονται σε αντίθετες κατευθύνσεις και μέσω της παραμετρικής αλληλεπίδρασης, επιβάλλουν μια θετική ανάδραση το ένα στο άλλο. Τότε, με επαρκές κέρδος, το σύστημα ίσως γίνει ένας μη κατοπτρικός ταλαντωτής, δηλαδή, ίσως αποφέρει μια πεπερασμένη έξοδο με μηδενική είσοδο.¹⁹ Η αρχή είναι παρόμοια με αυτήν της οπισθοδρομικής κυματικής διάδοσης σε σωλήνα.²⁰

Οι εξισώσεις που διέπουν την οπισθοδρομική παραμετρική ενίσχυση είναι μια απλή τροποποίηση της (9.1). Με αμελητέα απώλεια αντλίας και γραμμική εξασθένιση

$$\text{είναι} \quad \frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}_1 = \frac{i\omega_1^2}{k_1} K \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 e^{i \Delta k z + i\theta_0} \quad \text{και} \quad \frac{\partial}{\partial z} \mathcal{E}_2^* = \frac{i\omega_2^2}{k_2} K \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* e^{-i \Delta k z - i\theta_0} \quad (9.59),$$

θεωρώντας ότι $E_1 = \mathcal{E}_1 \exp[ik_1 z - i\omega_1 t + i\phi_1]$, $E_2 = \mathcal{E}_2 \exp[-ik_2 z - i\omega_2 t + i\phi_2]$, $\mathcal{E}_3 =$ σταθερά και $\Delta k = k_3 - k_1 + k_2$. Οι συνοριακές συνθήκες εισόδου είναι $\mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_1(0)$ στο $z=0$ και $\mathcal{E}_2^* = \mathcal{E}_2^*(l)$ στο $z=l$. Η λύση της (9.59) για $\Delta k = 0$ είναι (το $\theta_0 = \pi/2$ για λόγους απλούστευσης)

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}_1(z) &= \mathcal{E}_1(0) \left[\cos \frac{g_0(z-l)}{2} / \cos \frac{g_0 l}{2} \right] \\
&\quad + i \frac{\omega_1}{\omega_2} \left(\frac{k_2}{k_1} \right)^{1/2} \mathcal{E}_2^*(l) \left[\sin \frac{g_0 z}{2} / \cos \frac{g_0 l}{2} \right], \\
\mathcal{E}_2^*(z) &= i \frac{\omega_2}{\omega_1} \left(\frac{k_1}{k_2} \right)^{1/2} \mathcal{E}_1(0) \left[\sin \frac{g_0(z-l)}{2} / \cos \frac{g_0 l}{2} \right] \\
&\quad + \mathcal{E}_2^*(l) \left[\cos \frac{g_0 z}{2} / \cos \frac{g_0 l}{2} \right]
\end{aligned} \tag{9.60}$$

με g_0 δεδομένο στην (9.3) και επομένως η έξοδος είναι

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}_1(l) &= \mathcal{E}_1(0) / \cos \frac{g_0 l}{2} + i \frac{\omega_1}{\omega_2} \left(\frac{k_2}{k_1} \right)^{1/2} \mathcal{E}_2^*(l) \tan \frac{g_0 l}{2}, \\
\mathcal{E}_2^*(0) &= -i \frac{\omega_2}{\omega_1} \left(\frac{k_1}{k_2} \right)^{1/2} \mathcal{E}_1(0) \tan \frac{g_0 l}{2} + \mathcal{E}_2^*(l) / \cos \frac{g_0 l}{2}.
\end{aligned} \tag{9.61}$$

Εάν $g_0 l / 2 \rightarrow \pi/2$, τότε και τα δύο $\mathcal{E}_1(l)$ και $\mathcal{E}_2^*(0)$ γίνονται άπειρα, εκτός κι αν η είσοδος $\mathcal{E}_1(0)$ και $\mathcal{E}_2^*(l)$ είναι μηδέν. Αυτό είναι επομένως το κατώφλι ταλάντωσης. Η πραγματική έξοδος θα αυξηθεί δραστικά, καθώς το $g_0 l / 2 \rightarrow \pi$ και θα καθοριστεί μόνο λαμβάνοντας υπόψη την απώλεια αντλίας μέσω της μη γραμμικής σύζευξης μεταξύ των κυμάτων.

Πειραματικά, η οπισθοδρομική παραμετρική ταλάντωση δεν έχει ακόμα παρατηρηθεί. Ο λόγος γι' αυτό είναι ότι η συνθήκη προσαρμογής φάσης $\Delta k = 0$ δεν μπορεί να ικανοποιηθεί στις συνηθισμένες περιπτώσεις. Είναι πιθανό να πάρουμε $\Delta k = 0$ με ω_1 (ή ω_2) στη μακρινή περιοχή υπερύθρων,²¹ αλλά τότε ο συντελεστής κέρδους $g_0 l$ είναι πολύ μικρός για να φτάσει το κατώφλι ταλάντωσης.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. W.H. Louisell, *Coupled Mode and Parametric Electronics* (Wiley, N. York, 1960).
2. J.A. Giordmaine & R.C. Miller, *Phys. Rev. Lett.* 14, 973 (1965).
3. R.G. Smith, *J. Appl. Phys.* 41, 4121 (1970).
4. J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, & P.S. Pershan, *Phys. Rev.* 127, 1918 (1962).
5. A.E. Siegman, *Appl. Opt.* 1, 739 (1962).

6. R.G. Smith, J.E. Geusic, H.J. Levinstein, S. Singh & L.G. van Uitert, *J. Appl. Phys.* 39, 4030 (1968).
7. J.A. Giordmaine & R.C. Miller, in P.L. Kelley, B. Lax & P.E. Tannenwald eds., *Physics of Quantum Electronics* (McGraw-hill, New York, 1966); *Appl. Phys. Lett.* 9, 298 (1966).
8. J.E. Bjorkholm, *Appl. Phys. Lett.* 13, 399 (1968).
9. J.E. Bjorkholm, *Appl. Phys. Lett.* 13, 53 (1968).
10. L.B. Kreuzer, *Appl. Phys. Lett.* 15, 263 (1969).
11. J.E. Bjorkholm, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-7, 109 (1971).
12. J. Falk & J.E. Murray, *Appl. Phys. Lett.* 14, 245 (1969).
13. S.J. Brosnan & R.L. Byer, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-15, 415 (1979).
14. R.L. Byer & R.L. Herbst, in Y.R. Shen, ed., *Nonlinear Infrared Generation* (Springer-Verlag, Berlin, 1977), p. 81.
15. W.H. Louisell, A. Yariv & A.E. Siegman, *Phys. Rev.* 124, 1646 (1961); T.G. Giallorenzi & C.L. Tang, *Phys. Rev.* 166, 225 (1968).
16. S.E. Harris, M.K. Oshman & R.L. Byer, *Phys. Rev. Lett.* 18, 732 (1967); R.L. Byer & S.E. Harris, *Phys. Rev.* 168, 1064 (1968).
17. T.A. Rabson, H.J. Ruiz, P.L. Shah & F.K. Tittel, *Appl. Phys. Lett.* 21, 129 (1972); A.H. Kung, *Appl. Phys. Lett.* 25, 653 (1974); A. Scilmeier, K. Spanner, A. Laubereau & W. Kaiser, *Opt. Comm.* 24, 237 (1978).
18. S.A. Akhmanov, A. I. Kovrigin, A.P. Sukhorukov, R.V. Khokhlov & A.S. Chirkin, *JETP Lett.* 7, 182 (1968); S.A. Akhmanov, A.S. Chirkin, K.N. Drabovich, A.I. Kovrigin, R.V. Khokhlov & A.P. Sukhorukov, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-4, 598 (1968); S.A. Akhmanov, A.P. Sukhorukov & A.S. Chirkin, *Sov. Phys.-JETP* 28, 748 (1969).
19. S.E. Harris, *Appl. Phys. Lett.* 9, 114 (1966).
20. J.R. Pierce, *Travelling Wave Tubes* (Van Nostrand, Princeton, NJ, 1950).
21. K.H. Yang, P.L. Richards & Y.R. Shen, *Appl. Phys. Lett.* 19, 320 (1971).

Βιβλιογραφία

- Akhmanov, S.A. & R.V. Khokhlov, *Uspekhi* 9, 210 (1966).
- Brosnan, S.J. & R.L. Byer, *IEEE J. Quan. Electron.* QE-15, 415 (1979); R.A. Baumgartner & R.L. Byer, *J. Quant. Electron.* QE-15, 432 (1979).
- Byer, R.L., in H. Rabin & C.L. Tang, eds., *Treatise in Quantum Electronics*, Vol. I, Part B (Academic Press, New York, 1975), 587.

- Byer, R.L. & R.L. Herbst, in Y.R. Shen, ed., *Nonlinear Infrared Generation* (Springer-Verlag, Berlin, 1977), p. 81
- Giordmaine, J.A., in R.J. Glauber, ed., *Quantum Optics* (Academic Press, New York, 1969), p. 493
- Harris, S.E., *Proc. IEEE* 57, 2096 (1969).
- Smith, R.G. in F.T. Arrechi & E.O. Schulz-Dubois, eds., *Laser Handbook* (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 837.
- Tang, C.L., in H. Rabin & C.L. Tang, eds., *Quantum Electronics*, Vol. I, Part A (Academic Press, New York, 1972), p. 419.
- Yariv, A., *Quantum Electronics* (Wiley, New York, 1975), 2nd ed., Chapter 17.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 10 – Εξαναγκασμένη σκέδαση Raman

Τα προβλήματα σύζευξης κυμάτων που συζητήθηκαν σε προηγούμενα κεφάλαια δεν περιορίζονται, φυσικά, στα ηλεκτρομαγνητικά κύματα. Μπορούν να γενικοποιηθούν για να συμπεριλάβουν και τα ηλεκτρομαγνητικά κύματα και άλλους τύπους κυμάτων, επιτρέποντάς μας να φανταστούμε ένα πεδίο νέων μη γραμμικών οπτικών φαινομένων. Σε αυτό το κεφάλαιο, δείχνουμε ότι η διεγερμένη σκέδαση Raman μπορεί να περιγραφεί κλασσικά, ως μια διαδικασία παραμετρικής γένεσης με ένα από τα ηλεκτρομαγνητικά κύματα να αντικαθίσταται από ένα κύμα που δημιουργεί διέγερση σε ένα υλικό. Πιο σωστά, κάποιος θα μπορούσε φυσικά, να αντιμετωπίσει την κβαντική διέγερση υλικού, μηχανικά. Η διεγερμένη σκέδαση Raman θεωρείται τότε μια διαδικασία διέγερσης δυο φωτονίων που αναπτύσσονται αυθόρμητα μέσα από την εκπομπή Raman.

Η διεγερμένη σκέδαση Raman είναι ένα από τα λίγα μη γραμμικά οπτικά φαινόμενα που ανακαλύφθηκαν στις αρχές της δεκαετίας του 1960. Με την πάροδο των χρόνων, πολλές χρήσιμες εφαρμογές έχουν αναπτυχθεί μέσω αυτής της διαδικασίας. Μερικές από αυτές θα συζητηθούν σε αυτό το κεφάλαιο.

10.1 Ιστορικές παρατηρήσεις

Το 1962 οι Woodbury και Ng,¹ ενώ μελετούσαν την μεταγωγή Q ενός λέιζερ ρουμπινιού με μια κυψέλη νιτροβενζολίου Kerr, ανίχνευσαν ένα υπέρυθρο στοιχείο στην έξοδο του λέιζερ. Η συχνότητά του ήταν 1345cm^{-1} με μετατόπιση προς τα κάτω, ως προς τη συχνότητα του λέιζερ. Αυτή η συχνότητα μετατόπισης εμφάνιζε σύμπτωση με τη συχνότητα ταλάντωσης του πιο δυνατού ρυθμού Raman του νιτροβενζολίου. Αναγνωρίστηκε τότε, από τους Woodbury και Eckhardt² ότι η υπέρυθρη έξοδος πρέπει να πηγάζει από τη διεγερμένη εκπομπή Raman στο νιτροβενζόλιο. Αυτό σύντομα επαληθεύτηκε για ένα μεγάλο αριθμό υγρών, από πολλούς εργαζόμενους σε αυτό το θέμα ερευνητές. Παρόμοια φαινόμενα βρέθηκαν επίσης σε αέρια και στερεά. Ο Πίνακας 10.1 παρουσιάζει μια λίστα από ρυθμούς Raman μερικών υλικών στα οποία παρατηρήθηκε η διεγερμένη σκέδαση Raman.

Μια πρώιμη θεωρητική περιγραφή της διεγερμένης σκέδασης Raman δόθηκε από τον Hellwarth³, ο οποίος το αντιμετώπισε ως μια διαδικασία δυο φωτονίων με έναν πλήρη κβαντικό μηχανικό υπολογισμό.

Ουσία	Μετατόπιση Raman (cm^{-1})	Linewidth 2Γ (cm^{-1})	Διατομή $d\sigma/d\Omega \times 10^8$ ($\text{cm}^{-1} - \text{ster}^{-1}$)	Κέρδος Raman ^a $G_R \times 10^3$ (cm/MW)
Gas H_2^b	4155	0.2		1.5 (300 K, 10 atm)
Liquid O_2	1522	0.177	0.48 ± 0.14	14.5 ± 4
Liquid N_2	2326.5	0.067	0.29 ± 0.09	17 ± 5
Benzene	992	2.15	3.06	2.8
CS_2	655.6	0.50	7.55	24
Nitrobenzene	1345	6.6	6.4	2.1
LiNbO_3	258	7	262	28.7
InSb^c	0 – 300	0.3	10	1.7×10^4

Πίνακας 10.1 Μετατόπιση συχνότητας, Πλάτος γραμμής και σκέδαση διατομής της αυθόρμητης σκέδασης Raman για μερικές ουσίες και το αντίστοιχο εξαναγκασμένο κέρδος Raman ((a) Y.R. Shen, στο M.Cardona, 'Light Scattering in Solids' (Springer-Verlag, Berlin, 1975), σελ. 275, (b) E.E. Hagenlocker, R.W. Minchik, W.G. Rado, Phys. Rev. 154, 226 (1967), (c) Για μια φέρουσα συγκέντρωση $n_e \cong 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

Η απλή θεωρία, όμως, δεν μπορεί να ισχύει για την παρατηρούμενη anti-Stokes ακτινοβολία, η οποία συχνά εμφανίζεται τόσο έντονα, όσο και η ακτινοβολία Stokes. Οι Garmire κ.α.⁴ και Bloembergen και Shen⁵ χρησιμοποίησαν αργότερα την προσέγγιση συζευγμένου κύματος για να περιγράψουν την εξαναγκασμένη διασπορά Raman και μπόρεσαν να εξηγήσουν τη γένεση anti-Stokes, καθώς επίσης και την υψηλότερη τάξης Stokes και anti-Stokes έξοδο.

Παρόλα αυτά, οι θεωρίες δε μπόρεσαν να εξηγήσουν πολλές άλλες παρατηρήσεις. Αυτές συμπεριελάμβαναν ένα παρατηρούμενο εξαναγκασμένο κέρδος Raman, πολύ μεγαλύτερο από την τιμή που προβλέφθηκε στις θεωρίες, υπερβολικά οξύ κατώφλι για εξαναγκασμένη εκπομπή Raman, ασυμμετρία εμπρόσθιας κατεύθυνσης – οπίσθιας έντασης Raman και αξιοσημείωτη φασματική διεύρυνση της ακτινοβολίας Raman. Αργότερα, έγινε αντιληπτό ότι αυτές οι ανωμαλίες προκλήθηκαν στην πραγματικότητα από αυτοεστίαση της δέσμης λέιζερ στο μέσο, κάτι που αναλύεται στο Κεφάλαιο 19. Χωρίς αυτοεστίαση, οι θεωρίες προέβλεψαν πειραματικά αποτελέσματα αρκετά ικανοποιητικά.

Το πρώιμο ενδιαφέρον για την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman προέκυψε, επειδή θα παρείχε έντονη σύμφωνη ακτινοβολία σε νέες συχνότητες και επειδή αποτελούσε έναν πιθανό μηχανισμό απώλειας στη διάδοση λέιζερ ακτινών υψηλής ισχύος στο μέσο, για παράδειγμα, στην ατμόσφαιρα ή σε fusion plasma. Πιο πρόσφατα, η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman χρησιμοποιούνταν για να παραχθεί ρυθμιζόμενη σύμφωνη υπέρυθρη

ακτινοβολία είτε ρυθμίζοντας ανάλογα τη διέγερση του υλικού, όπως στην εξαναγκασμένη σκέδαση πολαριτόνιου⁶ και στην εξαναγκασμένη spin-flip σκέδαση Raman⁷, είτε ρυθμίζοντας τη συχνότητα διέγερσης του λέιζερ με π.χ. λέιζερ χρωστικών ουσιών. Φασματοσκοπικές εφαρμογές της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman έχουν επίσης αναπτυχθεί, με έμφαση στις μελέτες υψηλής ανάλυσης.⁸ Η μεταβατική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman έχει εφαρμοστεί στη μελέτη της χαλάρωσης διεγέρσεων υλικών στην περιοχή των picoseconds με λέιζερ παλμών εγκλειδωσης ρυθμού⁹.

10.2 Κβαντική θεωρία της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman

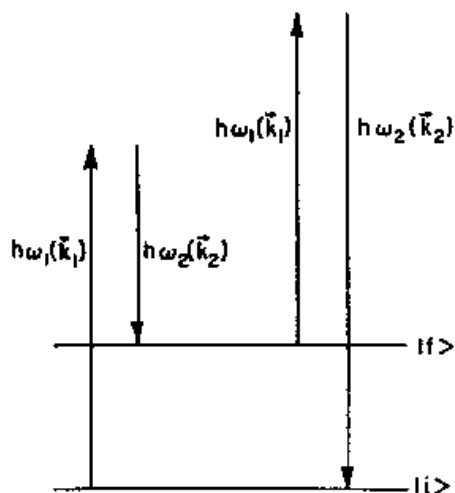
Η σκέδαση Raman είναι μια διαδικασία στην οποία ένα φωτόνιο στην $\omega_1(k_1)$ απορροφάται και ένα φωτόνιο στην $\omega_2(k_2)$ εκπέμπεται, ενώ το υλικό κάνει μια μετάβαση από την αρχική κατάσταση $|i\rangle$ στην τελική κατάσταση $|f\rangle$, όπως φαίνεται στο Σχ. 10.1. Η διατήρηση της ενέργειας απαιτεί $\hbar(\omega_1 - \omega_2) = E_f - E_i \equiv \hbar\omega_{fi}$, το οποίο είναι η διαφορά ενέργειας μεταξύ των τελικών και των αρχικών καταστάσεων. Η σκέδαση Stokes και anti-Stokes αντιστοιχεί στην $\omega_{fi} > 0$ και $\omega_{fi} < 0$, αντίστοιχα.

Για να βρεθεί η πιθανότητα μετάβασης Raman, χρησιμοποιούμε τον στάνταρντ υπολογισμό διαταραχής δευτέρας τάξης.¹⁰ Η Χαμιλιονιανή αλληλεπίδραση στην προσέγγιση ηλεκτρικού δίπολου είναι $\mathcal{H}_{int} = -\mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \mathbf{E} + \text{adjoint}$ (10.1), όπου $\mathbf{E} = \mathcal{E}_1 e^{i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)} + \mathcal{E}_2 e^{i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)}$. Η πιθανότητα μετάβασης Raman ανά μονάδα χρόνου ανά μονάδα όγκου ανά μονάδα διαλείμματος ενέργειας, βρίσκεται ότι είναι

$$\frac{dW_{fi}}{d(\hbar\omega_1)} = \frac{dW_{fi}}{d(\hbar\omega_2)} = \frac{8\pi^3 N \omega_1 \omega_2}{\epsilon_1 \epsilon_2} |\langle f | M | i \rangle|^2 |\langle \alpha_f | a_2^\dagger a_1 | \alpha_i \rangle|^2 g(\hbar\Delta\omega)$$

$$M = \sum_s \left[\frac{\mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 |s\rangle \langle s| \mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_1}{\hbar(\omega_1 - \omega_{si})} - \frac{\mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_1 |s\rangle \langle s| \mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_2}{\hbar(\omega_2 + \omega_{si})} \right] \quad (10.2)$$

Εδώ το N είναι η πυκνότητα των μορίων ή μονάδες κελιών στο μέσο, το ϵ είναι η διηλεκτρική σταθερά, το $\hat{\mathbf{e}}$ δηλώνει την πόλωση πεδίου, $|s\rangle$ είναι η ενδιάμεση κατάσταση του υλικού συστήματος, το $|\alpha\rangle$ δηλώνει την κατάσταση του πεδίου ακτινοβολίας, τα a^\dagger και a είναι η δημιουργία και ο μηδενισμός των τελεστών του πεδίου, και τέλος, το $g(\hbar\Delta\omega)$ που περιγράφει το σχήμα γραμμής, είναι η από κοινού πυκνότητα των καταστάσεων μετάβασης Raman.



Σχ. 10.1 Σχηματική αναπαράσταση που δείχνει τη μετάβαση Stokes ($\omega_2 < \omega_1$) Raman από την αρχική κατάσταση $|i\rangle$ στην τελική κατάσταση $|f\rangle$, και την anti-Stokes ($\omega_2 > \omega_1$) Raman μετάβαση από $|f\rangle$ σε $|i\rangle$.

Για ένα Λορεντζιανό σχήμα γραμμής, έχουμε

$$g(\hbar\Delta\omega) = \frac{\hbar\Gamma/\pi}{\hbar^2(\Delta\omega)^2 + \hbar^2\Gamma^2} \quad (10.3), \text{ όπου } \hbar\Gamma \text{ είναι το μισό πλάτος των μονάδων ενέργειας.}$$

Η πιθανότητα μετάβασης στην (10.2) είναι ανάλογη με την $|\langle a_f | a_f^\dagger a_i | a_i \rangle|^2$. Αν $\langle a_i | = \langle n_1, n_2 |$ και $\langle a_f | = \langle n_1 - 1, n_2 + 1 |$ με n_1 και n_2 να είναι ακέραιοι, τότε $dW_{fi}/d(\hbar\omega_2) \propto n_1(n_2 + 1)$ η αυθόρμητη και εξαναγκασμένη σκέδαση Raman αντιστοιχεί σε $n_2 \approx 0$ και $n_2 \neq 0$, αντίστοιχα. Οι καταστάσεις των πεδίων ακτινοβολίας είναι συχνά σύνθετες, σε γενικές γραμμές. Έπειτα, δεν υπάρχει καμιά απλή έκφραση $\langle a_f | a_f^\dagger a_i | a_i \rangle$. Όμως, αν οι μέσοι αριθμοί των φωτονίων \bar{n}_1 και \bar{n}_2 στις ω_1 και ω_2 είναι πολύ μεγαλύτεροι από τη μονάδα, τότε η προσέγγιση $|\langle a_f | a_f^\dagger a_i | a_i \rangle|^2 \cong \bar{n}_1 \bar{n}_2$ είναι τέλεια.¹¹ Από μια άποψη, αυτό είναι ισοδύναμο με το να ειπωθεί ότι το πεδίο μπορεί να αντιμετωπιστεί ως κλασσικό.

Θεωρείστε τώρα τη διάδοση των ω_1 και ω_2 δεσμών στο μέσο Raman. Η μετάβαση Raman οδηγεί σε απορρόφηση από την ω_1 δέσμη και ενίσχυση από την ω_2 δέσμη. Ένας απλός φυσικός ισχυρισμός είναι ότι η αλλαγή στον μέσο αριθμό των Raman φωτονίων σε έναν ρυθμό στην ω_2 ανά μονάδα μήκους διάδοσης, δίνεται από⁶

$$\begin{aligned} \frac{dn_2}{dz} &= \left(\frac{dW_{fi}}{d\omega_2} \rho_i - \frac{dW_{if}}{d\omega_2} \rho_f \right) \frac{e_2^{1/2}}{c} - \alpha_2 \bar{n}_2 \\ &= (G_R - \alpha_2) \bar{n}_2 \end{aligned} \quad (10.4)$$

όπου ρ_i και ρ_f είναι οι πληθυσμοί στις $|i\rangle$ και $|f\rangle$ και α_2 είναι ο συντελεστής εξασθένισης στην ω_2 . Αφού $W_{fi} = W_{if}$ από την αναλυτική ισορροπία, η ποσότητα G_R παίρνει τη μορφή

$$\begin{aligned} G_R &= \frac{dW_{fi}}{d\omega_2} (\rho_i - \rho_f) \frac{\epsilon_2^{1/2}}{c\bar{n}_2} \\ &\approx \frac{8\pi^3 N \omega_1 \omega_2 \hbar}{\epsilon_1 \epsilon_2^{1/2} c} |M_{fi}|^2 \bar{n}_1 g(\hbar\Delta\omega) (\rho_i - \rho_f), \quad \text{for } \bar{n}_1, \bar{n}_2 \gg 1 \end{aligned} \quad (10.5)$$

το οποίο είναι μια σταθερά αν το \bar{n}_1 μπορεί να αντιμετωπιστεί ως μια σταθερά. Αυτή είναι η περίπτωση όταν η μείωση της ω_1 της δέσμης αντλίας είναι αμελητέα. Η λύση της (10.4) είναι τότε απλώς μια εκθετικά αναπτυσσόμενη συνάρτηση του z :

$$\bar{n}_2(z) = \bar{n}_2(0) e^{(G_R - \alpha)z} \quad (10.6), \quad \text{με το } G_R \text{ να παίζει το ρόλο ενός συντελεστή}$$

εξαναγκασμένου κέρδους, ανάλογο προς την εισερχόμενη ένταση λέιζερ στην ω_1 .

Αφού το κέρδος είναι ανάλογο με την πιθανότητα μετάβασης Raman, θα μπορούσε κάποιος να περιμένει ότι θα πρέπει επίσης να είναι ανάλογο με την αυθόρμητη διατομή Raman. Εξ ορισμού, η διαφορική διατομή Raman $d^2\sigma/d(\hbar\omega_2)d\Omega$ είναι η πιθανότητα σκέδασης ενός εισερχόμενου φωτονίου στην ω_1 ανά μονάδα επιφάνειας σε ένα Raman φωτόνιο μιας συγκεκριμένης πόλωσης στην ω_2 ανά μονάδα στερεάς γωνίας γύρω από το Ω και ανά μονάδα διαλείμματος ενέργειας γύρω από το $\hbar\omega_2$:

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d(\hbar\omega_2) d\Omega} &= g_E \rho_i \frac{dW_{fi}}{d(\hbar\omega_2)} / N |\langle \alpha_f | a_2^+ a_1 | \alpha_i \rangle|^2 c \\ &= \left(\frac{\omega_1 \omega_2^3 \epsilon_2^{1/2}}{c^4 \epsilon_1} \right) |M_{fi}|^2 g(\hbar\Delta\omega) \rho_i \quad g_E = k_2^2 \left(\frac{dk_2}{d\omega_2} \right) / (2\pi)^3 \end{aligned} \quad (10.7), \quad \text{όπου}$$

είναι η πυκνότητα των ρυθμών ακτινοβολίας ανά μονάδα στερεάς γωνίας στην ω_2 . Από την (10.5) και την (10.7), βρίσκουμε αμέσως την σχέση

$$\begin{aligned} G_R &= N \frac{4\pi^2 c^3 \epsilon_1}{\omega_1 \omega_2^2 \epsilon_2 \rho_i} (\rho_i - \rho_f) \left(\frac{d^2\sigma}{d(\hbar\omega_2) d\Omega} \right) |\mathcal{E}_1|^2 \\ &= N \frac{4\pi^2 c^3 \epsilon_1}{\omega_1 \omega_2^2 \epsilon_2 \rho_i} (\rho_i - \rho_f) \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) |\mathcal{E}_1|^2 g(\hbar\Delta\omega). \end{aligned} \quad (10.8).$$

Επομένως, δεδομένης της αυθόρμητης διατομής Raman $d\sigma/d\Omega$ και του μισού

πλάτους Γ , το εξαναγκασμένο κέρδος Raman σε ένα μέσο μπορεί να υπολογιστεί εύκολα. Ο Πίνακας 10.1 δείχνει τις διατομές, τα ήμισυ πλάτη και τα υπολογισμένα κέρδη για τις γραμμές Raman για κάποια υλικά στα οποία η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman έχει παρατηρηθεί.

Ως παράδειγμα, ας μελετήσουμε την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman στο βενζόλιο. Από τον Πίνακα 10.1, βρίσκουμε ότι το κέρδος Raman για τον ρυθμό 992 cm^{-1} του βενζολίου είναι $2,8 \times 10^{-3}\text{ cm/MW}$. Επομένως, για να παραχθούν e^{30} φωτόνια Raman από ένα φωτόνιο θορύβου (που αντιστοιχεί σε μια έξοδο $\sim 100\text{ kW/cm}^2$) σε ένα κελί βενζολίου 10-cm, απαιτείται μια δέσμη λέιζερ 1 GW/cm^2 . Αυτό δείχνει ότι είναι απαραίτητο ένα λέιζερ παλμού μεγάλης ισχύος για τη μελέτη της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman. Στα πραγματικά πειράματα έχει παρατηρηθεί η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman με κέρδος ισχύος $\sim e^{30}$ στο βενζόλιο και σε πολλά άλλα υγρά, με μια δέσμη λέιζερ $\sim 100\text{ MW/cm}^2$ ή λιγότερο. Η διαφορά μεγέθους τάξης μεταξύ θεωρίας και πειράματος είναι το αποτέλεσμα της αυτοεστίασης της δέσμης λέιζερ στο μέσο (δες Ενότητα 17.3).

Παρατηρήστε ότι χρησιμοποιούμε την προσέγγιση $|\langle a_f | a_2^+ a_1 | a_i \rangle|^2 \cong \bar{n}_1 \bar{n}_2$ στην περιγραφή της εξαναγκασμένης ενίσχυση Raman. Αυτή η προσέγγιση δεν είναι φυσικά έγκυρη όταν τα \bar{n}_1 ή \bar{n}_2 είναι μικρά. Επομένως, μιλώντας εντός αυστηρών πλαισίων, αυτή η θεωρία, η οποία ξεκινάει από την αυθόρμητη σκέδαση ή τη σκέδαση θορύβου είναι μάλλον πρόχειρη για την περιγραφή της εξαναγκασμένης ενίσχυσης Raman. Η ολοκληρωμένη κβαντική θεωρία της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman από αυθόρμητη σκέδαση είναι ένα δύσκολο, αλλά προκλητικό πρόβλημα στην κβαντική οπτική και δεν έχει ακόμα πλήρως εξελιχθεί. Από κάποιες απόψεις, είναι ένα ανάλογο διφωτονιακό του προβλήματος του υπερφθορισμού (Κεφάλαιο 21).

10.3 Περιγραφή συζευγμένου κύματος εξαναγκασμένης σκέδασης Raman

Σύζευξης κυμάτων αντλίας και Stokes

Από τη μεριά της αλληλεπίδρασης κύματος, μια διφωτονιακή μετάβαση είναι μια διαδικασία τρίτης τάξης. Μπορεί να το δει κανείς από τη σχέση, όπου ο λόγος μετάβασης δικτύου είναι ίσος με το λόγο γένεσης ή απώλειας των φωτονίων στην ω_1 ή ω_2 :

$$\begin{aligned} \frac{dW_{fi}}{d\omega}(\rho_i - \rho_f) &= 2 \left| \text{Re} \left[\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P}^{(3)*}(\omega_1) \cdot \mathbf{E}_1 \right] \right| / \hbar \omega_1 \\ &= 2 \left| \text{Re} \left[\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P}^{(3)*}(\omega_2) \cdot \mathbf{E}_2 \right] \right| / \hbar \omega_2. \end{aligned} \quad (10.9)$$

Αφού $dW_{fi}/d\omega \propto |E_1|^2 |E_2|^2$, έχουμε $P^{(3)}(\omega_1) \propto |E_2|^2 E_1$ και $P^{(3)}(\omega_2) \propto |E_1|^2 E_2$, όπου και τα δύο είναι επομένως μη γραμμικές πολώσεις τρίτης τάξης.

Η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman μπορεί τότε να περιγραφεί ως διαδικασία κυματικής σύζευξης τρίτης τάξης μεταξύ κυμάτων αντλίας και Stokes. Οι κυματικές

$$\text{εξισώσεις είναι} \quad \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}_1) - \frac{\omega_1^2}{c^2} \epsilon_1 \mathbf{E}_1 = \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \mathbf{P}^{(3)}(\omega_1) \quad \text{και} \quad \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}_2) - \frac{\omega_2^2}{c^2} \epsilon_2 \mathbf{E}_2 = \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \mathbf{P}^{(3)}(\omega_2)$$

(10.10). Για λόγους απλούστευσης, μελετάμε την ειδική περίπτωση ενός ιστροπικού μέσου με E_1 και E_2 πολωμένες στην ίδια κατεύθυνση. Οι μη γραμμικές πολώσεις παίρνουν

$$\text{τη μορφή} \quad \mathbf{P}^{(3)}(\omega_1) = [\chi_1^{(3)} |E_1|^2 + \chi_{R1}^{(3)} |E_2|^2] \mathbf{E}_1 \quad \text{και} \quad \mathbf{P}^{(3)}(\omega_2) = [\chi_{R2}^{(3)} |E_1|^2 + \chi_2^{(3)} |E_2|^2] \mathbf{E}_2.$$

(10.11). Όπως φαίνεται στην (10.11), οι όροι $\chi_1^{(3)}$ και $\chi_2^{(3)}$ στο $P^{(3)}$ δρουν μόνο για να τροποποιήσουν τις διηλεκτρικές σταθερές ϵ_1 και ϵ_2 στην (10.10). Οι όροι αυτοί είναι υπεύθυνοι για τη διπλοθλαστικότητα του πεδίου που προκαλείται, την αυτοεστίαση, κ.λ.π., αλλά δεν έχουν καμιά άμεση επίδραση στην εξαναγκασμένη σκέδαση Raman.

Επομένως, τους αγνοούμε στην παρακάτω συζήτηση. Οι όροι $\chi_R^{(3)}$ στο $P^{(3)}$, από την άλλη μεριά, δημιουργούν ενεργό σύζευξη στα E_1 και E_2 στην (10.10) και προκαλούν μεταφορά ενέργειας ανάμεσα στα δυο πεδία. Τότε, γίνονται υπεύθυνοι για την εξαναγκασμένη διαδικασία Raman και είναι γνωστοί ως *επιδεικτικότητες Raman*.

Οι μικροσκοπικές εκφράσεις για $\chi_R^{(3)}$ μπορούν φυσικά να εξαχθούν από τη συνηθισμένη διαδικασία που περιγράφηκε στο Κεφάλαιο 2. Κάθε $\chi_R^{(3)}$ πρέπει να έχει έναν όρο συντονισμού και έναν όρο μη συντονισμού. Μόνο ο όρος συντονισμού συνδέεται με τη διαδικασία Raman. Στην πραγματικότητα, η μικροσκοπική έκφραση του όρου συντονισμού $[\chi_R^{(3)}]_R$ μπορεί να εξαχθεί άμεσα από τη σχέση στην (10.9)

$$\begin{aligned} \frac{dW_{fi}}{d\omega_2}(\rho_i - \rho_f) &= \frac{2 \text{Im} \chi_{R1}^{(3)} |E_1|^2 |E_2|^2}{\hbar} \\ &= - \frac{2 \text{Im} \chi_{R2}^{(3)} |E_1|^2 |E_2|^2}{\hbar}. \end{aligned} \quad (10.12)$$

Από τις (10.5), (10.8) και τη σχέση $|E|^{2\varepsilon}/2\pi = \hbar\omega \bar{n}$, βρίσκουμε

$$\begin{aligned}
 G_R &= -\frac{4\pi\omega_2^2}{c^2k_2} (\text{Im } \chi_{R2}^{(3)}) |E_1|^2, \\
 \text{Im } \chi_{R2}^{(3)} &= -\text{Im } \chi_{R1}^{(3)} \\
 &= -N \frac{c^4 \varepsilon_1 (\rho_i - \rho_f)}{\omega_1 \omega_2^3 \varepsilon_2^{1/2} \rho_i} \frac{d\sigma}{d\Omega} \pi g(\hbar\Delta\omega) \\
 &= -N |M_{fi}|^2 (\rho_i - \rho_f) \pi g(\hbar\Delta\omega). \quad (10.13)
 \end{aligned}$$

Εάν $g(\hbar\Delta\omega)$ είναι μια Λορεντζιανή, τότε από τη σχέση Kramers-Kronig, το πραγματικό μέρος του $[\chi_R^{(3)}]_R$ μπορεί να εξαχθεί με σαφήνεια. Τότε, παίρνουμε τη μικροσκοπική έκφραση

$$\begin{aligned}
 \chi_{R2}^{(3)} &= [\chi_{R2}^{(3)}]_{NR} + [\chi_{R2}^{(3)}]_R, \\
 [\chi_{R2}^{(3)}]_R &= -\frac{N |M_{fi}|^2 (\rho_i - \rho_f)}{\hbar [(\omega_1 - \omega_2 - \omega_{fi}) - i\Gamma]}, \\
 \chi_{R1}^{(3)} &= \chi_{R2}^{(3)*}. \quad (10.14).
 \end{aligned}$$

Γνωρίζοντας το $\chi_R^{(3)}$ μπορούμε τώρα να λύσουμε τη (10.10) με την (10.11). Για διάδοση επίπεδου κύματος κατά μήκος του \hat{z} και με την προσέγγισης του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, η κυματική εξίσωση γίνεται

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{\alpha_1}{2} \right) \mathcal{E}_1 = i \left(\frac{2\pi\omega_1^2}{c^2k_1} \right) \chi_{R1}^{(3)} |E_2|^2 \mathcal{E}_1 \quad \text{και} \quad \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{\alpha_2}{2} \right) \mathcal{E}_2 = i \left(\frac{2\pi\omega_2^2}{c^2k_2} \right) \chi_{R2}^{(3)} |E_1|^2 \mathcal{E}_2 \quad (10.15).$$

Μπορούν να μετασχηματιστούν σε $\left(\frac{\partial}{\partial z} + \alpha_1 \right) |E_1|^2 = -\frac{4\pi\omega_1^2}{c^2k_1} \text{Im } \chi_{R1}^{(3)} |E_1|^2 |E_2|^2$ και

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \alpha_2 \right) |E_2|^2 = -\frac{4\pi\omega_2^2}{c^2k_2} \text{Im } \chi_{R2}^{(3)} |E_1|^2 |E_2|^2. \quad (10.16).$$

Αυτές οι εξισώσεις μπορούν τώρα να εξισωθούν με την εξίσωση για \bar{n}_2 στην (10.4) και με μια παρόμοια εξίσωση για \bar{n}_1 εάν $|E_1|^2$ και $|E_2|^2$ αντικατασταθούν από τη $2\hbar\omega_1 \bar{n}_1/\varepsilon_1$ και $2\hbar\omega_2 \bar{n}_2/\varepsilon_2$, αντίστοιχα, με το G_R να δίνεται στην (10.13). Επομένως, όταν η μείωση του πεδίου αντλίας $|E_1|^2$ είναι αμελητέα, τη λύση του εκθετικού αναπτύγματος του $|E_2(z)|^2 = |E_2(0)|^2 \exp(G_{RZ} - \alpha z)$.

Εάν οι

σταθερές εξασθένισης a_1 και a_2 είναι εξαιρετικά μικρές, τότε ακόμη και η ακριβής λύση της (10.16) μπορεί να εξαχθεί εύκολα με τη βοήθεια της διατήρησης του συνολικού αριθμού φωτονίων $[\varepsilon_1^{1/2}|\mathcal{E}_1|^2/\omega_1 + \varepsilon_2^{1/2}|\mathcal{E}_2|^2/\omega_2] = K$. Η λύση παίρνει τη μορφή

$$\frac{|\mathcal{E}_1(z)|^2}{|\mathcal{E}_1(z)|^2 - \omega_1 K/\varepsilon_1^{1/2}} = \frac{|\mathcal{E}_2(0)|^2}{|\mathcal{E}_1(0)|^2 - \omega_1 K/\varepsilon_1^{1/2}} \exp\left[\frac{-\omega_1 K G_R z}{|\mathcal{E}_1(0)|^2 \varepsilon_1^{1/2}}\right],$$

$$\frac{|\mathcal{E}_2(z)|^2}{|\mathcal{E}_2(z)|^2 - \omega_2 K/\varepsilon_2^{1/2}} = \frac{|\mathcal{E}_2(0)|^2}{|\mathcal{E}_2(0)|^2 - \omega_2 K/\varepsilon_2^{1/2}} \exp\left[\frac{+\omega_2 K G_R z}{|\mathcal{E}_1(0)|^2 \varepsilon_1^{1/2}}\right]. \quad (10.17)$$

Παραμετρική σύζευξη κυμάτων από οπτική διέγερση και από διέγερση υλικού

Η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman μπορεί επίσης να θεωρηθεί ως μια παραμετρική διαδικασία στην οποία το οπτικό κύμα αντλίας παράγει ένα κύμα Stokes και ένα κύμα διέγερσης υλικού.^{4,5} Αυτό μπορεί να το δει κανείς ως ακολούθως:

Θυμόμαστε ότι οι εκφράσεις για τις μη γραμμικές πολώσεις στην (10.10) μπορούν επίσης να εξαχθούν χρησιμοποιώντας τον τυποποιημένο πίνακα πυκνότητας από το Κεφάλαιο 2. Ας λάβουμε υπόψη μας εδώ, μόνο τον όρο συντονισμού Raman στο $P^{(3)}$. Μπορούμε να γράψουμε με τη σημειογραφία του Σχ. 10.1,

$$P_{\text{res}}^{(3)}(\omega_2) = N \sum_s \left[\langle s | \mathbf{e}_R \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 | i \rangle \rho_{is}^{(3)}(\omega_2) + \langle f | \mathbf{e}_R \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 | s \rangle \rho_{sf}^{(3)}(\omega_2) \right]$$

$$= N \sum_s \left[\frac{\langle f | \mathbf{e}_R \cdot \hat{\mathbf{e}}_1 | s \rangle \langle s | \mathbf{e}_R \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 | i \rangle}{\hbar(\omega_2 + \omega_{si})} E(\omega_1) \rho_{if}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1) \right. \\ \left. - \frac{\langle f | \mathbf{e}_R \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 | s \rangle \langle s | \mathbf{e}_R \cdot \hat{\mathbf{e}}_1 | i \rangle}{\hbar(\omega_2 - \omega_{sf})} E(\omega_1) \rho_{if}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1) \right] \quad (10.18), \text{ το οποίο με}$$

$$\omega_2 - \omega_{sf} = \omega_1 - \omega_{si} \text{ και την (10.2) γίνεται } P_{\text{res}}^{(3)}(\omega_2) = -NM_{fi} E(\omega_1) \rho_{if}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1). \quad (10.19).$$

Το στοιχείο συντονισμού δευτέρας τάξης του πίνακα πυκνότητας $\rho_{if}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1)$, από την άλλη μεριά, μπορεί να εξαχθεί από την εξίσωση

$$\begin{aligned}
\left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{if} + \Gamma_{if}\right)\rho_{if}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1) &= \frac{1}{i\hbar} \left\{ [-e\mathbf{r} \cdot \hat{e}_1 E_1^*, \rho^{(1)}(\omega_2)] \right. \\
&\quad \left. + [-e\mathbf{r} \cdot \hat{e}_2 E_2, \rho^{(1)}(-\omega_1)] \right\}_{if} \\
&= \frac{1}{i\hbar} M_{fi}^* E_1^* E_2 (\rho_i - \rho_f). \tag{10.20}
\end{aligned}$$

Έπειτα, στη σταθερή κατάσταση, έχουμε

$$\begin{aligned}
\rho_{if}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1) &= \frac{M_{fi}^* (\rho_i - \rho_f)}{\hbar(\omega_2 - \omega_1 - \omega_{if} + i\Gamma_{if})} E_1^* E_2, \\
P_{\text{res}}^{(3)}(\omega_2) &= [\chi_{R2}^{(3)}]_{\text{R}} |E_1|^2 E_2 \tag{10.21}, \text{ με το } [\chi_{R2}^{(3)}]_{\text{R}}, \text{ να έχει ακριβώς} \\
&\text{την ίδια έκφραση όπως στην (10.14). Με παρόμοιο τρόπο μπορεί κανείς να βρει το} \\
&P_{\text{res}}^{(3)}(\omega_1).
\end{aligned}$$

Ο φορμαλισμός εδώ, δείχνει ξεκάθαρα το $\rho_{if}^{(2)}(\omega_2 - \omega_1)$ ως υλική διέγερση που οδηγείται με συντονισμό από τη μίξη των $E_1^* E_2$. Η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, μπορεί επομένως, να θεωρηθεί ένα αποτέλεσμα σύζευξης τριών κυμάτων $E_1(\omega_1)$, $E_2(\omega_2)$ και $\rho_{fi}(\omega_1 - \omega_2)$, καθώς διέπεται από τις κυματικές εξισώσεις

$$\begin{aligned}
\left[\nabla \times (\nabla \times) + \frac{\epsilon_1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathbf{E}_1 &= \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \mathbf{P}^{(3)}(\omega_1) \\
&= \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \hat{e}_1 \left\{ \chi_{R1}^{(3)} |E_1|^2 E_1 + [\chi_{R1}^{(3)}]_{\text{NR}} |E_2|^2 E_1 \right. \\
&\quad \left. + N M_{fi}^* E_2(\omega_2) \rho_{fi}(\omega_1 - \omega_2) \right\}, \tag{10.22} \\
\left[\nabla \times (\nabla \times) + \frac{\epsilon_2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathbf{E}_2 &= \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \mathbf{P}^{(3)}(\omega_2) = \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \hat{e}_2 \left\{ [\chi_{R2}^{(3)}]_{\text{NR}} |E_1|^2 E_2 \right. \\
&\quad \left. + \chi_{R2}^{(3)} |E_2|^2 E_2 + N M_{fi} E_1(\omega_1) \rho_{fi}^*(\omega_1 - \omega_2) \right\}, \\
\left(\frac{\partial}{\partial t} - i\omega_{fi} + \Gamma_{fi} \right) \rho_{fi}^*(\omega_1 - \omega_2) &= \frac{i}{\hbar} M_{fi}^* (\rho_i - \rho_f) E_1^* E_2
\end{aligned}$$

, όπου E_1 είναι το κύμα αντλίας και E_2 και ρ_{fi} είναι τα παραγόμενα κύματα. Πέρα από τους $\chi^{(3)}$ όρους, οι οποίοι δεν είναι βασικοί για την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, η (10.22) μοιάζει πάρα πολύ με την (3.4), η οποία χρησιμοποιήθηκε στο Κεφάλαιο 9 για να περιγράψει την διαδικασία παραμετρικής γένεσης, με την εξαίρεση, ότι εδώ, η δυναμική εξίσωση για $\rho_{fi}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2)$ έχει αντικαταστήσει την εξίσωση ανενεργού κύματος.

Υποθέσαμε στην παραπάνω συζήτηση ότι είχαμε μια τοπική διέγερση Raman μεταξύ των δυο ενεργειακών επιπέδων. Αυτή είναι μια καλή προσέγγιση, για τις περισσότερες διεγέρσεις Raman συμπεριλαμβανομένης και της μοριακής δόνησης, του οπτικού φωνονίου, της ηλεκτρονικής διέγερσης, της μετάβασης spin-flip και μαγνονίων και πλασμονίων, ακόμα και αν οι δυναμικές εξισώσεις για διαφορετικές διεγέρσεις είναι γενικά διαφορετικές. Αφού το $\rho_{fi}^{(2)}$ δεν έχει καθόλου διασπορά, η προσαρμογή φάσης για την κυματική σύζευξη ικανοποιείται αυτόματα εδώ. Αυτό κάνει τη λύση να φαίνεται διαφορετική από την οπτική παραμετρική διαδικασία. Ο γενικός φορμαλισμός, όμως, ισχύει για κάθε υλική διέγερση, αν η δυναμική εξίσωση για $\rho_{fi}^{(2)}$ αντικατασταθεί από την κατάλληλη δυναμική εξίσωση για την διέγερση, με ή χωρίς διασπορά.

Σημειώνουμε ότι εφόσον η απόκριση του $\rho_{fi}^{(2)}$ μπορεί να θεωρηθεί σταθερή, όπως δίνεται στην (10.21), η εξάλειψη του $\rho_{fi}^{(2)}$ στην (10.22) με $(\partial^2/\partial t^2) E(\omega) = -\omega^2 E(\omega)$ οδηγεί άμεσα στην (10.10), που χρησιμοποιήθηκε νωρίτερα για να περιγράψει την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman. Όμως, το σετ των εξισώσεων στην (10.22) είναι ξεκάθαρα πιο γενικά, καθώς περιγράφει την περίπτωση μετάβασης, όπου το $\rho_{fi}^{(2)}$ δεν ανταποκρίνεται στιγμιαία στην χρονική διακύμανση της οδηγούσας δύναμης $E_1 E_2^*$. Η διαφορά πληθυσμού $\rho_i - \rho_f$ στην (10.22), μπορεί να προσεγγιστεί από την τιμή της θερμικής του ισορροπίας υπό ασθενή διέγερση, αλλά σε γενικές γραμμές, από φυσικής πλευράς, θα πρέπει να υπακούει την εξίσωση χαλάρωσης

$$\frac{1}{2} \left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_1} \right) [(\rho_i - \rho_f) - (\rho_i^{(0)} - \rho_f^{(0)})] = \frac{dW_{fi}}{Nd\omega_2} (\rho_i - \rho_f) \quad (10.23), \text{ όπου το δεξί μέλος}$$

είναι ο λόγος μετάβασης, που από τις (10.9) και (10.19) βρίσκουμε ότι είναι

$$\frac{dW_{fi}}{Nd\omega_2} (\rho_i - \rho_f) = \frac{i}{\hbar} [M_{fi} E_1 E_2^* \rho_{fi}^* - M_{fi}^* E_1^* E_2 \rho_{fi}]. \quad (10.24).$$

Στη γενική περιγραφή της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman, η (10.23) θα πρέπει να λυθεί μαζί με την (10.22). Δυνατή διέγερση του πληθυσμού οδηγεί σε κορεσμό στο κέρδος Raman. Αυτή η περιγραφή, όμως, ισχύει μόνο στην τοπική διέγερση δυο επιπέδων. Για τη διέγερση τύπου μποζονίου, η (10.23) μπορεί να αντικατασταθεί από την εξίσωση

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_1}\right)(n_B - \bar{n}_B) = \frac{dW_{f_i}}{d\omega_2}(\rho_i - \rho_f) \quad (10.25),$$

όπου n_B και \bar{n}_B είναι οι μέσοι αριθμοί μποζονίων που είναι παρόντα με και χωρίς πεδία-οδηγούς, αντίστοιχα.

Εξαναγκασμένη σκέδαση Raman από μοριακές δονήσεις ή οπτικά φωνόνια

Η πιο κοινή περίπτωση εξαναγκασμένης σκέδασης Raman είναι από μοριακή δόνηση ή οπτικό φωνόνιο, που συχνά περιγράφεται ως ταλάντωση της κανονικής συντεταγμένης Q . Συμφωνώντας με τον συμβατικό ορισμό του Q , μπορούμε να εξισώσουμε το $\rho_{f_i}^{(2)}(\omega)$ στην (10.22) με το $(\hbar/2\omega)^{1/2}Q$ και να αντικαταστήσουμε τη δυναμική του εξίσωση, με την εξίσωση του οδηγούμενου αρμονικού ταλαντωτή για Q

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} + 2\Gamma\frac{\partial}{\partial t} + \omega_{f_i}^2\right)Q(\omega_1 - \omega_2) = \left[\frac{2(\omega_1 - \omega_2)}{\hbar}\right]^{1/2} M_{f_i} E_1 E_2^*(\rho_i - \rho_f), \quad (10.26),$$

με $\omega_1 - \omega_2 \cong \omega_{f_i}$ γίνεται

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{f_i} + \Gamma\right)Q = i[2\hbar(\omega_1 - \omega_2)]^{-1/2} M_{f_i} E_1 E_2^*(\rho_i - \rho_f). \quad (10.26^a).$$

Έπειτα, οι εξισώσεις για E_1 και E_2 στην (10.22) μαζί με την (10.26), περιγράφουν κατάλληλα την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman από φωνόνια. Συγκεκριμένα, στην σταθερή κατάσταση, αποκτάμε ξανά την έκφραση για την επιδεκτικότητα συντονισμού Raman.

10.4 Σύζευξη Stokes – Anti-Stokes

Έχουμε ως τώρα αναλύσει αρκετά μόνο την διεγερμένη εκπομπή Stokes. Πειραματικά, όμως, και τα Stokes και τα anti-Stokes κύματα, παράγονται ταυτόχρονα με συγκρίσιμη ένταση στην εξαναγκασμένη διαδικασία Raman, ακόμα και σε πολύ χαμηλή θερμοκρασία. Αυτό είναι πολύ διαφορετικό από την περίπτωση της αυθόρμητης σκέδασης Raman και δε μπορεί να κατανοηθεί ως μια διεγερμένη διφωτονική διαδικασία, όπως περιγράφηκε στην Ενότητα 10.2, αφού το κύμα anti-Stokes θα απορροφούνταν τότε, αντί να παράγεται. Όμως, μπορεί να εξηγηθεί άμεσα από την περιγραφή συζευγμένου κύματος.^{4, 5} Μια μη γραμμική πόλωση τρίτης τάξης $P^{(3)}(\omega_a)$ στη συχνότητα anti-Stokes $\omega_a = 2\omega_i - \omega_s$ μπορεί να εισαχθεί στο μέσο μέσω ανάμιξης του κύματος αντλίας στην ω_i και του κύματος Stokes στην ω_s μέσω του συντονισμού Raman στην $\omega_i - \omega_s = \omega_a - \omega_i$, όπως φαίνεται παρακάτω.

Με την ταυτόχρονη παρουσία των $\mathbf{E}_l(\omega_l)$, $\mathbf{E}_s(\omega_s)$ και $\mathbf{E}_a(\omega_a)$, η υλική διέγερση ρ_{fi} , που οδηγείται τώρα και από τα $\mathbf{E}_l\mathbf{E}_s^*$ και από τα $\mathbf{E}_a\mathbf{E}_l^*$, υπακούει στην εξίσωση

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - i\omega_{fi} + \Gamma_{fi}\right)\rho_{fi}^* = \frac{i}{\hbar} \left[M_{fi,s}^* E_s^* E_s + M_{fi,a}^* E_a^* E_l \right] (\rho_i - \rho_f) \quad (10.27)$$

όπου $M_{fi,s}$ και $M_{fi,a}$ είναι τα στοιχεία πίνακα Raman για τις μεταβάσεις που έγιναν από τα \mathbf{E}_l , \mathbf{E}_s και \mathbf{E}_a , \mathbf{E}_l αντίστοιχα. Ανάμιξη της υλικής διέγερσης με ηλεκτρομαγνητικά κύματα προκαλεί τότε μέρος συντονισμού των μη γραμμικών πολώσεων

$$\begin{aligned} P_{\text{res}}^{(3)}(\omega_l) &= N(M_{fi,s}^* E_s \rho_{fi} + M_{fi,a} E_a \rho_{fi}^*), \\ P_{\text{res}}^{(3)}(\omega_s) &= N M_{fi,s} E_l \rho_{fi}^*, \\ P_{\text{res}}^{(3)}(\omega_a) &= N M_{fi,a}^* E_l \rho_{fi}. \end{aligned} \quad (10.28).$$

Αν η απόκριση του ρ_{fi} στα πεδία είναι σταθερή, τότε το ρ_{fi} μπορεί να λυθεί από την (10.27) και να υποκατασταθεί στην (10.28). Η συνισταμένη $\mathbf{P}_{\text{res}}^{(3)}$ συνδυασμένη με το μη συντονισμένο μέρος του $P^{(3)}$ μπορεί να εισαχθεί στον τύπο $P^{(3)}(\omega = \omega_a + \omega_\beta + \omega_\gamma) = \chi^{(3)} E_a(\omega_a) E_\beta(\omega_\beta) E_\gamma(\omega_\gamma)$ με το $\chi^{(3)}$ να περιέχει και τον όρο συντονισμού και τον όρο μη συντονισμού. Το σετ των κυματικών εξισώσεων που περιγράφει την σταθερή κατάσταση γένεσης anti-Stokes, δίνεται τότε από τη σχέση

$$\begin{aligned} \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_l^2}{c^2} \epsilon_l \right] \mathbf{E}_l &= \frac{4\pi\omega_l^2}{c^2} \hat{e}_l \left[\chi_{ss}^{(3)*} |E_s|^2 \mathbf{E}_l \right. \\ &\quad \left. + (\chi_{sa}^{(3)} + \chi_{sa}^{(3)*}) E_s E_a \mathbf{E}_l^* + \chi_{aa}^{(3)} |E_a|^2 \mathbf{E}_l \right], \\ \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_s^2}{c^2} \epsilon_s \right] \mathbf{E}_s &= \frac{4\pi\omega_s^2}{c^2} \hat{e}_s \left[\chi_{ss}^{(3)} |E_l|^2 \mathbf{E}_s + \chi_{sa}^{(3)} E_l^2 \mathbf{E}_a^* \right], \\ \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_a^2}{c^2} \epsilon_a \right] \mathbf{E}_a^* &= \frac{4\pi\omega_a^2}{c^2} \hat{e}_a \left[\chi_{sa}^{(3)} E_l^2 \mathbf{E}_s^* + \chi_{aa}^{(3)} |E_l|^2 \mathbf{E}_a^* \right] \end{aligned} \quad (10.29)$$

$$\begin{aligned}
\chi_{ss}^{(3)} &= (\chi_{ss}^{(3)})_{\text{NR}} - \frac{N|M_{fi,s}|^2(\rho_i - \rho_f)}{\hbar(\omega_l - \omega_s - \omega_{fi} - i\Gamma_{fi})}, \\
\chi_{sa}^{(3)} &= (\chi_{sa}^{(3)})_{\text{NR}} - \frac{NM_{fi,s}M_{fi,a}^*(\rho_i - \rho_f)}{\hbar(\omega_l - \omega_s - \omega_{fi} - i\Gamma_{fi})}, \\
\chi_{aa}^{(3)} &= (\chi_{aa}^{(3)})_{\text{NR}} - \frac{N|M_{fi,a}|^2(\rho_i - \rho_f)}{\hbar(\omega_l - \omega_s - \omega_{fi} - i\Gamma_{fi})}
\end{aligned}
\tag{10.30}$$

όπου και έχουμε αγνοήσει όρους του $\chi^{(3)}|E_i|^2 E_i$ στην (10.29).

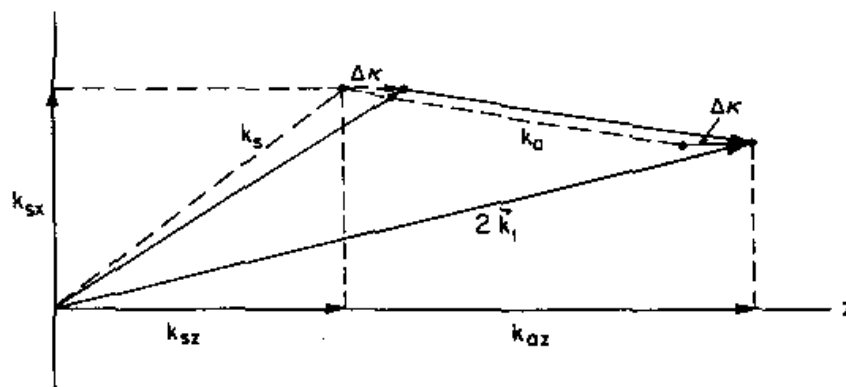
Το σετ των εξισώσεων στην (10.29) περιγράφει στην πραγματικότητα μια τετρακυματική παραμετρική διαδικασία γένεσης με το E_i να είναι το κύμα αντλίας, E_s και E_a να είναι τα κύματα σήματος και τα ανενεργά κύματα και το χ_{sa} να λειτουργεί ως σταθερά σύζευξης μεταξύ των κυμάτων σημάτων και των ανενεργών κυμάτων. Η λύση της (10.29) στο όριο της μη απώλειας αντλίας, ακολουθεί επομένως, στενά, την παραμετρική γένεση που περιγράφηκε στο Κεφάλαιο 9. Παραβλέπουμε τον τρόπο παραγωγής και παρουσιάζουμε εδώ μόνο το αποτέλεσμα. Υποθέτοντας ότι έχουμε ένα ισοτροπικό μέσο με συνοριακή επιφάνεια στο $z=0$ και βραδέως μεταβαλλόμενα πλάτη για E_s και E_a , βρίσκουμε⁵

$$E_s = [\mathcal{E}_{s+} \exp(i\Delta K_+ z) + \mathcal{E}_{s-} \exp(i\Delta K_- z)] \exp(i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r} - \alpha_z z) \text{ και}$$

$$E_a^* = [\mathcal{E}_{a+}^* \exp(i\Delta K_+ z) + \mathcal{E}_{a-}^* \exp(i\Delta K_- z)] \exp[-i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r} - (i\Delta k + \alpha_z)z] \tag{10.31}, \text{ όπου}$$

$$\begin{aligned}
k^2 &= \frac{\omega^2 \epsilon'}{c^2}, & \Lambda &= \left(\frac{2\pi\omega_s^2}{c^2 k_{zz}} \right) \chi_{ss}^{(3)} |E_i|^2, \\
0 &= 2k_{1x,y} - k_{sx,y} - k_{ax,y}, & \alpha_z &= \frac{\omega^2 \epsilon''}{c^2 k_z} = \alpha \left(\frac{k}{k_z} \right) \\
\Delta k &= 2k_{1z} - k_{sz} - k_{az}, & k_z &\equiv \mathbf{k} \cdot \hat{z}, & G_R &= -2 \text{Im}(\Lambda). \\
\Delta K_{\pm} &= \frac{\Delta k}{2} \pm \left[\left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 - (\Delta k) \Lambda \right]^{1/2},
\end{aligned}$$

Για λόγους απλοποίησης, αγνοούμε τις διασπορές των συντελεστών απορρόφησης α_z και των συντελεστών σύζευξης $2\pi\omega^2/c^2 k_z \chi^{(3)}$.



Σχ. 10.2 Γενική σχέση μεταξύ κυματοδιανυσμάτων των Stokes, anti-Stokes και κυμάτων λέιζερ.

Η σχέση μεταξύ των διαφόρων κυματοδιανυσμάτων φαίνεται στο Σχ. 10.2. Με $\mathcal{E}_s = \mathcal{E}_{s0}$ και $\mathcal{E}_a = \mathcal{E}_{a0}$ στο $z = 0$, έχουμε

$$\frac{\mathcal{E}_{a\pm}}{\mathcal{E}_{s\pm}} = \frac{\Delta K_{\pm} - \Lambda}{\Lambda},$$

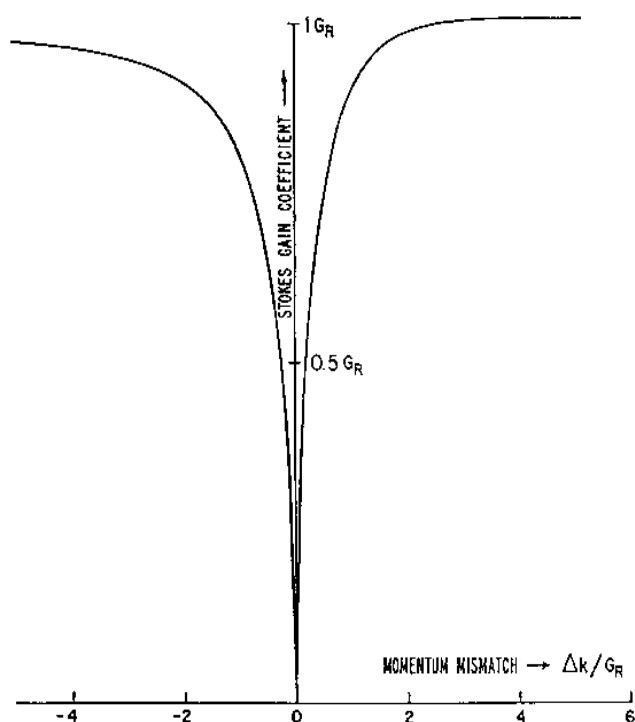
$$\mathcal{E}_{s\pm} = \frac{(-\Delta K_{\mp} + \Lambda)\mathcal{E}_{s0} + \Lambda\mathcal{E}_{a0}^*}{\Delta K_{\pm} - \Delta K_{\mp}}. \quad (10.32).$$

Αρκετά από τα σημαντικά αποτελέσματα στη φυσική προέρχονται από την παραπάνω λύση. Πρώτα, μέσω της σύζευξης Stokes – anti-Stokes, δυο σύνθετα κύματα $(\mathcal{E}_{s+}, \mathcal{E}_{a+})$ και $(\mathcal{E}_{s-}, \mathcal{E}_{a-})$ σχηματίζονται με τα ιδιοδυνανύσματα ΔK_{\pm} και το λόγο πλάτους Stokes – anti-Stokes $(\mathcal{E}_s/\mathcal{E}_a)_{\pm}$. Ένα από αυτά, ίσως έχει εκθετικό κέρδος και το άλλο μια απώλεια, αν $\text{Im}(\Delta K.) < 0$. Η σύζευξη εξαρτάται ξεκάθαρα από την προσαρμογή φάσης. Εάν η ασυνέχεια φάσης είναι αρκετά μεγάλη, ώστε $|\Delta k| \gg |\Lambda|$, τότε τα κύματα Stokes και anti-Stokes υφίστανται ενεργή αποσύζευξη. Αυτό φαίνεται ξεκάθαρα από το γεγονός ότι ΔK_{\pm} και $\mathcal{E}_{a\pm}/\mathcal{E}_{s\pm}$ καταλήγουν σε $\Delta K. = \Lambda$, $\Delta K_+ = \Delta K - \Lambda$ και

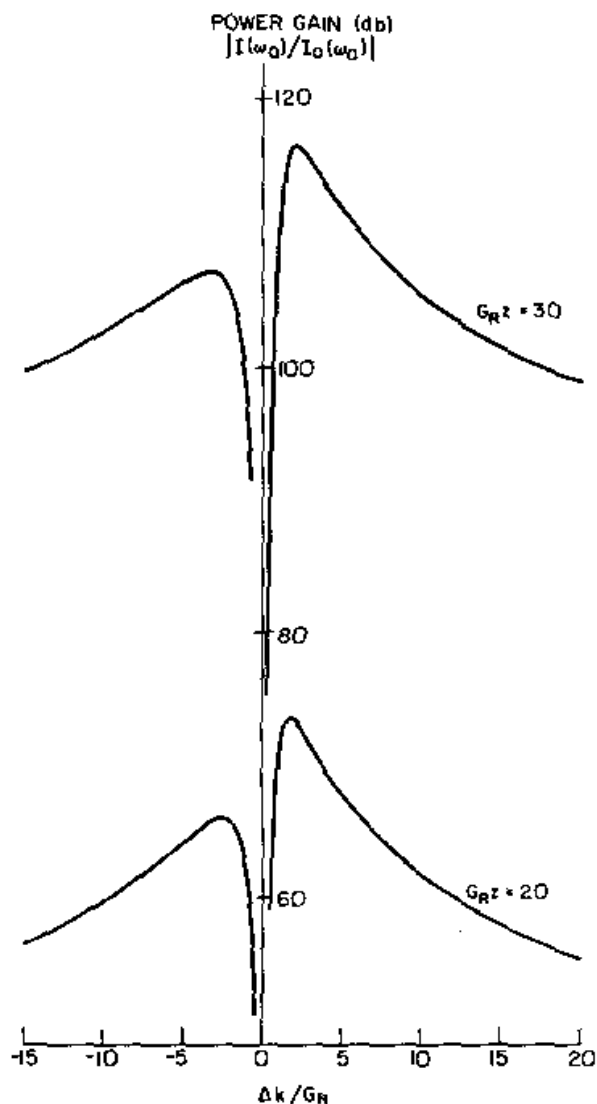
$$\left| \frac{\mathcal{E}_{a-}^*}{\mathcal{E}_{s-}} \right| = \left| \frac{\Lambda}{\Delta k} \right| \ll 1, \quad \left| \frac{\mathcal{E}_{a+}^*}{\mathcal{E}_{s+}} \right| = \left| \frac{\Delta k}{\Lambda} \right| \gg 1.$$

Η πρώτη, δηλώνει ένα σχεδόν καθαρό κύμα Stokes με ένα εκθετικό κέρδος ισχύος $2 \text{Im}(\Delta K.) = G_R$, ενώ η δεύτερη δηλώνει ένα σχεδόν anti-Stokes κύμα, με μια εξασθένιση - G_R . Αυτά είναι τα αποτελέσματα που αναμένονται όταν τα κύματα Stokes και anti-Stokes είναι αποσυζευγμένα το ένα από το άλλο. Η σύζευξη Stokes – anti-Stokes είναι μέγιστη όταν $\Delta k = 0$. Η λύση αποφέρει $\Delta K_{\pm} = 0$ και $|\mathcal{E}_{a\pm}^*/\mathcal{E}_{s\pm}| = 1$. Τότε, ούτε τα Stokes, ούτε τα anti-Stokes κύματα μπορούν να έχουν

εκθετική αύξηση. Αυτό συμβαίνει επειδή μέσω της σύζευξης, το κέρδος Stokes ακυρώνεται εντελώς από την εξασθένιση anti-Stokes, ένα αποτέλεσμα που είναι πολύ γνωστό στη θεωρία παραμετρικού ενισχυτή, στην δεν αναμένεται καθόλου κέρδος στην $\omega_s = \omega_l - \omega_i$, αν η άλλη πλευρική ζώνη στην $\omega_s = \omega_l + \omega_i$ δεν περιορίζεται. Καθώς το $|\Delta k|$ σταδιακά τείνει προς το μηδέν, το κέρδος $|2 \operatorname{Im}(\Delta K.)|$ αυξάνει γρήγορα από το μηδέν προς το G_R , όπως φαίνεται στο Σχ.10.3, ενώ ο λόγος Stokes – anti-Stokes $|\mathcal{E}_a^*/\mathcal{E}_s|$ μειώνεται από τη μονάδα στο μηδέν. Αναμένεται επομένως, σημαντική γένεση anti-Stokes στην περιοχή $|\Delta k| \sim |\Lambda|$, όπου και το $|\operatorname{Im}(\Delta K.)|$ και το $|\mathcal{E}_a^*/\mathcal{E}_s|$ είναι επαρκώς πεπερασμένα. Η ακτινοβολία anti-Stokes θα εμφανιστεί με τη μορφή ενός διπλού κώνου γύρω από την κατεύθυνση προσαρμογής φάσης, όπως φαίνεται στο Σχ. 10.4. Θα πρέπει όμως, να θυμόμαστε, ότι τα άπειρα επίπεδα κύματα είναι υποθετικά σε αυτήν τη θεωρία. Στην πραγματικότητα, μια δέσμη αντλίας πεπερασμένης διατομής, έχει μια εξάπλωση κυματοδιανυσμάτων. Συνεπώς, η μεγάλη πτώση της καμπύλης κέρδους στο Σχ.10.3 ίσως εξομαλυνθεί και αντί ενός διπλού κώνου στο Σχ.10.4, να παρατηρήσουμε μόνο έναν μονό κώνο ακτινοβολίας anti-Stokes.¹²



Σχ. 10.3 Το κέρδος ισχύος Stokes ως συνάρτηση της κανονικοποιημένης γραμμικής ασυνέχειας ορμής $\Delta k/G_R$ στην κατεύθυνση z . Η ασυμμετρία οφείλεται στο μη συντονισμένο μέρος $\chi_{NR}^{(3)} = 0.1 |\operatorname{Im} \chi_R^{(3)}|_{\max}$. (Βιβλ. Αναφ.5).



Σχ. 10.4 Ένταση anti-Stokes ως προς την γραμμική ασυνέχεια φάσης Δk (κανονικοποιημένη από το Stokes κέρδος ισχύος G_R). Η ασυμμετρία οφείλεται στο $\chi_{NR} = 0.1 |I_{01} \chi_R^{(3)}|_{\max}$ (Bιβλ. Αναφ.

10.5 Φαινόμενα Raman υψηλότερων τάξεων

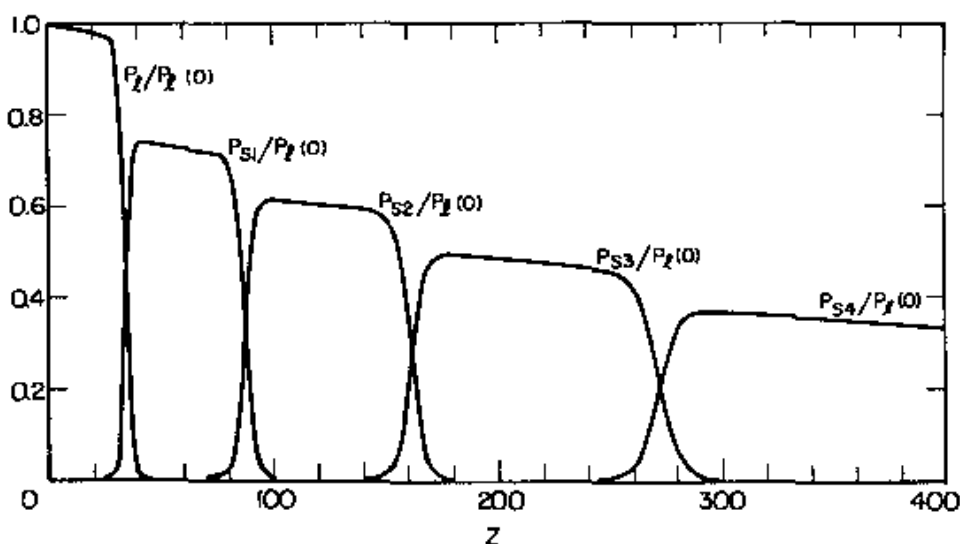
Η έντονη ακτινοβολία υψηλής τάξης Stokes και anti-Stokes είναι συχνά φανερή σε πειράματα που σχετίζονται με τη γένεση Stokes και anti-Stokes πρώτης τάξης.¹² Σε αντίθεση με τους υπέρτονους στην αυθόρμητη σκέδαση, η ακτινοβολία αυτή υψηλής τάξης εμφανίζεται με συχνότητες στην $\omega \pm n\omega_{fi}$, όπου n είναι ένας ακέραιος. Αυτό το χαρακτηριστικό υπονοεί ότι παράγονται λίγο έως πολύ, διαδοχικά. Για παράδειγμα, όταν το πρώτο Stokes γίνει αρκετά έντονο, ίσως και να δράσει ως κύμα αντλίας για να παράγει το δεύτερο Stokes E_{s2} ($\omega_{s2} = \omega_s - \omega_{fi}$). Σε γενικές γραμμές, όμως, πρέπει να βρούμε την απάντηση από την προσέγγιση συζευγμένου κύματος, επειδή ένα κύμα Stokes ή anti-Stokes $n^{\text{ης}}$ τάξης, ίσως συζευχθεί με αρκετά Stokes και anti-Stokes κύματα από διάφορες τάξεις, μέσω μη γραμμικών πολώσεων τρίτης τάξης. Και πάλι, η σύζευξη ενός συγκεκριμένου σετ κυμάτων είναι η πλέον δυνατή, εάν ικανοποιείται το κριτήριο της

προσαρμογής φάσης. Δυστυχώς, όταν υπάρχουν πολλά σύνθετα κύματα μη γραμμικά συζευγμένα μαζί, το πρόβλημα γίνεται εξαιρετικά πολύπλοκο.

Μελετάμε εδώ, ως παράδειγμα, μια ειδική περίπτωση, όπου χρειάζεται να ληφθεί υπόψη μόνο η γένεση Stokes στην κατεύθυνση $+z$.⁵ Αυτό μπορεί να επιτευχθεί σε μια πραγματική κατάσταση με διέγερση λέιζερ βραχύ παλμού τέτοια, που η οπισθοδρομική γένεση Stokes να περιορίζεται (δες Ενότητα 10.9), ενώ η anti-Stokes γένεση να μπορεί να αγνοηθεί. Το σετ των συζευγμένων κυματικών εξισώσεων γίνεται τότε

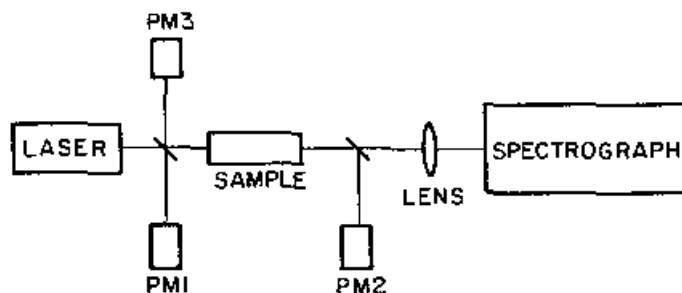
$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega_l^2 \epsilon_l}{c^2} \right) E_l &= - \left(\frac{4\pi\omega_l^2}{c^2} \right) \chi_{sl}^{(3)*} |E_s|^2 E_l, \\ \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega_s^2 \epsilon_s}{c^2} \right) E_s &= - \left(\frac{4\pi\omega_s^2}{c^2} \right) [\chi_{sl}^{(3)} |E_l|^2 E_s + \chi_{s2}^{(3)*} |E_{s2}|^2 E_s], \\ \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{\omega_{s2}^2 \epsilon_{s2}}{c^2} \right) E_{s2} &= - \left(\frac{4\pi\omega_{s2}^2}{c^2} \right) [\chi_{s2}^{(3)} |E_{s2}|^2 E_{s2} + \chi_{s3}^{(3)*} |E_{s3}|^2 E_{s2}] \quad \text{κ.λ.π. (10.33)}. \end{aligned}$$

Η λύση της (10.33) μπορεί να εξαχθεί μέσω αριθμητικού υπολογισμού, όπως φαίνεται στο Σχ. 10.5. Καθώς το μήκος του μέσου ή της αντλίας ισχύος αυξάνεται, η πρώτη ισχύς Stokes αυξάνεται σταδιακά στην αρχή και μετά ξαφνικά ανεβαίνει στο μέγιστο, ενώ η ισχύς της αντλίας βυθίζεται σχεδόν στο μηδέν από την αραίωση. Τότε, η πρώτη ισχύς Stokes παραμένει σχετικά σταθερή για λίγο και μειώνεται ως τη δεύτερη Stokes, κ.ο.κ.

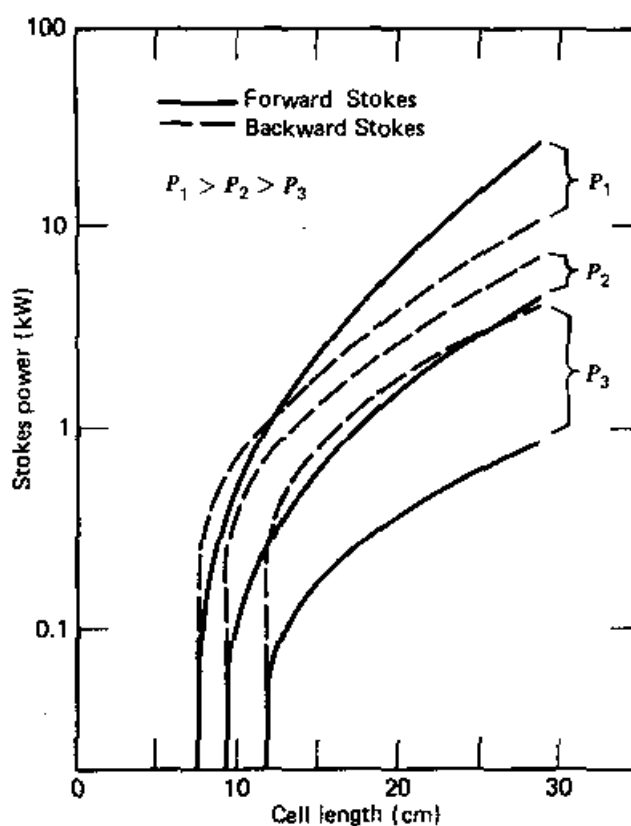


Σχ. 10.5 Γένεση κυμάτων Stokes υψηλότερης τάξης ως συνάρτηση του κανονικοποιημένου μήκους κελιού

$$z = (16\pi^3\omega_l^2 \text{Im} \chi_{sl}^{(3)} / k_l c^3) P_l(0) z. \quad (\text{Βιβλ. Αναφ. 5})$$



Σχ. 10.6 Σχηματική αναπαράσταση της διάταξης για τη διερεύνηση της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman. $PM1$, $PM2$ και $PM3$ είναι οι φωτοανιχνευτές που μετρούν το λέιζερ, την εμπρόσθιας κατεύθυνσης και την οπίσθια Raman ακτινοβολία, αντίστοιχα.



Σχ. 10.7 Πρώτης τάξης εμπρόσθιας κατεύθυνσης και οπίσθιας ισχύς Stokes ως προς το μήκος κελιού τολουονίου σε τρία λέιζερ ισχύος $P_1 = 80$, $P_2 = 67$ και $P_3 = 53 \text{ MW/cm}^2$. (Y.R. Shen & Y.J. Shaham, 'Phys. Rev. 163, 224 (1967)).

Ουσιαστικά, αυτό είναι που κάποιος θα εξαιρούσε από την απλή, φυσική εικόνα. Ο υπολογισμός εδώ, όμως, υποθέτει την ύπαρξη άπειρων επίπεδων κυμάτων. Με μια δέσμη αντλίας πεπερασμένης διατομής, η άνοδος και πτώση του κύματος Stokes $n^{\text{ης}}$ τάξης θα πρέπει να είναι πιο σταδιακή, όπως επιδείχθηκε και θεωρητικά και πειραματικά από τους von der Linde κ.α.

10.6 Πειραματικές παρατηρήσεις και εφαρμογές

Εξαναγκασμένη σκέδαση Raman σε αυτοεστιαζόμενα μέσα

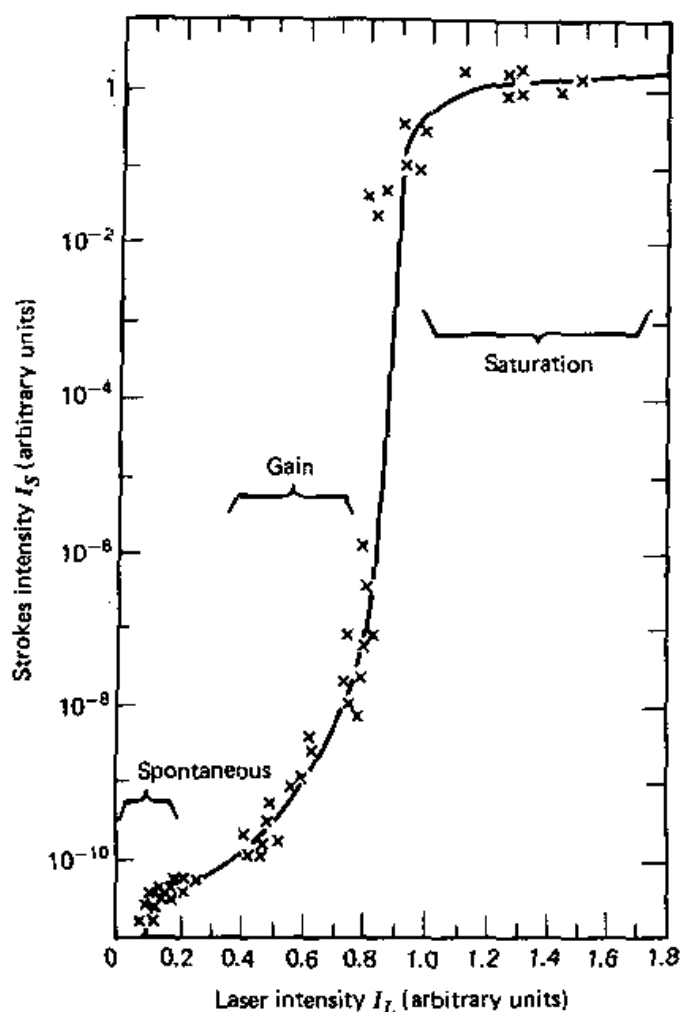
Μια συνηθισμένη διάταξη για τη μελέτη της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman φαίνεται στο Σχ. 10.6. Όπως αναφέρθηκε στην Ενότητα 10.1, τα πρώτα αποτελέσματα από τις μετρήσεις έντασης διαφωνούν έντονα με τη θεωρία. Τα περισσότερα από αυτά τα πειράματα έγιναν σε υγρά με μεγάλες σταθερές Kerr και τα αποτελέσματα έδειξαν ένα οξύ κατώφλι για την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman και ένα ενεργό κέρδος Raman, σε τάξη μεγέθους μεγαλύτερη από το προβλεπόμενο κέρδος. Ένα παράδειγμα δίνεται στο Σχ. 10.7, το οποίο δείχνει επίσης μια εμπρόσθια κατεύθυνσης – οπίσθια ασυμμετρία στην έξοδο Stokes, που δεν προβλέφθηκε από την θεωρία. Άλλες ανωμαλίες, όπως η φασματική διεύρυνση Raman και το ανώμαλο δακτυλιοειδές σχήμα anti-Stokes, παρατηρήθηκαν επίσης. Αργότερα έγινε αντιληπτό, ότι αυτές ανωμαλίες προκλήθηκαν από την αυτοεστίαση, η οποία συνέβη πολύ εύκολα στα μέσα Kerr (δες Κεφάλαιο 17). Η αυτοεστίαση έχει ένα κατώφλι· αυτό, αυξάνει δραματικά την ένταση του λέιζερ στην εστιακή περιοχή, και διαταράσσει την εμπρόσθια–οπίσθια συμμετρία της ενίσχυσης Raman. Αυτό, έπειτα, εξηγεί ποιοτικά τα αποτελέσματα του Σχ. 10.7. Οι ανωμαλίες Raman αποτέλεσαν αντικείμενο μεγάλης σύγχυσης στο παρελθόν. Δε προχωράμε σε περαιτέρω λεπτομερή ανάλυση για αυτό το θέμα εδώ. Οι αναγνώστες που ενδιαφέρονται για αυτό, θα πρέπει να συμβουλευτούν την Ενότητα 17.3 και τη σχετική βιβλιογραφία (δες Βιβλιογραφία).

Εξαναγκασμένη σκέδαση Raman σε μη αυτοεστιαζόμενα μέσα

Ακόμα και χωρίς αυτοεστίαση, η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman συχνά παρουσιάζει μια συγκεκριμένη ανωμαλία στο κέρδος. Ένα παράδειγμα φαίνεται στο Σχ. 10.8, όπου η έξοδος Stokes είναι σχεδιασμένη απέναντι από την είσοδο του λέιζερ στο υγρό άζωτο. Αυτοεστίαση, δεν παρατηρήθηκε σε αυτήν την περίπτωση. Καθώς η ισχύς λέιζερ αυξάνεται, η έξοδος Stokes αυξάνει πρώτα γραμμικά, επειδή παράγεται από αυθόρμητη σκέδαση και έπειτα αυξάνει σχεδόν εκθετικά, όταν η εξαναγκασμένη σκέδαση εδραιώνεται. Για μια συγκεκριμένη ισχύ εισόδου, η έξοδος αυξάνεται ξαφνικά με ένα ενεργό κέρδος πολύ μεγαλύτερο από τη θεωρητική πρόβλεψη. Τελικά, εξισορροπείται, ως αποτέλεσμα της μείωσης ισχύος του λέιζερ.

Η απότομη αύξηση της εξόδου Stokes οφείλεται προφανώς στην ανάδραση στην ενίσχυση Stokes από σκέδαση Rayleigh ή διάχυτη ανάκλαση από τοιχώματα και παράθυρα κελιών. Πειράματα τύπου όπως του Σχ. 10.8 περιγράφουν στην

πραγματικότητα το 'χτίσιμο' της ταλάντωσης Raman, δηλαδή, ενίσχυση από θόρυβο. Όπως είναι γνωστό, η έξοδος ενός ταλαντωτή χωρίς κορεσμό εξαρτάται σημαντικά από τη μικρή διαταραχή ή ανάδραση. Αυτό, κάνει την ποσοτική μετάφραση της εξόδου του ταλαντωτή εξαιρετικά δύσκολη, ειδικά αν η διαταραχή ή ανάδραση, δε μπορούν να χαρακτηριστούν με σαφήνεια. Με προσεκτική εξάλειψη της ανάδρασης, οι Haidacher & Maier έδειξαν ότι η απότομη αύξηση της εξόδου Stokes μπορεί να περιοριστεί σε μεγάλο βαθμό.¹⁴

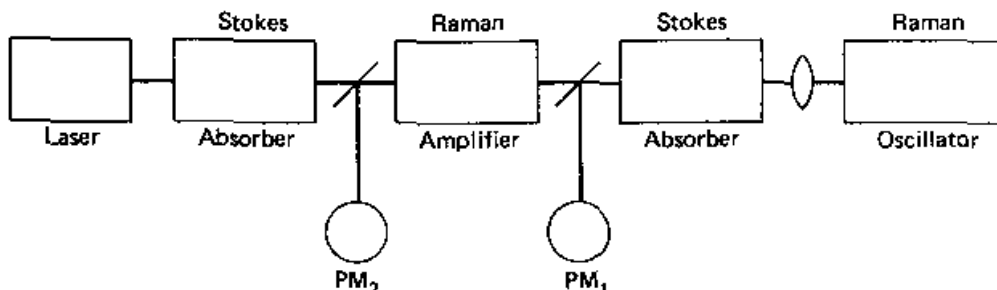


Σχ. 10.8 Πειραματικό αποτέλεσμα της εξόδου Stokes πρώτης τάξης ως συνάρτησης της έντασης λέιζερ σε υγρό N_2 . (J.B. Grun, A.K. McGuillan & B.P. Stoicheff, 'Phys. Rev.', 180, 61 (1969)).

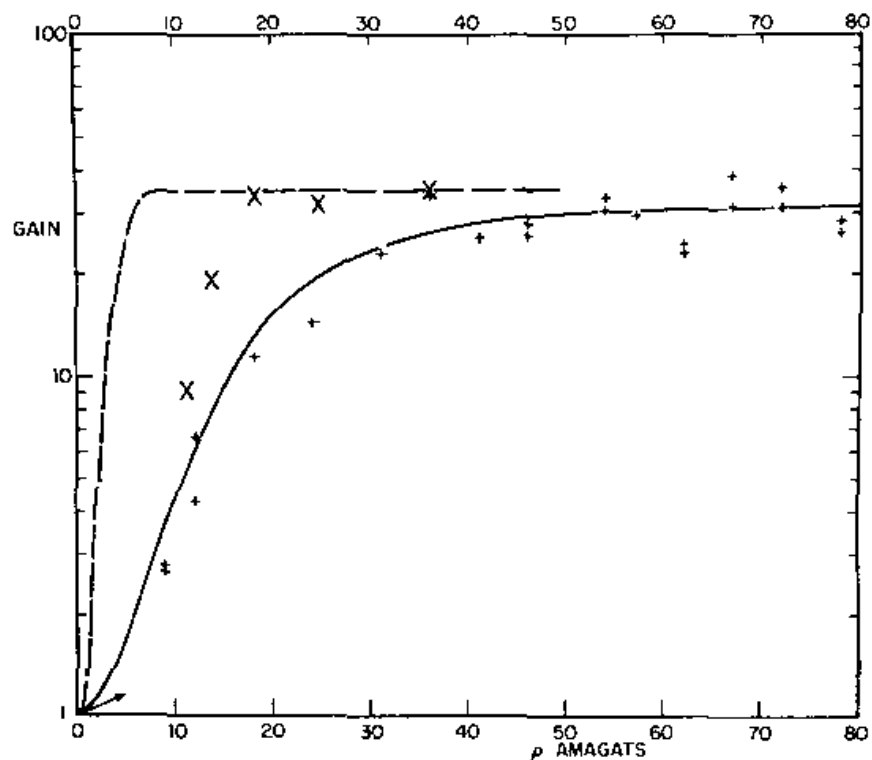
Μετρήσεις κέρδους Raman

Η θεωρία που αναπτύχθηκε νωρίτερα είναι ξεκάθαρα μια θεωρία ενίσχυσης Raman, παρά μια ταλάντωση. Για να ελέγξει κανείς αυτή τη θεωρία, θα πρέπει να διεξάγει πειράματα σε ενισχυτές Raman.¹⁵ Αυτό μπορεί να γίνει με διάταξη ταλαντωτή – ενισχυτή

στο Σχ. 10.9. Η οπισθοδρομική εκπομπή Stokes από τον ταλαντωτή παρέχει μια είσοδο Stokes στον ενισχυτή και μετράται το κέρδος ενίσχυσης της οπίσθιας σκέδασης Raman στον ενισχυτή.



Σχ. 10.9 Πειραματική διάταξη για τη μέτρηση οπισθοδρομικού κέρδους Stokes. (Βιβλ. Αναφ. 15)



Σχ. 10.10 Κέρδος Stokes Raman στο αέριο H_2 ως συνάρτηση της πίεσης. Τα σημεία X για το πρόσθιο κέρδος θα πρέπει να συγκριθούν με τη θεωρητική διακεκομμένη καμπύλη (μήκος κελιού: 80 cm, ένταση κορυφής εισόδου: 20 MW/cm²). Τα σημεία + για οπίσθιο κέρδος θα πρέπει να συγκριθούν με την έντονη θεωρητική καμπύλη (μήκος κελιού: 30cm, ένταση κορυφής εισόδου: 60 MW/cm² στα 0,6943 μm.) (Βιβλ. Αναφ. 15).

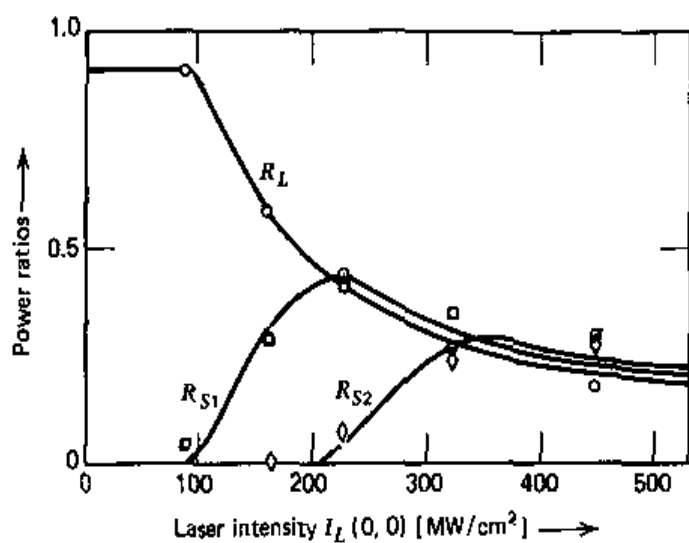
Το Σχ. 10.10 δείχνει το αποτέλεσμα στο αέριο υδρογόνου, το οποίο παρουσιάζει καλή συμφωνία μεταξύ θεωρίας και πειράματος. Ένα τέτοιο πείραμα κέρδους Raman ήταν

όμως, όχι και πολύ επιτυχημένο σε αυτοεστιαζόμενα μέσα, όπου η αυτοεστίαση και στον ταλαντωτή και στον ενισχυτή, οδήγησαν σε επιπλοκές.

Ακτινοβολία anti-Stokes και ακτινοβολία Raman υψηλότερης τάξης

Η anti-Stokes ακτινοβολία πολλών τάξεων μπορεί συχνά να παρατηρηθεί σε εξαναγκασμένη σκέδαση Raman.^{16, 17} Στη συμπυκνωμένη ύλη εμφανίζονται με τη μορφή φωτεινών πολύχρωμων δακτυλίων σε ένα επίπεδο, κάθετο στη δέσμη λέιζερ. Οι δακτύλιοι διαφορετικού χρώματος ανταποκρίνονται στις διαφορετικές τάξεις των anti-Stokes. Οι Chiao & Stoicheff¹² έδειξαν σε καλσίτη ότι η ακτινοβολία anti-Stokes $n^{\text{ης}}$ τάξης εκπέμπεται στην κατεύθυνση που δίνεται από την συνθήκη προσαρμογής φάσης $k_{a,n} = k_{a,n-1} + k_l - k_{s,n}$. Αυτό είναι αναμενόμενο, αν υποθέσουμε ότι υψηλότερης τάξης anti-Stokes παράγεται διαδοχικά από χαμηλότερης τάξης Stokes και anti-Stokes. Ο δακτύλιος πρώτης τάξης anti-Stokes θα πρέπει να ορίζεται από τη $k_a = 2k_l - k_s$ σύμφωνα με τη θεωρία.

Σε αυτοεστιαζόμενα υγρά, η κατάσταση είναι πιο πολύπλοκη. Οι κατευθύνσεις των anti-Stokes αλλάζουν τώρα από αυτά που είχαν οριστεί από την $k_{a,n} = k_{a,n-1} + k_l - k_{s,n}$, καθώς τώρα επηρεάζονται από την αυτοεστίαση. Ο Garnire¹⁶ μετάφρασε κάπως επιτυχώς αυτούς τους δακτυλίους, υποθέτοντας την ύπαρξη λεπτών νημάτων φωτός αντλίας, που προέρχεται από αυτοεστίαση στο μέσο. Το πρόβλημα, όμως, παραμένει, αφού η υπόθεση των νημάτων δεν είναι αρκετά έγκυρη.



Σχ. 10.11 Κανονικοποιημένο εκπεμπόμενο λέιζερ (R_L) και ισχύς δεύτερων Stokes (R_{S2}) ως συνάρτηση της προσπίπτουσας έντασης λέιζερ $I_L(0,0)$. Τα πειραματικά δεδομένα των R_L , R_{S1} και R_{S2} αναπαριστούνται με κύκλους, τετράγωνα και ρόμβους, αντίστοιχα. Οι καμπύλες υπολογίστηκαν σύμφωνα με τη θεωρία στην Ενότητα 10.5, με την διατομή πεπερασμένης δέσμης, να λαμβάνεται υπόψη. (Βιβλ. Αναφ. 13).

Η ακτινοβολία Stokes υψηλότερων τάξεων εμφανίζεται κυρίως κατά μήκος του άξονα στις πρόσθιες και οπίσθιες κατευθύνσεις. Οι ποσοτικές μελέτες είναι γενικά δύσκολες.

Χρησιμοποιώντας παλμούς διάρκειας υπο-νανοδευτερολέπτων, οι von der Linde κ.α.¹³, μπόρεσαν να διεξάγουν ποσοτική μελέτη σε μια ειδική περίπτωση. Ο βραχύς παλμός εισόδου διέγειρε μόνο την ακτινοβολία Stokes στην εμπρόσθια κατεύθυνση, όπως ήδη περιγράφηκε στην Ενότητα 10.5. Τα αποτελέσματά τους φαίνονται στο Σχ. 10.11. Ο θεωρητικός υπολογισμός κατά την (10.33), αλλά με μια γκαουσιανή κατατομή δέσμης, δείχνει να συμφωνεί αρκετά με το πείραμα.

Εξαναγκασμένη σκέδαση Raman μέσω πηγής αντλίας ευρείας ζώνης

Οι μετρήσεις κέρδους Raman κατά την απουσία αυτοεστίασης μπορούν ακόμα να δείξουν μια ασυμμετρία εμπρόσθιας – οπίσθιας κατεύθυνσης. Αυτό προέρχεται από το πεπερασμένο πλάτος γραμμής της δέσμης αντλίας. Το πλάτος γραμμής αντλίας είναι $2\Gamma_p$ και το πλάτος γραμμής Raman είναι 2Γ , οι θεωρίες προβλέπουν ότι το μέγιστο οπίσθιο κέρδος Raman είναι ανάλογο προς το $(\Gamma + \Gamma_p)^{-1}$ και το μέγιστο πρόσθιο κέρδος Raman είναι ανάλογο προς το Γ^{-1} , υποθέτοντας ότι δεν υπάρχει κάποια σχετική διασπορά μεταξύ των Stokes και των συχνοτήτων αντλίας.¹⁷ Αυτό το καταπληκτικό αποτέλεσμα μπορεί να κατανοηθεί ποιοτικά από την ακόλουθη εικόνα. Στην εμπρόσθια κατεύθυνση, καθώς ένα μικρό μέρος Δf από το κύμα Stokes διαδίδεται στο μέσο, αλληλεπιδρά πάντα κατά τρόπο σύμφωνο, με το ίδιο κομμάτι Δf από το κύμα αντλίας. Από την άλλη μεριά, εάν μικρό μέρος από το κύμα Stokes διαδίδεται οπισθοδρομικά, συναντά συνεχώς ένα καινούργιο κυματομέτωπο του κύματος αντλίας. Συνεπώς, το πρόσθιο κέρδος Raman ακολουθεί τη διακύμανση έντασης αντλίας και είναι ανάλογο προς το Γ^{-1} όπως προβλέφθηκε από τη στατική θεωρία που περιγράφηκε νωρίτερα. Το οπίσθιο κέρδος Raman μειώνεται, επειδή η διαδικασία ενίσχυσης φέρνει σε μια μέση κατάσταση το πλάτος και τη διακύμανση φάσης του πεδίου αντλίας. Μπορούν να εξαχθούν σαφή αποτελέσματα, για παράδειγμα, μελετώντας την ειδική περίπτωση εξαναγκασμένης σκέδασης Raman, μέσω ενός βραχύ παλμού αντλίας (δες Ενότητα 10.9), όπου το πλάτος της γραμμής αντλίας δίνεται από το αντίστροφο του πλάτους παλμού. Γενικότερα, θα πρέπει να χρησιμοποιηθούν στατιστικές θεωρίες για να περιγραφεί το πρόβλημα.¹⁷

Ανταγωνισμός μεταξύ ρυθμών Raman

Στη σταθερή εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, μόνο ο ρυθμός με το μέγιστο κέρδος εμφανίζεται να συμμετέχει στη διαδικασία. Είναι συνήθως ο ρυθμός που έχει και μεγάλη διατομή Raman και ένα στενό πλάτος γραμμής Raman. Η ενεργός μείωση της ισχύος λέιζερ σε αυτόν τον ρυθμό Raman απαγορεύει την εμφάνιση εξαναγκασμένης

σκέδασης σε άλλους ρυθμούς. Μόνο σε μεταβατικές περιπτώσεις (δες Ενότητα 10.10) θα εμφανιστούν αρκετοί ανταγωνιζόμενοι ρυθμοί ταυτόχρονα.

Αντίστροφο φαινόμενο Raman

Μια απώλεια στην ακτινοβολία αντλίας θα συνυπάρχει πάντα με το κέρδος στην ακτινοβολία Stokes σε μια εξαναγκασμένη διαδικασία Raman. Επομένως, και με το κύμα Stokes και με το κύμα αντλίας να στέλνονται στο μέσο, μπορεί να παρατηρήσει κανείς ταυτόχρονα το κέρδος του κύματος Stokes και την εξασθένιση του κύματος αντλίας. Η απορρόφηση της ακτινοβολίας αντλίας σε μια εξαναγκασμένη διαδικασία Raman, επιδείχθηκε για πρώτη φορά από τους Jones & Stoicheff και είναι γνωστή ως ‘αντίστροφο φαινόμενο Raman’.¹⁸

Ρυθμιζόμενες υπέρυθρες πηγές που παράγονται από εξαναγκασμένη σκέδαση Raman

Η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman με την μετατοπισμένη Raman έξοδό του, έχει θεωρηθεί για πολύ καιρό μια πολύ σημαντική μέθοδος για την παραγωγή σύμφωνης ακτινοβολίας σε νέες συχνότητες. Ειδικό ενδιαφέρον παρουσιάζουν οι ρυθμιζόμενες σύμφωνες πηγές. Αφού η συχνότητα Raman ενός μέσου είναι συνήθως σταθερό, η δυνατότητα ρύθμισης επιτυγχάνεται συχνά, με τη χρήση μιας ρυθμιζόμενης αντλίας λέιζερ.

Δυο συστήματα, είναι αυτά που έχουν τραβήξει την περισσότερη προσοχή. Το ένα είναι το σύστημα ατομικού ατμού, κυρίως ατμού από μέταλλα αλκαλικών και αλκαλικών γαιών. Οι μεταβάσεις Raman που εμπλέκονται είναι συχνά του τύπου $S \rightarrow P \rightarrow S$ ή $S \rightarrow P \rightarrow D$.^{19,20} Η πηγή ρυθμιζόμενης αντλίας είναι κοντά σε συντονισμό με τη μετάβαση $S \rightarrow P$, έτσι ώστε η διατομή Raman να αυξηθεί σημαντικά. Σαν αποτέλεσμα, παρόλο που η πυκνότητα ατομικού ατμού είναι μικρή ($\approx 10^{17}$ atoms/cm³ σε πίεση ≈ 10 torr), το κέρδος Raman είναι σημαντικό. Η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman με εκπομπή στο κοντινό υπέρυθρο μπορεί άμεσα να παρατηρηθεί. Με μια είσοδο έγχρωμου λέιζερ μερικών δέκατων kW σε αλκαλικό ατμό, η υπέρυθρη έξοδος μπορεί να έχει ένα συνεχές ρυθμιζόμενο εύρος μερικών εκατοντάδων cm⁻¹ και μια κορυφή στην απόδοση μετατροπής φωτονίου, τόσο μεγάλη που μπορεί να φτάσει και το 50%.²⁰ Το εύρος ρύθμισης μπορεί να επεκταθεί περαιτέρω, χρησιμοποιώντας διαφορετικές μεταβάσεις Raman. Για παράδειγμα, στο Cs, με μια ρυθμιζόμενη έγχρωμη αντλία λέιζερ στη μπλε και UV περιοχή, η παρατηρούμενη Stokes έξοδος εμφανίζεται στο εύρος μεταξύ 2,5 – 4,75 μm, 5,67 – 8,65 μm και 11,65 - 15 μm, προερχόμενη από τις μεταβάσεις Raman $6S \rightarrow 7S$, $6S \rightarrow 8S$ και

$6S \rightarrow 9S$, αντίστοιχα. Μπορεί να επεκταθεί στα $\lambda \approx 20 \mu\text{m}$, χρησιμοποιώντας τη μετάβαση $6S \rightarrow 10S$. Εάν ένα έγχρωμο λέιζερ ευρείας ζώνης χρησιμοποιηθεί ως είσοδος, η υπέρυθρη έξοδος θα έχει μέγεθος πλάτους ζώνης. Με ένα έγχρωμο λέιζερ παλμού, οι Bethune κ.α.²¹ παρήγαγαν την υπέρυθρη δέσμη ευρείας ζώνης και τη χρησιμοποίησαν για να λάβουν φασματική απορρόφηση μορίων μιας κρούσης. Για να αυξήσουν την ευαισθησία ανίχνευσης, μετέτρεψαν σε μεγαλύτερη ανάλυση το υπέρυθρο σήμα που εκπέμφθηκε μέσω του δείγματος στο ορατό, κάνοντας μη γραμμική ανάμιξη σε ένα άλλο κελί αλκαλικού ατμού. Η τεχνική επιτρέπει την καταγραφή του υπέρυθρου φάσματος των μεταβατικών χημικών ειδών με ανάλυση νανοδευτερολέπτων, χρησιμοποιώντας λέιζερ παλμού νανοδευτερολέπτων.

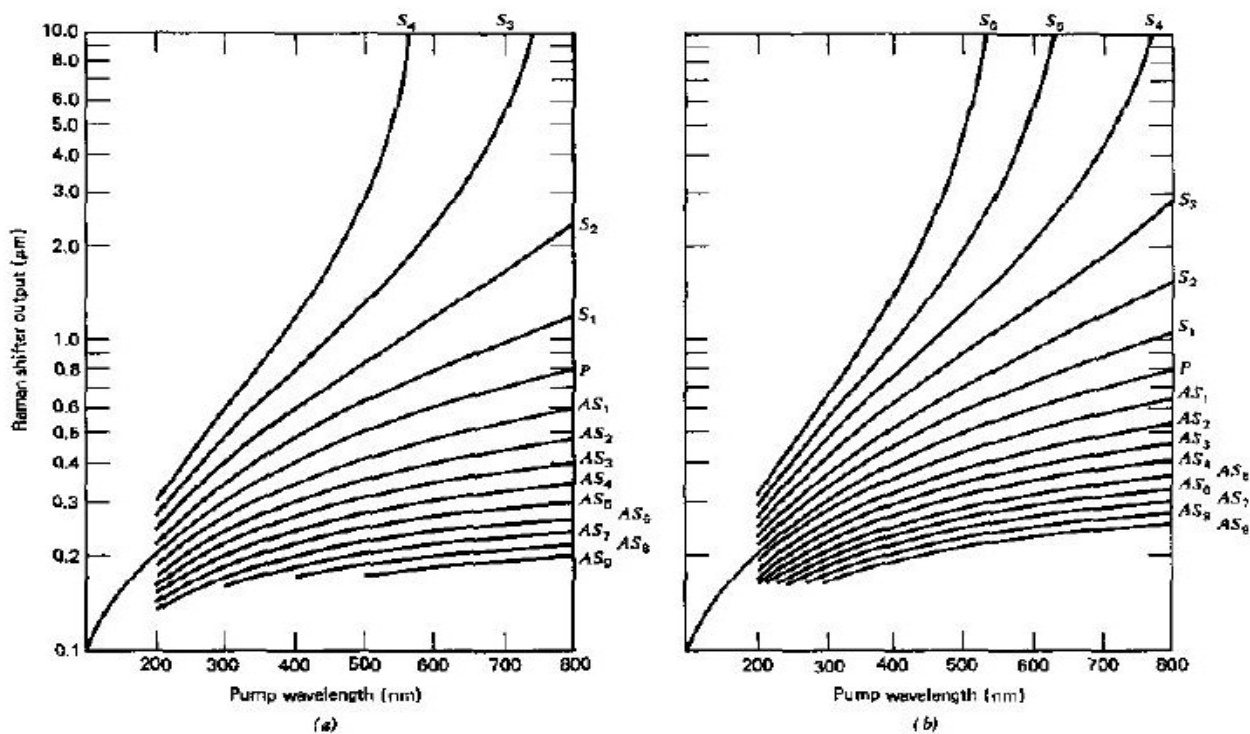
Σε υψηλή ισχύ αντλίας, η ισχύς εξόδου από την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman στον ατομικό ατμό είναι συχνά περιορισμένη από το γεγονός της πολυφωτονικής απορρόφησης και του ιονισμού, του κορεσμού πληθυσμού, της φασματικής διεύρυνσης που προκαλείται από το πεδίο, και άλλων μη γραμμικών οπτικών διαδικασιών.²⁰ Όμως, έχει παρατηρηθεί σε ατμό Ba, έξοδος, που φτάνει τα 30mJ στα $\lambda \approx 2,9\mu\text{m}$, με απόδοση μετατροπής φωτονίου 40%. Η έξοδος Stokes από ατομικό ατμό τείνει να έχει ένα πλάτος γραμμής, που αυξάνεται με την ένταση αντλίας. Αυτή η διεύρυνση γραμμής ίσως προέρχεται από το φαινόμενο Stark που προκαλείται από φωτοϊονισμένα άτομα, ή κορεσμό στη μετάβαση Raman ή άλλα: ο μηχανισμός που επικρατεί σε αυτό, δεν έχει ακόμη αναγνωρισθεί.

Ένα άλλο σύστημα με τεράστιο πρακτικό ενδιαφέρον είναι το σύστημα μορίων αερίων, όπως H_2 , N_2 . Αυτά τα απλά μόρια έχουν πολύ δυνατούς ρυθμούς Raman. Μπορούμε να αναμένουμε έντονη έξοδο Raman από ένα κελί αερίου μερικών δέκατων του εκατοστού μακρύ, σε μικρή ατμοσφαιρική πίεση, με μερικά μεγαβάτ ανά τετραγωνικό εκατοστό ένταση λέιζερ, στο ορατό (φάσμα).²² Το μοριακό υδρογόνο είναι ίσως το πιο ενδιαφέρον, λόγω της μεγάλης του μετατόπισης Raman (4155 cm^{-1}). Με μια πηγή αντλίας $\lambda \approx 7500 \text{ \AA}$, η έξοδος Stokes τρίτης τάξης έχει ένα μήκος κύματος μεγαλύτερο από $10\mu\text{m}$. Το Σχ. 10.12 δείχνει το προσβάσιμο εύρος μήκους κύματος, που οι διάφορες τάξεις εξόδου Stokes και anti-Stokes από H_2 και D_2 , μπορούν να καλύψουν, με μια πηγή ρυθμιζόμενης αντλίας μεταξύ 2000 και 8000 \AA . Η ισχύς εξόδου μπορεί να είναι σημαντική, όπως φαίνεται στον Πίνακα 10.2 για ένα εμπορικό προϊόν.

Εξοδος Raman από RS-1^a

Μήκος κύματος (nm) ^b	Ενέργεια (mJ)	Πίεση (psi) ^c
With 560-nm Pump Beam^d		
195 (AS ₈)	.0031	125
213 (AS ₇)	.0091	125
234 (AS ₆)	.024	110
259 (AS ₅)	.054	115
290 (AS ₄)	.10	145
330 (AS ₃)	.26	160
382 (AS ₂)	.78	190
454 (AS ₁)	2.1	200
730 (S ₁)	17	90
1048 (S ₂)	6.2	300
1855 (S ₃)	.60	275
With 280-nm Pump Beam^e		
207 (AS ₃)	.038	100
227 (AS ₂)	.19	125
251 (AS ₁)	.54	125
317 (S ₁)	2.2	40
365 (S ₂)	3.1	300
430 (S ₃)	1.2	160
524 (S ₄)	0.24	110
669 (S ₅)	0.060	100

Πίνακας 10.2 Έξοδος Raman από RS-1^a.^(a) Quanta-Ray, Inc., διαφημιστικό φυλλάδιο στον Raman Shifter RS-1, ^b το S_i δηλώνει το ith μήκος κύματος Stokes, το AS_i δηλώνει το ith μήκος κύματος anti-Stokes, ^c Αέριο: H₂ στους 300° K, ^d Αντλία: 85mJ στα 560nm από ένα Quanta-Ray PDL-1 έγχρωμο λέιζερ αντλούμενο από ένα DCR-1A Nd: YAG laser, ^e Αντλία: 17 mJ στα 280nm από ένα έγχρωμο λέιζερ διπλής συχνότητας Quanta-Ray PDL-1, που αντλείται από ένα DCR-1A Nd: YAG laser.



Σχ. 10.12 Οι οικογένειες καμπυλών δείχνουν τα θεωρητικώς πιθανά μήκη κύματος προσβάσιμα από τη χρήση του (α), με μια μετατόπιση Raman 4155cm⁻¹ και (β) D₂ με μια μετατόπιση Raman 2987cm⁻¹, όπως τα αέρια αντλίας. (Διαφημιστικό φυλλάδιο για τον Raman Shifter, Quanta-Ray, Inc.)

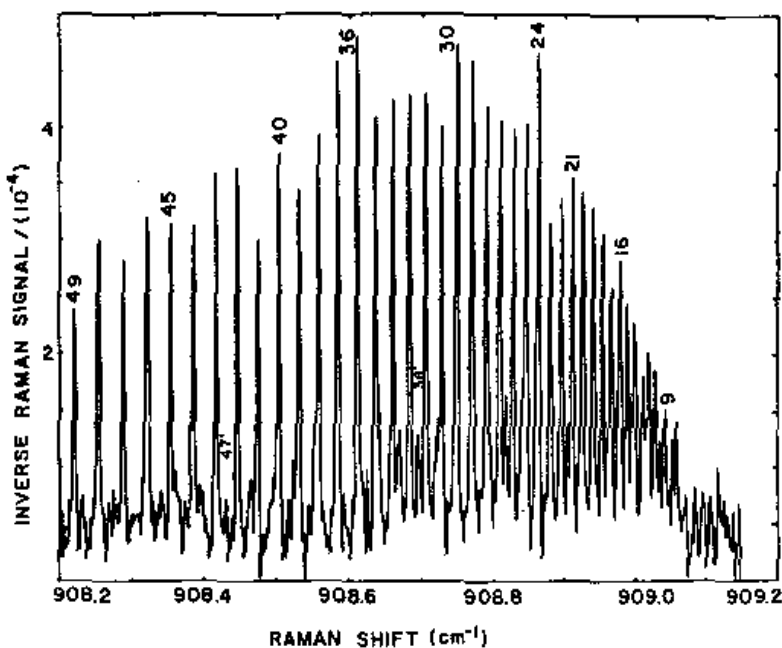
Μπορεί να βελτιωθεί, χρησιμοποιώντας το σχήμα ταλαντωτή – ενισχυτή, όπως στην περίπτωση του έγχρωμου λέιζερ, το οποίο αντλούνταν από ένα άλλο λέιζερ. Έχει

επιτευχθεί απόδοση μετατροπής ως και 80% στην έξοδο Stokes.

Υπέρυθρο CO_2 μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί για να παραχθεί η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman σε μόρια αερίων. Αποφέρει για παράδειγμα, μια έξοδο Stokes γύρω στα $16\mu\text{m}$ από CH_4 . Μια απόδοση μετατροπής περίπου $\sim 10\%$ μπορεί να επιτευχθεί.²⁴ Η ακτινοβολία $16\mu\text{m}$ είναι εξαιρετικής σημασίας για τον διαχωρισμό ισοτόπου ουρανίου με λέιζερ, μέσω δονητικής διέγερσης του UF_6 . Μπορεί επίσης να ληφθεί με εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, μέσω περιστροφικής μετάβασης σε μόρια παρα-υδρογόνου, χρησιμοποιώντας λέιζερ CO_2 . Έχει παρατηρηθεί μια ενέργεια εξόδου περισσότερο από 1J και ισχύς κορυφής $\sim 20\text{MW}$ με μια απόδοση μετατροπής φωτονίου 85%.²⁵ Ρυθμιζόμενη έξοδος μακρινού υπέρυθρου ως και $257\mu\text{m}$ έχει επίσης παραχθεί από εξαναγκασμένη σκέδαση Raman μέσω περιστροφικών μεταβάσεων $Q(J)$ στο HF χρησιμοποιώντας την ρυθμιζόμενη έξοδο υπέρυθρων από την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman στο H_2 , από ένα έγχρωμο λέιζερ έκλαμψης, ως αντλία πηγής.²⁶

Ρυθμιζόμενη UV πηγή παραγόμενη από σκέδαση anti-Stokes

Η εξαναγκασμένη σκέδαση anti-Stokes Raman είναι πιθανή, αν μια μετάβαση Raman έχει έναν αντίστροφο πληθυσμό [$\rho_i < \rho_f$ στην (10.5) που οδηγεί σε θετικό εκθετικό κέρδος για το E_1 πεδίο].

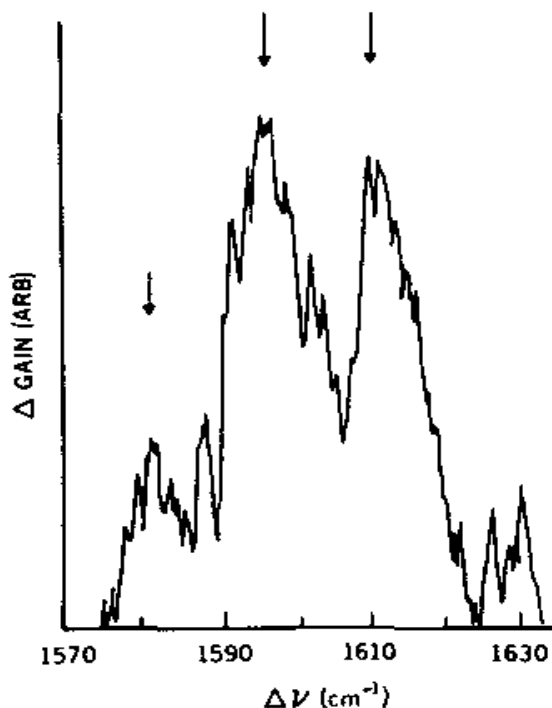


Σχ. 10.13 Αντίστροφο φάσμα Raman κοντά στην περιοχή του ν_1 θεμελίου του CF_4 στα 4 Torr. Θεμέλιες και θερμής ζώνης μεταβάσεις, ονομάζονται J και J' αντίστοιχα. Χρησιμοποιήθηκε ισχύς 2MW και 100mW για το λέιζερ αντλίας και το δοκιμαστικό λέιζερ, αντίστοιχα. Μια σταθερά χρόνου 3-sec χρησιμοποιήθηκε για να μετριάσει τα σήματα 10pps. [A.Owyoung, στο W.O.N. Guimaraes, C.T. Lin & A.Mooradian, eds, 'Lasers and Applications (Springer-Verlag Berlin, 1981), σελ. 67].

Αυτό έχει προταθεί ως μέσο για να παραχθεί μια ενδεχομένως ισχυρή υν πηγή, που είναι ευρέως ρυθμιζόμενη. Για να επιτευχθεί ο αντίστροφος πληθυσμός, είναι γενικά αναγκαίο

να επιλεγεί μια μετασταθής κατάσταση, ως η ανώτερη κατάσταση στην μετάβαση Raman. Ο πληθυσμός μπορεί να αντληθεί στη μετασταθή κατάσταση με πολλές μεθόδους. Σε μια πρόσφατη επίδειξη²⁷, η φωτοδιάσπαση χρησιμοποιήθηκε για να ληφθεί αντίστροφος πληθυσμός μεταξύ μετασταθούς κατάστασης και βασικής κατάστασης ενός τμήματος της διάσπασης και τότε, παρατηρήθηκε εξαναγκασμένη σκέδαση anti-Stokes Raman από τη μετασταθή κατάσταση. Για παράδειγμα, μέσω άντλησης ArF λέιζερ, το TICl διασπάστηκε σε TI και Cl. Το προϊόν θαλίου ήταν στην $6p^2P^0_{3/2}$ μετασταθή κατάσταση. Θα μπορούσε να φτάσει μια συγκέντρωση 4×10^{16} atoms/cm³ από την αρχική TICl συγκέντρωση $6,9 \times 10^{16}$ molecules/cm³. Αν η έξοδος δεύτερης ή τρίτης αρμονικής από ένα Q-switched Nd: YAG λέιζερ διαδιδόταν στο φωτοδιασπασμένο σύστημα, τότε εξαναγκασμένη anti-Stokes Raman εκπομπή από $6p^2P^0_{3/2}$ στην βασική κατάσταση $6p^2P^0_{3/2}$ του TI ήταν άμεσα φανερή. Μια απόδοση μετατροπής 10% επιτεύχθηκε σε ένα κελί 25cm μακρύ.

Ακόμα και η αυθόρμητη anti-Stokes Raman μπορεί να είναι χρήσιμη ως ακτινοβολία πηγής²⁸. Χρησιμοποιώντας μια υψηλού επιπέδου μετασταθή κατάσταση, η εκπομπή μπορεί να είναι ρυθμιζόμενη για τις στενές περιοχές στο XUV. Μια τέτοια πηγή μπορεί να έχει τις μοναδικές ιδιότητες στενού πλάτους γραμμής, υπερβραχύ πλάτος παλμού και σχετικά υψηλή φασματική φωτεινότητα κορυφής.



Σχ. 10.14 Το φάσμα κέρδους Raman ενός μονοστρωματικού *p*-νιτροβενζοϊκού οξέως (PNBA) σε έναν λεπτό υμένα οξειδίου αλουμινίου, υποστηριζόμενο από φθοριούχο νάτριο.

Η θεωρία της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman στην Ενότητα 10.2 ή 10.3 δείχνει μια Stokes ενίσχυση κέρδους $G_R(\omega_l - \omega_s)$ και μια αντίστοιχη εξασθένιση αντλίας και τα δυο

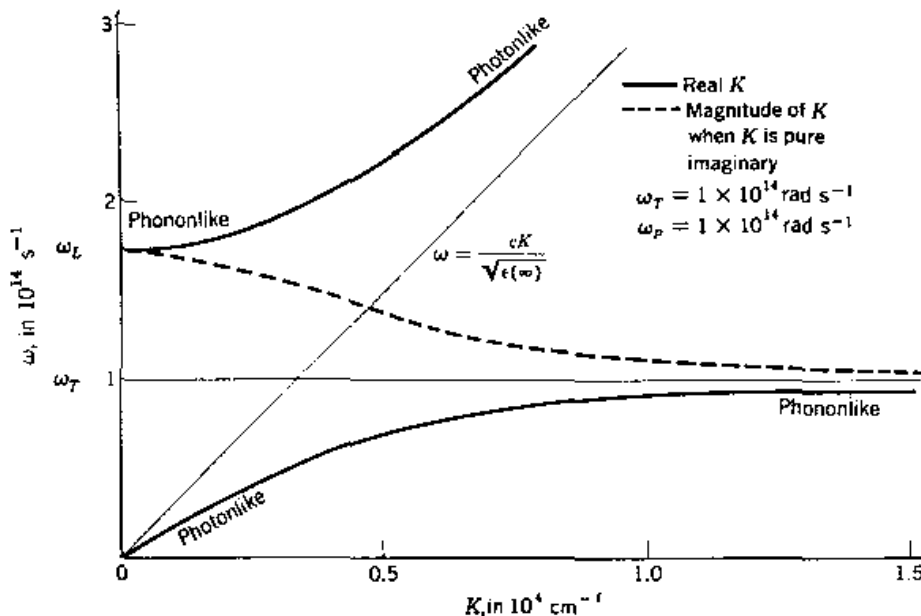
ανάλογα προς το σχήμα γραμμής Raman. Επομένως, οι μετρήσεις του κέρδους Stokes ως προς το $\omega_l - \omega_s$ (γνωστές ως φασματοσκόπηση εξαναγκασμένου κέρδους Raman) ή μετρήσεις της εξασθένισης αντλίας ως προς το $\omega_l - \omega_s$ (γνωστές ως αντίστροφη φασματοσκόπηση Raman), θα πρέπει να αποφέρουν ένα φάσμα πανομοιότυπο με αυτό που παράχθηκε από την αυθόρμητη σκέδαση Raman. Η σύμφωνη φασματοσκοπική τεχνική, όμως, έχει δυο σημαντικά πλεονεκτήματα. Πρώτον, δε χρειάζεται μετρητής φάσματος, έτσι ώστε η φασματική ανάλυση να περιορίζεται μόνο από τα πλάτη γραμμών του λέιζερ, τα οποία μπορεί να είναι πολλές τάξεις μεγέθους καλύτερα από την ανάλυση του μετρητή φάσματος. Μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να ληφθεί φάσμα Raman αερίων υψηλής ανάλυσης, κάτι που δε γίνεται αντιληπτό με την αυθόρμητη σκέδαση Raman⁸. Ένα παράδειγμα φαίνεται στο Σχ. 10.13. Δεύτερον, με λέιζερ παλμού εγκλείδωσης ρυθμού CW και με μια διάταξη ανίχνευσης locked-in, η σύμφωνη τεχνική μπορεί να είναι εξαιρετικά ευαίσθητη και μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να μελετηθεί το φάσμα Raman από λεπτούς υμένες και απορροφητικά μόρια²⁹. Η μονοστρωματική ανίχνευση είναι πιθανή, όπως έχει επιδειχθεί από τον Heritage και φαίνεται στο Σχ.10.14.

10.7 Εξαναγκασμένη σκέδαση πολαριτόνιου

Η υλική διέγερση ρ_{fi} που συζητήθηκε στην Ενότητα 10.3 μπορεί σε γενικές γραμμές να είναι και υπέρυθη και ενεργός Raman, δηλαδή, μπορεί να διεγείρεται και από την διφωτονική διαδικασία Raman και από την μονοφωτονική διαδικασία απορρόφησης υπέρυθρων. Αυτή είναι η περίπτωση, για παράδειγμα, με φωνόνια σε πολικούς κρυστάλλους. Η απευθείας σύζευξη μεταξύ υπέρυθρων και κυμάτων φωνονίων σχηματίζουν στην πραγματικότητα ένα αναμειγμένο κύμα διέγερσης, το οποίο είναι συνήθως γνωστό ως πολαριτόνιο.³⁰ Μια τυπική καμπύλη διασποράς ενός πολικού κρυστάλλου φαίνεται στο Σχ. 10.15. Εξαιτίας της έντονης διασποράς στην $k \approx \omega \varepsilon^{1/2}/c$ περιοχή, η σκέδαση Raman από πολαριτόνια, δείχνει μια μετατόπιση της συχνότητας Raman, η οποία εξαρτάται από τη γωνία σκέδασης, όπως υπαγορεύεται από τις συνθήκες προσαρμογής συχνότητας και κυματοδιάνυσματος $\omega_l = \omega_s + \omega_3$ και $k_l = k_s + k_3$, όπου οι ω_3 και k_3 είναι η συχνότητα και το κυματοδιάνυσμα του πολαριτόνιου.

Η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman από πολαριτόνια (ή εξαναγκασμένη σκέδαση πολαριτονίων) συμβαίνει, όταν η διέγερση αντλίας είναι αρκετά δυνατή. Μπορεί και πάλι να περιγραφεί από την προσέγγιση συζευγμένου κύματος. Τέσσερα αλληλεπιδρώντα κύματα εμπλέκονται τώρα στο πρόβλημα: η αντλία E_l , η Stokes E_s , η υπέρυθη E_3 και η

υλική διέγερση ρ_{fi} . Η διαδικασία μπορεί να θεωρηθεί ένας συνδυασμός της διαδικασίας παραμετρικής γένεσης που συζητήθηκε στο Κεφάλαιο 9 και της εξαναγκασμένης διαδικασίας Raman που συζητήθηκε σε προηγούμενες ενότητες.



Σχ. 10.15 Συζευγμένοι ρυθμοί φωτονίων και εγκάρσιων οπτικών φωνονίων στον ιονικό κρύσταλλο. Η λεπτή οριζόντια γραμμή αντιπροσωπεύει ταλαντωτές στη συχνότητα ω_T κατά την απουσία σύζευξης στο ηλεκτρομαγνητικό πεδίο και η λεπτή γραμμή με την ονομασία $\omega = cK/\sqrt{\epsilon(\infty)}$ αντιστοιχεί στα ηλεκτρομαγνητικά κύματα στον κρύσταλλο, αλλά μη συζευγμένο με τους ταλαντωτές πλέγματος στην ω_T . Οι χονδρές γραμμές είναι οι σχέσεις διασποράς κατά την παρουσία σύζευξης μεταξύ των ταλαντωτών πλέγματος και του ηλεκτρομαγνητικού κύματος. Μια επίδραση της σύζευξης είναι ότι δημιουργεί συχνοτικό κενό μεταξύ ω_L και ω_T . Μέσα σε αυτό το κενό, το κυματοδιάνυσμα είναι καθαρά φανταστικό, με μέγεθος που δίνεται από τη διακεκομμένη γραμμή στο σχήμα. [C. Kittel, "Introduction to Solid State Physics", 5^η έκδ. (Wiley, New York, 1976), σελ. 304].

Οι κυματικές εξισώσεις για τα τέσσερα κύματα³¹ είναι

$$\begin{aligned} \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_1^2}{c^2} \epsilon_1 \right] \mathbf{E}_1 &= \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \hat{e}_1 \left[\chi^{(2)*} E_s E_3 + N M_{f1}^* E_s \rho_{f1} \right], \\ \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_s^2}{c^2} \epsilon_s \right] \mathbf{E}_s &= \frac{4\pi\omega_s^2}{c^2} \hat{e}_s \left[\chi^{(2)} E_1 E_3^* + N M_{f1} E_1 \rho_{f1}^* \right], \\ \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_3^2}{c^2} \epsilon_3 \right] \mathbf{E}_3 &= \frac{4\pi\omega_3^2}{c^2} \hat{e}_3 \left[\chi^{(2)} E_1 E_s^* + N A_{f1}^* \rho_{f1} \right], \end{aligned} \quad (10.34) \text{ και}$$

$\left(\frac{\partial}{\partial t} + i\omega_{f_i} + \Gamma_{f_i}\right)\rho_{f_i} = \frac{i}{\hbar}(A_{f_i}E_3 + M_{f_i}E_lE_s^*)(\rho_i - \rho_f)$, όπου $\chi^{(2)}$ είναι η συνηθισμένη δευτέρας τάξης μη γραμμική επιδεκτικότητα και $A_{f_i} = \langle f | -er \cdot \hat{e}_3 | i \rangle$ είναι το στοιχείο πίνακα μετάβασης για την υπέρυθη διεγέρση του υλικού συστήματος από $|i\rangle$ σε $|f\rangle$. Οι μη συντονισμένοι όροι τρίτης τάξης $\chi_{NR}^{(3)}|E_l|^2E_j$ στην (10.34) έχουν παραληφθεί για λόγους απλοποίησης.

Αν η απόκριση του ρ_{f_i} είναι στατική, τότε εξαλείφοντας το ρ_{f_i} , η (10.34) γίνεται

$$\begin{aligned}
 \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_l^2}{c^2}\epsilon_l\right]\mathbf{E}_l &= \frac{4\pi\omega_l^2}{c^2}\hat{e}_l[\chi_{\text{eff}}^{(2)*}E_sE_3 + \chi_R^{(3)*}|E_s|^2E_l], \\
 \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_s^2}{c^2}\epsilon_s\right]\mathbf{E}_s &= \frac{4\pi\omega_s^2}{c^2}\hat{e}_s[\chi_{\text{eff}}^{(2)}E_lE_3^* + \chi_R^{(3)}|E_l|^2E_s], \\
 \left[\nabla \times (\nabla \times) - \frac{\omega_3^2}{c^2}\epsilon_{3,\text{eff}}\right]\mathbf{E}_3 &= \frac{4\pi\omega_3^2}{c^2}\hat{e}_3\chi_{\text{eff}}^{(2)}E_lE_s^*
 \end{aligned} \tag{10.35}, \text{ όπου}$$

$$\begin{aligned}
 \chi_{\text{eff}}^{(2)} &= \chi^{(2)} - \frac{NA_{f_i}^*M_{f_i}(\rho_i - \rho_f)}{\hbar(\omega_3 - \omega_{f_i} + i\Gamma_{f_i})} \\
 \chi_R^{(3)} &= -\frac{N|M_{f_i}|^2(\rho_i - \rho_f)}{\hbar(\omega_3 - \omega_{f_i} + i\Gamma_{f_i})} \\
 \epsilon_{3,\text{eff}} &= \epsilon_3 - \frac{N|A_{f_i}|^2(\rho_i - \rho_f)}{\hbar(\omega_3 - \omega_{f_i} + i\Gamma_{f_i})}
 \end{aligned} \tag{10.36}, \text{ όπου } k_3 = (\omega_3/c)\epsilon_{3,\text{eff}}^{1/2} \text{ περιγράφει στην}$$

πραγματικότητα την καμπύλη διασποράς πολαριτόνιου. Η λύση της (10.35) μοιάζει και πάλι με αυτήν της παραμετρικής γένεσης. Με ένα συνοριακό επιπέδου στο $z=0$ και υποθέτοντας ότι δεν υπάρχει απώλεια άντλησης, η σχέση παίρνει τη μορφή

$$\begin{aligned}
 E_s^* &= [\mathcal{E}_{s+}^* \exp(i\Delta K_+ z) + \mathcal{E}_{s-}^* \exp(i\Delta K_- z)] \exp(-i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}), \\
 E_3 &= [\mathcal{E}_{3+} \exp(i\Delta K_+ z) + \mathcal{E}_{3-} \exp(i\Delta K_- z)] \exp(i\mathbf{k}_3 \cdot \mathbf{r} + i\Delta k z),
 \end{aligned} \tag{10.37}, \text{ όπου}$$

$$\begin{aligned}
k &= \frac{\omega}{c} (\epsilon_{3, \text{eff}})^{1/2}, \\
\Delta k &= k_{Iz} - k_{sz} - k_{3z}, \quad k_z = \mathbf{k} \cdot \hat{z}, \\
\Delta K_{\pm} &= \frac{1}{2}(\gamma_s - \gamma_3) \pm \frac{1}{2}[(\gamma_s + \gamma_3)^2 - 4\Lambda]^{\frac{1}{2}}, \\
\gamma_s &= \frac{k_s}{2k_{sa}} (i\alpha_s + 2k_R), \\
k_R &= \frac{\omega_s^2}{2k_{sz}c^2} 4\pi\chi_R^{(3)}|E_I|^2, \\
\gamma_3 &= -\Delta k - i\left(\frac{k_3}{2k_{3z}}\right)\alpha_3, \\
\Lambda &= \frac{4\pi^2\omega_s^2\omega_3^2}{c^2k_{sz}k_{3z}} (\chi_{\text{eff}}^{(2)})^2 |E_I|^2, \\
\left|\frac{\mathcal{G}_3}{\mathcal{G}_s^*}\right| &= \left(\frac{\omega_3^2 k_{sa}}{\omega_s^2 k_{3z}}\right)^{1/2} |\Lambda^{1/2}(\Delta K_{\pm} + \gamma_3)|.
\end{aligned}
\tag{10.38}$$

Όπως θα περίμενε κανείς, η λύση εδώ μικραίνει όπως αυτή της απλής γένεσης Raman-Stokes και της παραμετρικής ενίσχυσης, αντίστοιχα, όταν η σύζευξη του υπέρυθρου πεδίου E_3 με τα άλλα κύματα μηδενίζεται [$A_{fi} = 0$ και $\chi^{(2)} = 0$] και όταν η μη γραμμική σύζευξη του ρ_{fi} με το E_I και E_3 μηδενίζεται ($M_{fi} = 0$). Αριθμητικά παραδείγματα σε GaP και LiNbO₃ μπορούν να βρεθούν στους Henry, Garrett και στον Sussman.³²

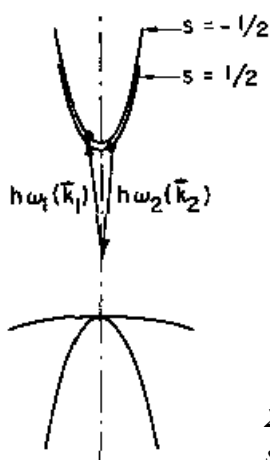
Προσαρμόζοντας κατάλληλα τη σχετική γωνία μεταξύ k_I και k_s ώστε να ρυθμιστεί κατά μήκος η καμπύλη διασποράς πολαριτονίου, η έξοδος της εξαναγκασμένης σκέδασης πολαριτονίου είναι ρυθμιζόμενη. Αυτό έχει αποδειχθεί σε κρύσταλλο LiNbO₃.³³ Σε έναν συντονισμό, μέχρι και το 70% της ισχύος του λέιζερ μπορεί να μετατραπεί σε Stokes. Η υπέρυθρη έξοδος είναι ρυθμιζόμενη από 50 ως 238 cm⁻¹. Η κορυφή ισχύος βρέθηκε ότι είναι 5W όταν μια δέσμη αντλίας 1MW από ένα λέιζερ ρουμπινιού Q-switched με διάμετρο δέσμης 2mm, εστιάστηκε σε έναν κρύσταλλο LiNbO₃ 3,3cm από φακούς f=50cm. Η έξοδος είναι περιορισμένη επειδή ο LiNbO₃ έχει χαμηλό κατώφλι ζημίας. Στην πράξη, πρέπει να χρησιμοποιηθούν λέιζερ μονού, για να αποφευχθούν τα θερμά σημεία στη δέσμη, που αυξάνουν την πιθανότητα ζημίας. Μέσω παρατήρησης, έχει επίσης αναφερθεί έξοδος μακρινού υπέρυθρου από εξαναγκασμένη σκέδαση πολαριτονίου σε κρύσταλλο χαλαζία.

10.8 Εξαναγκασμένη σκέδαση spin-flip Raman

Ένας εναλλακτικός τρόπος για να λάβουμε ρυθμιζόμενη έξοδο από εξαναγκασμένη σκέδαση Raman είναι να χρησιμοποιηθεί μια σταθερή συχνότητα αντλίας και να ρυθμιστεί η συχνότητα συντονισμού της διέγερσης του υλικού. Η εξαναγκασμένη σκέδαση μεταξύ των επιπέδων Zeeman είναι ένα παράδειγμα: η συχνότητα συντονισμού ρυθμίζεται από το εφαρμοζόμενο μαγνητικό πεδίο. Δυστυχώς, το εύρος ρύθμισης είναι συνήθως μικρό. Ο διαχωρισμός Zeeman $2\mu_B g B = gB/21,4 \text{ cm}^{-1}$, με B σε kOersted, είναι

μόνο $\sim 1\text{cm}^{-1}$ για $g = 2$ και $B = 10$ kOersted. Σε μερικά στερεά, όμως, ο ενεργός παράγοντας g μπορεί να είναι πολύ μεγαλύτερος, για παράδειγμα, $g \approx 50$ σε InSb. Τότε, όταν το B κυμαίνεται από 0 ως 100 kOersted, ο διαχωρισμός Zeeman μπορεί να ρυθμιστεί πάνω από $\sim 240\text{cm}^{-1}$. Αυτό είναι ένα λογικά μεγάλο εύρος ρύθμισης.

Τυχαίνει ο InSb να είναι καλός σκεδαστής Raman στο υπέρυθρο. Τα επίπεδα Zeeman των ηλεκτρονίων ζώνης σε ημιαγωγούς είναι συνήθως γνωστά ως επίπεδα Landau και η σκέδαση Raman μεταξύ των καταστάσεων spin-up και spin-down, ονομάζεται σκέδαση Raman spin-flip, η οποία περιγράφεται σχηματικά στο Σχ. 10.16. Οι Wolf & Yafet³⁴



Σχ. 10.16 Σχηματική αναπαράσταση της διαδικασίας spin-flip Raman σε InSb.

έδειξαν ότι η διατομή Raman spin-flip δίνεται από τη σχέση

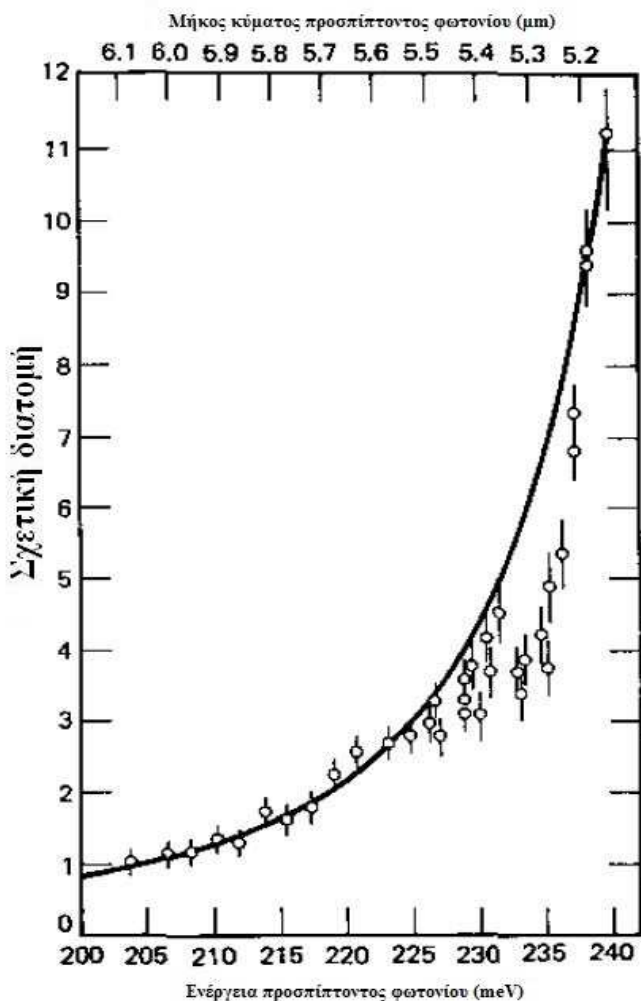
$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{SF}} \cong \left(\frac{e^2}{m_s c^2}\right)^2 \left(\frac{\omega_s}{\omega_l}\right) \left[\frac{E_g \hbar \omega_l}{E_g^2 - \hbar^2 \omega_l^2}\right]^2 \quad (10.39)$$

για πολώσεις αντλίας και Stokes κάθετες μεταξύ τους, όπου $m_s = 2m/|g|$ είναι η μάζα του στροβιλιζόμενου ηλεκτρονίου (electron spin), m είναι η μάζα του φυσικού ηλεκτρονίου και E_g είναι το ενεργειακό χάσμα. Στον InSb, έχουμε $g \approx 50$ και $E_g = 1900\text{cm}^{-1}$. Τότε, με $E_g \hbar \omega_l / (E_g^2 - \hbar^2 \omega_l^2) \sim 1$, η διατομή spin-flip Raman είναι ήδη ~ 600 φορές μεγαλύτερη από τη διατομή στη σκέδαση Thomson για τα ελεύθερα ηλεκτρόνια, που είναι $(e^2/mc^2)^2 \sim 10^{-26}\text{cm}^2/\text{ster}$. Αυτό είναι που πραγματικά παρατηρήθηκε σε InSb με λέιζερ CO_2 ($\omega_l = 940\text{cm}^{-1}$). Συγκριτικά, η διατομή Raman για τον δυνατότερο ρυθμό του βενζολίου στα 992cm^{-1} είναι $2 \times 10^{-30}\text{cm}^2/\text{ster}$ στο ορατό φάσμα. Για $\hbar \omega \approx E_g$, το $(d\sigma/d\Omega)_{\text{SF}}$ μπορεί να είναι ακόμα μεγαλύτερο, ως αποτέλεσμα της ενίσχυσης συντονισμού, όπως φαίνεται στο Σχ. 10.17. Με ένα λέιζερ CO στην $\omega_l = 1800\text{cm}^{-1}$, το $(d\sigma/d\Omega)_{\text{SF}}$

βρέθηκε ότι είναι $\sim 10^5$ φορές εντονότερο από τη διατομή στη σκέδαση Thomson.

Σύμφωνα με την (10.8), το κέρδος εξαναγκασμένης σκέδασης Raman G_R είναι ανάλογο προς το $N(d\sigma/d\Omega)G^{-1}$, και η πυκνότητα N εδώ, για σκέδαση spin-flip, αναφέρεται στην πυκνότητα φορέα. Στην περίπτωση των ημιαγωγών τύπου n (Σχ.10.16), N είναι η πυκνότητα ηλεκτρονίου στη ζώνη αγωγής. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα, το G_R εδώ να είναι μερικώς ζημιωμένο από το N , το οποίο είναι πάντα πολύ μικρότερο από την ατομική ή μοριακή πυκνότητα σε συμπυκνωμένη ύλη. Ακόμα κι έτσι, για $n > 10^{16}/\text{cm}^3$, είναι ακόμα μεγαλύτερο από εκείνα στα άλλα συμπυκνωμένα μέσα, αν το μισό πλάτος Γ είναι υποθετικά το ίδιο. Στην πραγματικότητα, το Γ του InSb είναι αρκετά στενό σε χαμηλές θερμοκρασίες και εξαρτάται από τον φορέα συγκέντρωσης και το $\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{H}$. Μπορεί να είναι τόσο στενό, μέχρι και $0,15 \text{ cm}^{-1}$ με $n = 1 \times 10^{16}/\text{cm}^3$.³⁵

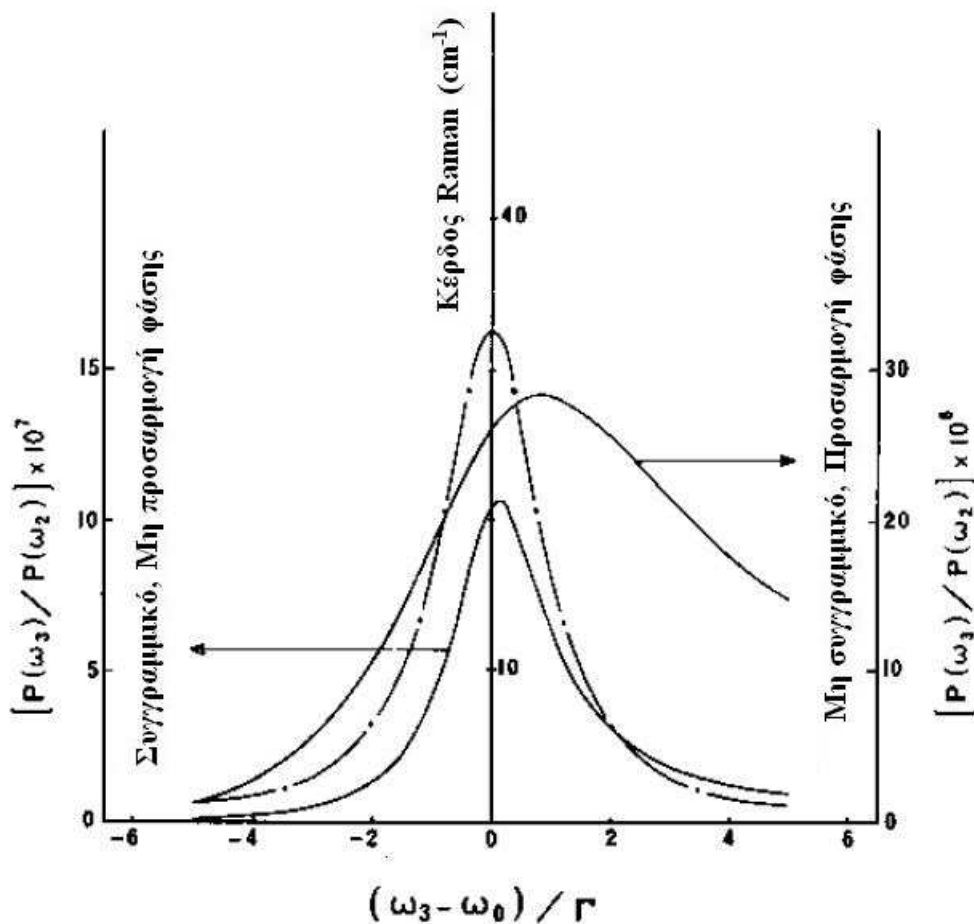
Υποθέτοντας ότι $\Gamma = 2 \text{ cm}^{-1}$, $N = 3 \times 10^{16}/\text{cm}^3$ και $\rho_i - \rho_f = 1$ στην (10.8), βρίσκουμε στον n -InSb ένα κέρδος spin-flip Raman $G_R = 1,7 \times 10^{-5} I \text{ cm}^{-1}$, όπου I είναι



Σχ. 10.17 Ενίσχυση συντονισμού αυθόρμητης σκέδασης spin-flip Raman ως συνάρτηση της ενέργειας εισόδου του φωτονίου ($n = 1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, $H=40 \text{ KOe}$ και $T=30 \text{ K}$). [S.R. Brueck & A.Mooradian, *Phys. Rev. Lett.* 28, 161 (1972)]

η ένταση του λέιζερ CO₂ σε watts / cm². Αυτό είναι το μεγαλύτερο γνωστό κέρδος Raman που έχει βρεθεί για όλα τα υλικά. Το κέρδος μπορεί να αυξηθεί περαιτέρω προσαρμόζοντας κατάλληλα το N , ώστε να αποφέρει τη βέλτιστη τιμή για $N\Gamma^{-1}$ και μετακινώντας το $\hbar\omega_1$ πιο κοντά στο E_g . Στη συχνότητα του λέιζερ CO, το κέρδος γίνεται $6 \times 10^{-4} I \text{ cm}^{-1}$. Από αυτούς τους υπολογισμούς, αναμένεται ότι η σκέδαση spin-flip Raman θα πρέπει να είναι παρατηρήσιμη σε έναν InSb μερικών χιλιοστών μήκους, με δέσμη αντλίας $\sim 10^6 \text{ W/cm}^2$ σε ένα δείγμα στα 10.6 μm ή $\sim 10^4 \text{ W/cm}^2$ στα 5,3 μm . Πρακτικά, η οπτική ανάδραση στη διεπιφάνεια δείγματος αέρα μπορεί να καταλήξει σε ταλάντωση Raman. Οι Patel & Shaw,⁷ χρησιμοποιώντας ένα λέιζερ Q-switched CO₂ 1kW στα 10,6 μm εστιασμένο σε ένα σημείο 10^{-3} cm^2 σε ένα δείγμα $n\text{-InSb}$ 5mm με $N=10^{16}/\text{cm}^3$ για $T=18 \text{ K}$, παρατήρησαν μια έξοδο Stokes 10W. Η έξοδος ήταν ρυθμιζόμενη από 10,9 ως 13,0 μm με το B να κυμαίνεται από 15 ως 100 kOrsted. Το πλάτος γραμμής εξόδου ήταν λιγότερο από $0,03 \text{ cm}^{-1}$. Χρησιμοποιώντας ένα λέιζερ CW CO μονού ρυθμού στα 5,3 μm εστιασμένο στα $\sim 5 \times 10^{-5} \text{ cm}^2$ σε ένα δείγμα $n\text{-InSb}$ 4,8mm με $n=10^{16}/\text{cm}^3$ $T=30 \text{ K}$, οι Brueck & Mooradian³⁶ κατάφεραν να λάβουν ένα κατώφλι ταλάντωσης, από μια ισχύ αντλίας λιγότερο από 50mW, μια απόδοση μετατροπής ισχύος 50% και μια μέγιστη έξοδο Stokes περισσότερο από 1MW. Το πλάτος γραμμής εξόδου μπορεί να είναι αρκετά στενό, ως και 1 kHz. Με δείγματα σε ένα χαμηλό μαγνητικό πεδίο έχει επιτευχθεί απόδοση μετατροπής της τάξης του 80%³⁷. Έχει επίσης παρατηρηθεί ακτινοβολία anti-Stokes και ακτινοβολία Stokes ως και τέταρτης τάξης. Τα αναλυτικά χαρακτηριστικά λειτουργίας των InSb spin-flip Raman λέιζερ, μπορεί να τα βρει κανείς στη βιβλιογραφική αναφορά 38.

Η εξαναγκασμένη σκέδαση spin-flip Raman μπορεί επίσης να συμβεί σε άλλους ημιαγωγούς. Ανάμεσα σε αυτούς που αναφέρονται στη βιβλιογραφία είναι ο CdS αντλούμενος από έγχρωμο λέιζερ, ο InAs αντλούμενος από ένα HF λέιζερ και οι $\text{Pb}_x\text{Sn}_{1-x}\text{Te}$, $\text{Hg}_x\text{Cd}_{1-x}\text{Te}$ και $\text{Hg}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Te}$ αντλούμενοι από λέιζερ CO₂ TEA.



Σχ. 10.18 Θεωρητικές καμπύλες του κέρδους Raman g και οι λόγοι της εξόδου μακρινού υπέρυθρου $P(\omega_3)$ προς την έξοδο Raman $P(\omega_2)$ για τη συγγραμμική ασυνέχεια φάσης και τη μη γραμμική προσαρμογή φάσης. (Βιβλιογρ. Αναφ. 37)

Στην πραγματικότητα, η μετάβαση spin-flip μπορεί να διεγερθεί και από τη διαδικασία Raman και από την διαδικασία άμεσης απορρόφησης ενός φωτονίου, παρόλο που η τελευταία είναι αδύναμη, επειδή είναι μετάβαση μαγνητικού δίπολου. Επομένως, μιλώντας με αυστηρά κριτήρια, η εξαναγκασμένη σκέδαση spin-flip Raman είναι μια ειδική περίπτωση εξαναγκασμένης σκέδασης πολαριτονίου,³⁹ και η θεωρία που αναπτύχθηκε στην προηγούμενη ενότητα θα πρέπει να εφαρμοστεί κι εδώ. Παράλληλα με την έξοδο Stokes αναμένεται μια έξοδος μακρινού υπέρυθρου στην συχνότητα spin-flip μετάβασης. Στην παρούσα περίπτωση, ο υπολογισμός είναι παρόλα αυτά σχετικά απλός, επειδή η απορρόφηση του ελεύθερου φορέα στην ω_3 είναι αρκετά ισχυρή και πάντα έχουμε $(\gamma_s + \gamma_3)^2 \gg \Lambda$ στην (10.38). Κατά συνέπεια, το κέρδος είναι σχεδόν ακριβώς ίσο με το εξαναγκασμένο κέρδος Raman με $\Lambda=0$. Στο Σχ. 10.18 παρουσιάζουμε ένα υπολογισμένο παράδειγμα και για το κέρδος και για το λόγο της εξόδου υπέρυθρου προς

την έξοδο Stokes. Η συγγραμμική προσαρμογή φάσης δεν είναι δυνατή σε αυτό το παράδειγμα, γι' αυτό και η έξοδος μακρινού υπερύθρου στην εμπρόσθια κατεύθυνση είναι σχετικά χαμηλή, αν και γίνεται ισχυρότερη στην περίπτωση μη συγγραμμικής κατεύθυνσης με προσαρμογή φάσης. Στην πραγματικότητα, λόγω του ότι η άμεση διέγερση της spin-flip μετάβασης είναι αδύναμη, η έξοδος μακρινού υπερύθρου μπορεί να υπολογιστεί μέσω της επανάληψης, βρίσκοντας πρώτα την έξοδο Stokes από την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman και έπειτα τη συχνότητα διαφοράς της εξόδου, από την ανάμιξη των συχνοτήτων αντλίας και Stokes.

Η έξοδος του μακρινού υπερύθρου από έναν ταλαντωτή spin-flip Raman δεν έχει ακόμη αναφερθεί, έχει δοκιμαστεί μόνο, η περίπτωση της συγγραμμικής ασυνέχειας φάσης. Η παραγωγή μακρινού υπερύθρου από την οπτική μίξη κυμάτων αντλίας και Stokes σε InSb έχει παρατηρηθεί, παρόλα αυτά, με το μέγιστό του να εμφανίζεται στον spin-flip συντονισμό.⁴⁰ Τα αποτελέσματα συμφωνούν σε μεγάλο βαθμό με τη θεωρία. Αυτή η έξοδος μακρινού υπερύθρου είναι φυσικά, ρυθμιζόμενη για το ίδιο εύρος, όπως αυτό της εξόδου Stokes και αποτελεί μια πιθανή ρυθμιζόμενη σύμφωνη πηγή στο μακρινό υπέρυθρο, η οποία μπορεί να είναι είτε έντονη είτε στενή στο πλάτος γραμμής.

10.9 Παροδική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman

Τα λέιζερ παλμών χρησιμοποιούνται συχνά σε πειράματα εξαναγκασμένης σκέδασης Raman. Πρέπει επομένως, να μελετήσουμε τη χρονοεξάρτηση της εξόδου. Εάν το πλάτος παλμού είναι πολύ μεγαλύτερο από τον χρόνο χαλάρωσης της διέγερσης Raman και τον χρόνο που απαιτείται για το φως να διασχίσει το μέσο, αναμένουμε τότε από φυσικής πλευράς, ότι ο παλμός εξόδου θα ακολουθεί την χρονική διακύμανση του παλμού εισόδου. Αυτό είναι μια ημι-σταθερή κατάσταση. Διαφορετικά, η έξοδος θα πρέπει να παρουσιάζει μεταβατική συμπεριφορά.

Για να περιγράψουμε το παροδικό φαινόμενο, θα πρέπει, σε γενικές γραμμές, να χρησιμοποιήσουμε την προσέγγιση συζευγμένου κύματος της Ενότητας 10.3. Σε αυτήν την προσέγγιση, η δυναμική εξίσωση για την διέγερση υλικού, λαμβάνει σαφώς υπόψη της την πιθανή παροδική απόκριση του μέσου. Ακόμα και στην περίπτωση μεγάλου κέρδους Raman, η προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους των πεδίων παραμένει συνήθως έγκυρη. Για γένεση Stokes στην εμπρόσθια κατεύθυνση κατά μήκος του z , το σετ των συζευγμένων εξισώσεων στην (10.22) που ακολουθούν την παραγωγή στην Ενότητα 3.5, μπορούν να γραφτούν ως ακολούθως

$$\begin{aligned}
\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_1} \frac{\partial}{\partial t}\right) \mathcal{E}_1(z, t) &= i \left(\frac{2\pi\omega_1^2}{c^2 k_1}\right) N M_{f_i}^* \mathcal{E}_2 A \\
\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_2} \frac{\partial}{\partial t}\right) \mathcal{E}_2(z, t) &= i \left(\frac{2\pi\omega_2^2}{c^2 k_2}\right) N M_{f_i} \mathcal{E}_1 A^* \\
\left(\frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{f_i}\right) A^*(z, t) &= \frac{i}{\hbar} M_{f_i}^* (\rho_i - \rho_f) \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2
\end{aligned} \quad (10.40)$$

με $E_i(\omega_i) = \mathcal{E}_i(z, t) \exp(ik_i z - i\omega_i t)$ και $\rho_{fi}(\omega_1 - \omega_2) = A(z, t) \exp[i(k_1 - k_2)z - i(\omega_1 - \omega_2)t]$ στην (10.22). Εδώ, τα v_1 και v_2 είναι οι ταχύτητες ομάδας στις ω_1 και ω_2 , αντίστοιχα και έχουμε αγνοήσει για λόγους απλούστευσης τους κινητήριοις όρους μη συντονισμού στις εξισώσεις του \mathcal{E}_1 και \mathcal{E}_2 .

Ας μελετήσουμε πρώτα την απλούστερη περίπτωση, όπου οι διακυμάνσεις πλάτους των \mathcal{E}_1 και \mathcal{E}_2 είναι επαρκώς αργά, έτσι ώστε το $|\partial A / \partial t|$ να είναι αμελητέο συγκριτικά με το $|\Gamma A|$. Τότε, $A(z, t) = i M_{fi} (\rho_i - \rho_f) \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* / \hbar \Gamma_{fi}$ και αν υποθέσουμε για λόγους απλοποίησης $v_1 = v_2$, και χρησιμοποιήσουμε τον μετασχηματισμό της μεταβλητής $z' = z$ και $t' = t - z/v$, η (10.40) καταλήγει στην

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \mathcal{E}_1}{\partial z'} &= i \left(\frac{2\pi\omega_1^2}{c^2 k_1}\right) \chi_R^{(3)*} |\mathcal{E}_2|^2 \mathcal{E}_1, \\
\frac{\partial \mathcal{E}_2}{\partial z'} &= i \left(\frac{2\pi\omega_2^2}{c^2 k_2}\right) \chi_R^{(3)} |\mathcal{E}_1|^2 \mathcal{E}_2
\end{aligned} \quad (10.41)$$

με $\chi_R^{(3)} = N |M_{fi}|^2 (\rho_i - \rho_f) / i \hbar \Gamma$. Αυτές οι εξισώσεις είναι πανομοιότυπες με την (10.15) με $a = 0$, εκτός από το ότι τα \mathcal{E}_1 και \mathcal{E}_2 είναι τώρα συναρτήσεις των z και $t - z/v$. Με άλλα λόγια, τα \mathcal{E}_1 και \mathcal{E}_2 θα πρέπει να υπακούν τη λύση της σταθερής κατάστασης στη συντεταγμένη του καθυστερημένου χρόνου. Φυσικώς, το αποτέλεσμα αυτό προκύπτει από το γεγονός ότι ένα διαφορικό τμήμα του παλμού λείζερ πάντα αλληλεπιδρά με το ένα και ίδιο διαφορικό τμήμα του παλμού Stokes, μέσω του μέσου. Αυτή είναι η λύση της οιονεί σταθερής κατάστασης.

Για οπισθοδρομική σκέδαση, πρέπει να αντικαταστήσουμε την v_2 στην (10.40) με την $-v_2$, και η (10.41) δεν ισχύει πια. Η λύση της ημι-σταθερής κατάστασης εφαρμόζεται μόνο όταν οι διακυμάνσεις πλάτους των παλμών εισόδου είναι αμελητέες, όσον αφορά το χρόνο που το φως χρειάζεται για να διασχίσει όλο το μήκος του μέσου. Όμως, η γενική λύση για αυτήν την περίπτωση μπορεί ακόμα να βρεθεί για $|v_1| = |v_2|$ όπως ακολούθως⁴¹

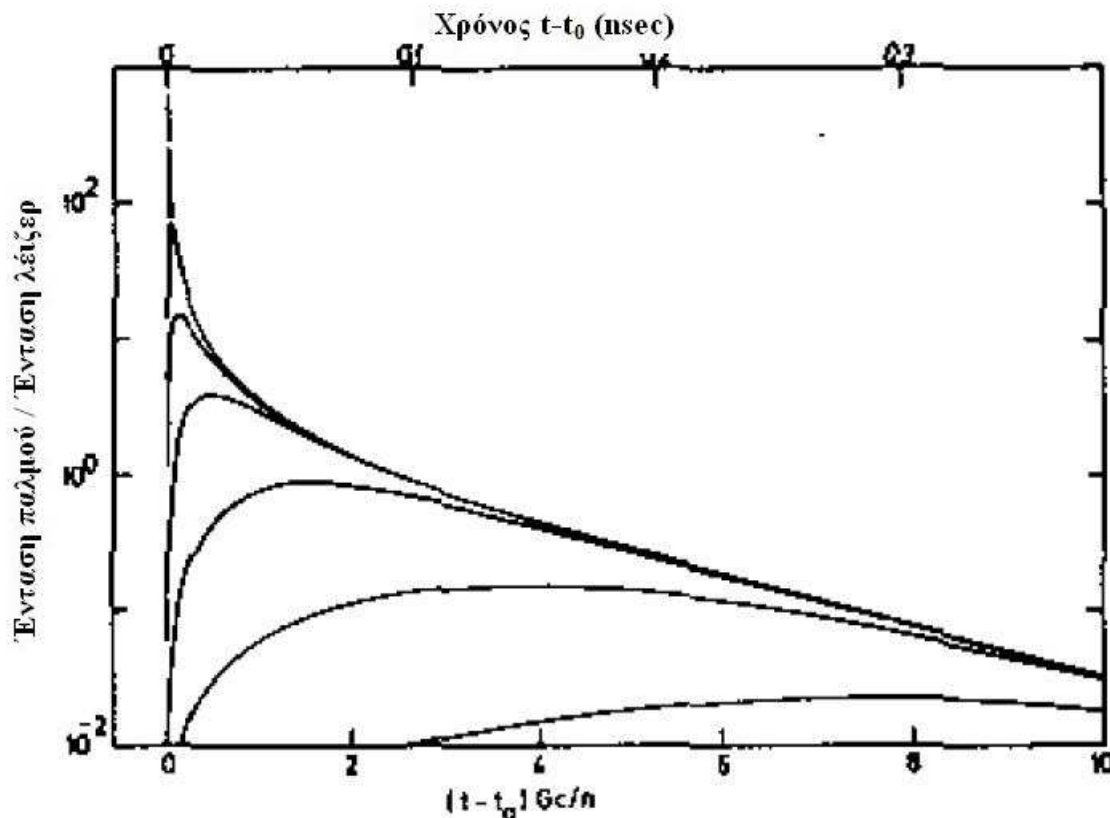
$$\begin{aligned}
|\mathcal{E}_2|^2\left(t + \frac{z}{v}, t - \frac{z}{v}\right) &= \frac{|\mathcal{E}_2|^2(t + z/v, 0)}{F_2(t + z/v) + \exp[-F_1(t - z/v)]}, \\
F_1\left(t - \frac{z}{v}\right) &= \int_0^{t-z/v} g|\mathcal{E}_1(0, y)|^2 dy, \\
F_2\left(t + \frac{z}{v}\right) &= \int_0^{t+z/v} g|\mathcal{E}_2(y, 0)|^2 dy,
\end{aligned}
\tag{10.42}$$

$$g = -\left(\frac{4\pi\omega_2^2}{c^2 k_2}\right) \text{Im}(\chi_R^{(3)}).$$

και

Αυτή, καταλήγει στην λύση της ημι-σταθερής κατάστασης, όταν το λέιζερ και οι παλμοί εισόδου Stokes είναι τόσο μεγάλοι, που οι ποσότητες στα ολοκληρώματα στα F_1 και F_2 μπορούν να προσεγγιστούν από σταθερές. Από την άλλη μεριά, αν και οι δυο παλμοί εισόδου είναι πολύ βραχύτεροι συγκριτικά με τον χρόνο που χρειάζεται το φως για να διασχίσει το μήκος του μέσου, τότε η ενίσχυση οπισθοδρομικής διάδοσης Raman μειώνεται σημαντικά συγκριτικά με την ενίσχυση εμπρόσθιας κατεύθυνσης Raman, λόγω του περιορισμένου εύρους αλληλεπίδρασης του λέιζερ και των παλμών Stokes. Αυτό φαίνεται στην 910.42), όπου $F_1(t - z/v) < g|\mathcal{E}_1(t - z/v)|^2 l$, όπου l είναι το μήκος του μέσου. Μια άλλη ενδιαφέρουσα περίπτωση είναι η ενίσχυση των οπισθοδρομικών παλμών Stokes σε ένα μακρύ μέσο ως προς το σχετικό μήκος του παλμού λέιζερ. Αν η άκρη οδήγησης του λέιζερ είναι αρκετά απότομη, μπορεί να συμβεί όξυνση των παλμών Stokes, καθώς το κυματομέτωπο του οπισθοδρομικού παλμού Stokes συναντά τη νέα αμείωτη εισερχόμενη δέσμη λέιζερ και λαμβάνει πλήρη ενίσχυση, ενώ το καθυστερημένο μέρος του παλμού, όχι.⁴¹ Ένα παράδειγμα φαίνεται στο Σχ. 10.19. Το φαινόμενο της όξυνσης του παλμού μπορεί να παρατηρηθεί σε μερικά υγρά, όταν ο αρχικός παλμός Stokes παράγεται από αυτοεστίαση κοντά στο τέλος του κελιού.

Τώρα θα μελετήσουμε την πιο γενική περίπτωση, όπου $\left|\frac{\partial A}{\partial t}\right|$ δεν είναι πια αμελητέα, συγκριτικά με το $|GA|$. Αυτό συμβαίνει όταν το $\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^*$ παρουσιάζει γρήγορες διακυμάνσεις, έτσι ώστε η διέγερση του υλικού, να μην μπορεί να ανταποκριθεί ακαριαία ή περισσότερο ποσοτικά, όταν το πλάτος παλμού του λέιζερ T_p είναι μικρότερο ή συγκρίσιμο με τον χρόνο αποσυμφωνίας $T_2 = 1/\Gamma_{fi}$ της διέγερσης Raman (ή πιο σωστά, όπως θα δούμε αργότερα⁴², όταν $T_p < G_{Rm} T_2$, όπου G_{Rm} είναι η σταθερή κατάσταση του κέρδους Raman από την (10.8), υποθέτοντας ότι η ένταση του λέιζερ είναι η ένταση κορυφής του παλμού εισόδου και l το μήκος του μέσου).



Σχ. 10.19 Υπολογισμένη κανονικοποιημένη ένταση παλμού Raman ως συνάρτηση του χρόνου για μια αρχική συνθήκη $|E_s| = |E_{s0}|(t - t_0)$ για $t > t_0$. Οι καμπύλες δείχνουν την εξέλιξη του παλμού κατά μήκος των διαστημάτων του $\Delta l = 2,77/G$. Το G είναι το κέρδος Raman και ορίστηκε να είναι $0,7 \text{ cm}^{-1}$ σε CS_2 . Η χαμηλότερη κλίμακα είναι σε αδιάστατες μονάδες· η πάνω κλίμακα περιγράφει τις πειραματικές συνθήκες. (Βιβλιογρ. Αναφ. 39).

Παρόλο που οι παλμοί Q-switched μπορεί να είναι αρκετά σύντομοι για να μελετηθεί η παροδική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman στα αέρια, απαιτούνται παλμοί διάρκειας picoseconds για τα υγρά, αφού το T_2 είναι συνήθως της τάξης των picoseconds. Με έναν παλμό αντλίας διάρκειας picoseconds, η οπισθοδρομική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman στα αέρια είναι μετά βίας ανιχνεύσιμη, εξαιτίας του πολύ περιορισμένου μήκους αλληλεπίδρασης μεταξύ οπισθοδρομικής Raman και εισερχόμενου παλμού αντλίας. Εδώ, πραγματευόμαστε μόνο την σκέδαση Raman εμπρόσθιας κατεύθυνσης.

Ας μελετήσουμε την περίπτωση όπου και η μείωση της ισχύος αντλίας και η προκαλούμενη αλλαγή στον πληθυσμό είναι αμελητέες. Τότε (υποθέτοντας ότι $v_1 = v_2$), η (10.40) καταλήγει στη μορφή

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v} \frac{\partial}{\partial t} \right) \mathcal{E}_2 &= i\eta_1 \mathcal{E}_1 \left(t - \frac{z}{v} \right) A^*, \\ \left(\frac{\partial}{\partial t} + \Gamma \right) A^* &= -i\eta_2 \mathcal{E}_1^* \left(t - \frac{z}{v} \right) \mathcal{E}_2 \end{aligned} \quad (10.43), \text{ όπου}$$

$$\eta_1 = \left(\frac{2\pi\omega_2^2}{c^2 k_2} \right) N M_{fi},$$

$$\eta_2 = \frac{M_{fi}^* (\rho_i - \rho_f)}{\hbar},$$

και το $\mathcal{E}_1(t - z/v)$ δίνεται από την αρχική συνθήκη. Η λύση της (10.43) περιγράφει την παροδική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman. Η παραγωγή του είναι κάπως χρονοβόρα και ανιαρή. Θα πρέπει επομένως, μόνο να σκιαγραφήσουμε το αποτέλεσμα εδώ και να παραπέμψουμε τους αναγνώστες στην βιβλιογραφική αναφορά 42 για περισσότερες λεπτομέρειες.

Με $t' = t - z/v$ και $z' = z$, η (10.43) μπορεί να μετασχηματιστεί σε μερική διαφορική εξίσωση δευτέρας τάξης

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial t' \partial z'} - \eta_1 \eta_2 |\mathcal{E}_1(t')|^2 \right] U = 0 \quad (10.44)$$

όπου $U = F \exp(\Gamma t')$ και το F αντιπροσωπεύει είτε για το \mathcal{E}_2 είτε για το A^* . Η εξίσωση μπορεί να απλοποιηθεί περαιτέρω σε

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial \tau \partial z'} - \eta_1 \eta_2 \right) U = 0 \quad (10.45)$$

ορίζοντας $\tau = \int_{-\infty}^{t'} |\mathcal{E}_1(t'')|^2 dt''$. Η εξίσωση (10.45) είναι στην κανονική μορφή μιας υπερβολικής εξίσωσης, η οποία μπορεί να λυθεί με αυθαίρετες αρχικές συνθήκες. Στην παρούσα περίπτωση, η λύση παίρνει τη μορφή

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_2(z', t') &= \mathcal{E}_2(0, t') + (\eta_1 \eta_2 z)^{1/2} \mathcal{E}_1(t') \\ &\times \int_{-\infty}^{t'} e^{-\Gamma(t-t'')} \left\{ \mathcal{E}_1^*(t'') \mathcal{E}_2(0, t'') [\tau(t') - \tau(t'')]^{-1/2} \right. \\ &\quad \left. \times I_1 \left(2[\eta_1 \eta_2 (\tau(t') - \tau(t'')) z']^{1/2} \right) \right\} dt'' \end{aligned}$$

$$A^*(z', t') = i\eta_1 \int_{-\infty}^{t'} e^{-\Gamma(t'-t'')} \left\{ \mathcal{E}_1^*(t'') \mathcal{E}_2(0, t'') \right. \\ \left. \times I_0 \left(2 \left[\eta_1 \eta_2 (\tau(t') - \tau(t'')) z' \right]^{1/2} \right) \right\} dt'' \quad (10.46)$$

όπου οι συνθήκες εισόδου είναι $A^*(z') = 0$ στο $t' \rightarrow -\infty$ και $\mathcal{E}_2(z', t') = \mathcal{E}_2(0, t')$ στο $z = z' = 0$ και I είναι η $i^{\text{η}}$ τάξη συνάρτησης Bessel στο φανταστικό όρισμα. Η λύση στην (10.46) έχει τα ακόλουθα χαρακτηριστικά:

1. Αφού $I_0(x) \approx 1$ και $I_1(x) = x$ για $x \ll 1$ και $I_1(x) = (2\pi x)^{-1/2} \exp(x)$ για $x \gg 1$, το πλάτος Stokes \mathcal{E}_2 αυξάνει πρώτα γραμμικά με z και έπειτα στο όριο της μεγάλης ενίσχυσης, αυξάνει εκθετικά με τη μορφή

$$\mathcal{E}_2(z', t') \propto \mathcal{E}_1(t') \int_{-\infty}^{t'} \mathcal{E}_1^*(t'') \mathcal{E}_2(0, t'') [\tau(t') - \tau(t'')]^{-1} \\ \times \exp \left\{ -\Gamma(t' - t'') + 2 \left[\eta_1 \eta_2 (\tau(t') - \tau(t'')) z' \right]^{1/2} \right\} dt'' \quad (10.47)$$

2. Αν ο παλμός αντλίας είναι επαρκώς μακρύς, τότε το \mathcal{E}_2 παίρνει ένα εκθετικό κέρδος μιας ημι-σταθερής κατάστασης. Αυτό μπορεί να φανεί από την (10.47) όταν $(t - t_0) > G_{RZ}T_2$ για τετραγωνικό παλμό αντλίας, ξεκινώντας στο t_0 . Για τον λόγο αυτό, το $T_p < G_{Rm}T_2$ μπορεί να χρησιμοποιηθεί ως συνθήκη για την παρατήρηση της παροδικής εξαναγκασμένης σκέδασης Raman, όπως αναφέρθηκε νωρίτερα.

3. Αν $T_p < T_2$, ο παράγοντας $\exp[-\Gamma(t - t'')]]$ μπορεί να προσεγγιστεί κατά 1 στις ποσότητες που εμπεριέχονται στο ολοκλήρωμα στις (10.46) και (10.47). Το πλάτος Stokes αυξάνεται γρήγορα μόνο προς το μεσαίο μέρος του παλμού της αντλίας. Μετά, μειώνεται, ακολουθώντας τον παλμό της αντλίας προς την ουρά. Ο παλμός Stokes είναι πάντα στενότερος από τον παλμό της αντλίας. Η διέγερση υλικού A συμπεριφέρεται με παρόμοιο τρόπο, αλλά έχει μια εκθετική πτώση ουράς $\exp(-\Gamma t)$, αφού σβήσει ο παλμός αντλίας ή πέσει σχεδόν στο μηδέν.

4. Στο όριο της μεγάλης ενίσχυσης, η (10.47) δίνει

$$(\mathcal{E}_2)_{\max} \propto \exp \left(\frac{G_T z}{2} \right) \quad (10.48), \text{ όπου } G_T \text{ είναι το παροδικό κέρδος που δίνεται από την}$$

$$G_T = 4 \left[\eta_1 \eta_2 \langle |\mathcal{E}_1|^2 \rangle \frac{T_p}{z} \right]^{1/2},$$

$$\langle |\mathcal{E}_1|^2 \rangle T_p = \int_{-\infty}^{\infty} |\mathcal{E}_1(t)|^2 dt. \quad (10.49)$$

Το παροδικό κέρδος εδώ είναι ανεξάρτητο από το σχήμα παλμού του λείζερ. Για έναν παλμό σχήματος $\mathcal{E}_1(t') = \mathcal{E}_{1m} \exp(-|t'/T|^n)$, η κορυφή του παλμού Stokes καθυστερείται από την κορυφή του παλμού αντλίας για χρόνο $t_D = T(\log G_{Rmz})^{1/n}$.

Αριθμητικοί υπολογισμοί της παροδικής εξαναγκασμένης σκέδασης Raman έχουν διεξαχθεί από τους Carmen κ.α.⁴² για διάφορα σχήματα αντλιών. Τα αποτελέσματα επιβεβαιώνουν τα ιδιαίτερα χαρακτηριστικά που παρουσιάστηκαν παραπάνω.

Η παροδική συμπεριφορά της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman παρατηρήθηκε για πρώτη φορά σε αέρια από τους Hagenlocker κ.α.⁴³ Αργότερα, με παλμούς picoseconds, παρατηρήθηκε επίσης και σε υγρά. Ποσοτικές μετρήσεις έχουν δείξει μια καλή συμφωνία με τις θεωρητικές προβλέψεις.⁴⁴ Πάντως, ένα καλύτερο πείραμα που θα μπορούσε να διεξαχθεί, είναι να μετρηθεί η χρονική διακύμανση της ενίσχυσης Stokes σε ένα κελί ενισχυτή (δες Ενότητα 10.6Γ). Το παροδικό κέρδος G_T είναι διαφορετικό από το κέρδος σταθερής κατάστασης G_R , στο ότι το πρώτο εξ αυτών, εξαρτάται μόνο από τη διατομή Raman ($\propto \eta_1 \eta_2$), ενώ το δεύτερο είναι επίσης αντιστρόφως ανάλογο προς το ήμισυ πλάτους Γ . Επομένως, είναι πιθανό να παρατηρηθούν κάποιοι ρυθμοί Raman στην παροδική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, οι οποίοι καταπνίγονται στη σταθερή κατάσταση. Στην πραγματικότητα, μπορούν να εμφανιστούν περισσότεροι από έναν ρυθμοί, ταυτόχρονα, στην παροδική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman.⁴⁵

10.10 Μετρήσεις των χρόνων χαλάρωσης διεγέρσεων

Η χαλάρωση μιας υλικής διέγερσης μπορεί να μετρηθεί άμεσα, μετρώντας την πτώση της διέγερσης. Σε αναλογία με τις περιπτώσεις μαγνητικού συντονισμού, χρησιμοποιούνται συνήθως δυο χρόνοι χαλάρωσης, για να χαρακτηριστεί η διαδικασία χαλάρωσης: ο χρόνος διαμήκους χαλάρωσης T_1 , ο οποίος διέπει την πτώση της προκαλούμενης αλλαγής πληθυσμού στην κατάσταση διέγερσης, και ο χρόνος εγκάρσιας χαλάρωσης T_2 , ο οποίος είναι ο χρόνος αποσυμφωνίας του κύματος διέγερσης (δες Ενότητα 2.1). Στη συμπτυκνωμένη ύλη, τα T_1 και T_2 είναι συνήθως της τάξης picoseconds και επομένως, απαιτούνται παλμοί picoseconds για να διεγείρουν και να ανιχνεύσουν την υλική διέγερση

στις μετρήσεις των T_1 και T_2 . Μελετάμε εδώ μόνο τις επιτρεπόμενες διεγέρσεις Raman, με την διέγερση και την ανίχνευση να επιτυγχάνονται μέσω των μεταβάσεων Raman. Σημειώνουμε επίσης, ότι μόνο στο όριο της ομοιογενούς διεύρυνσης είναι το T_2 ίσο με το αντίστροφο ήμισυ πλάτους, αλλά ακόμη και τότε, το T_2 μπορεί να είναι πολύ διαφορετικό από το T_1 .

Στην προηγούμενη ενότητα, είδαμε ότι η παροδική εξαναγκασμένη σκέδαση Raman αποδίδει ένα κύμα υλικής διέγερσης A , το οποίο φθίνει εκθετικά, καθώς $\exp(-t/T_2)$, ακόμα και αφότου ο παλμός αντλίας σταματήσει. Αυτό το κύμα υλικής διέγερσης στην $(\omega_1 - \omega_2) \cong \omega_{\text{ex}}$ μπορεί να ανιχνευτεί, αναμιγνύοντας το A με έναν παλμό ανίχνευσης E_3 στο k_3 και ω_3 , για να παράγει ένα σύμφωνο anti-Stokes κύμα $E_a = \mathcal{E}_a \exp(i\mathbf{k}_a \cdot \mathbf{r} - i\omega_a t)$ με $k_a = k_2 + k_3$ και $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$. Η εξίσωση που διέπει το πρόσθιο πλάτος του παλμού anti-Stokes είναι

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_a} \frac{\partial}{\partial t} \right) \mathcal{E}_a(z, t) = i \left(\frac{2\pi\omega_a^2}{c^2 k_2} \right) N M_{fi, a}^* \mathcal{E}_3(z, t) A(z, t) \quad (10.50)$$

από το οποίο βρίσκουμε, με τη βοήθεια των μεταβλητών μετασχηματισμού $z' = z$ και $t' = t$

$$\mathcal{E}_a(t, z) \propto \int_0^t \mathcal{E}_3(z', t') A(z', t') dz'.$$

– z/v_a , τη λύση

Το ολοκλήρωμα του χρόνου για το σύμφωνο σήμα anti-Stokes, δίνεται επομένως, από τη

$$\begin{aligned} S_{\text{coh}} &\propto \int_{-\infty}^{\infty} |\mathcal{E}_a(t, z)|^2 dt \\ &\propto \int_{-\infty}^{\infty} \left| \int_0^t \mathcal{E}_3(z', t') A(z', t') dz' \right|^2 dt. \end{aligned} \quad (10.51)$$

Το σήμα είναι, φυσικά, μια συνάρτηση της χρονικής καθυστέρησης t_D μεταξύ των παλμών διέγερσης και ανίχνευσης. Εάν $t_D \gg T_2 \cong$ πλάτος παλμού T_p , τότε είναι ξεκάθαρο από την (10.51) ότι $S_{\text{coh}} \propto \exp(-2t_D/T_2)$. Επομένως, το T_2 μπορεί εύκολα να εξαχθεί από το αποτέλεσμα της S_{coh} ως προς t_D .

Ο χρόνος διαμήκους χαλάρωσης T_1 περιγράφει την πτώση της προκαλούμενης αλλαγής του πληθυσμού $\Delta\rho$, όπως διέπεται από την (10.23) ή πιο ξεκάθαρα,

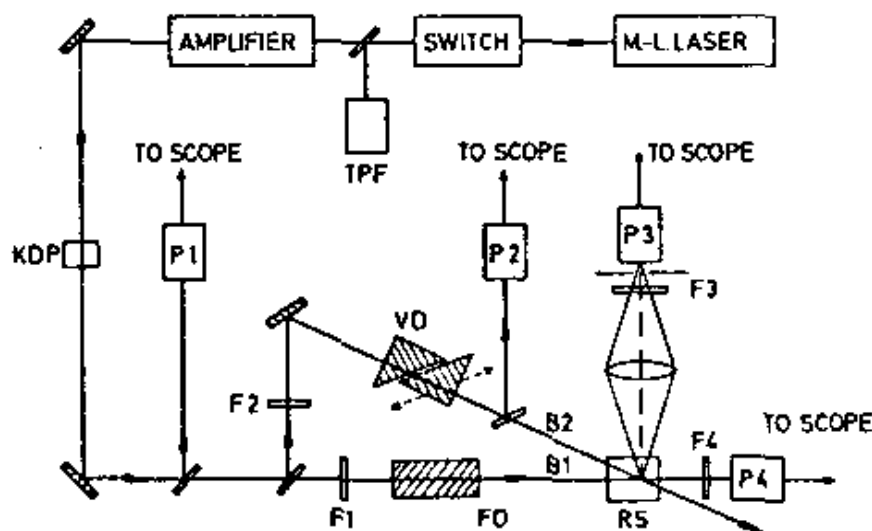
$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_1} \right) \Delta\rho \cong \frac{iN}{2\hbar} [M_{fi} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* A^* - M_{fi}^* \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2 A] (\rho_i^0 - \rho_f^0) \quad (10.52)$$

με $\Delta\rho = \frac{1}{2}(\rho_i - \rho_f - \rho_i^0 + \rho_f^0) \ll (\rho_i^0 - \rho_f^0)$. Η εξίσωση δείχνει ότι αφού ο παλμός αντλίας σταματήσει, το $\Delta\rho$ θα πρέπει να φθίνει εκθετικά, καθώς $\exp(-t/T_1)$. Η ασύμφωνη (αυθόρμητη) σκέδαση anti-Stokes είναι ευθέως ανάλογη προς το $\Delta\rho$ και επομένως, μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να ανίχνευση την πτώση του $\Delta\rho$. Με έναν παλμό ανίχνευσης E_2 στην ω_2 , το σήμα από την χρονική ολοκλήρωση στην $\omega_3 = \omega_2 + \omega_{ex}$ δίνεται από την

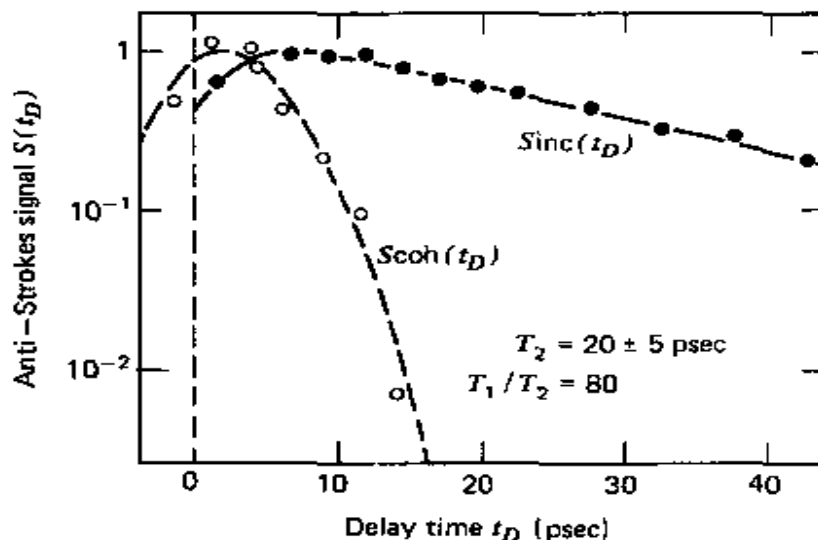
$$S_{inc} \propto \int |\mathcal{E}_2(z, t)|^2 \Delta\rho(z, t) dz dt, \quad (10.53)$$

η οποία είναι συνάρτηση της χρονικής καθυστέρησης t_D μεταξύ των παλμών διέγερσης και ανίχνευσης. Όταν $t_D \gg T_1 \cong T_p$, αυτό το σήμα είναι ανάλογο προς το $\exp(-t_D/T_1)$, έτσι ώστε το T_1 να μπορεί να εξαχθεί από το S_{inc} προς το t_D .

Η μέθοδος πρωτοχρησιμοποιήθηκε από τους DeMartini & Ducuing⁴⁶ για να μετρήσει το T_1 της δονητικής διέγερσης 4155 cm^{-1} του H_2 σε αέρια κατάσταση και σε ατμοσφαιρική πίεση $0,03 \mu T_1 \cong 30 \mu m$, έτσι ώστε οι παλμοί του Q-switched λέιζερ να είναι αρκετά βραχείς για να διεξαχθούν οι μετρήσεις.



Σχ. 10.20 Σχηματική αναπαράσταση του πειραματικού συστήματος για τον χρόνο ζωής φωτονίου. Η δέσμη αντλίας B1 με $\lambda = 1,06 \mu m$ και δέσμη ανίχνευσης B2 με $\lambda = 0,53 \mu m$, αλληλεπιδρούν στο δείγμα Raman RS. Γράβινη ράβδος για σταθερή οπτική καθυστέρηση, FD, γυάλινα πρίσματα για μεταβλητή καθυστέρηση, VD, φίλτρο F, φωτοανιχνευτής, P, σύστημα φθορισμού δυο φωτονίων, TPF. [A.Laubereau, D von der Linde, W.Kaiser, Phys. Rev. Let. 28,1162 (1972)].



Σχ. 10.21 Μετρημένη ασύμφωνη σκέδαση $S_{inc}(t_D)/S_{inc-max}$ (μαύροι κύκλοι) και σύμφωνη σκέδαση $S_{coh}(t_D)/S_{coh-max}$ (άσπροι κύκλοι) ως προς τον χρόνο καθυστέρησης t_D , για αιθυλική αλκοόλη. Οι συνεχόμενες και διακεκομμένες καμπύλες έχουν υπολογιστεί. [A.Laubereau, D von der Linde, W.Kaiser, *Phys. Rev. Let.* 28,1162 (1972)].

Στη συμπυκνωμένη ύλη, όμως, τα T_1 και T_2 είναι στο εύρος picosecond και πρέπει να χρησιμοποιηθούν παλμοί διάρκειας picoseconds από λέιζερ εγκλειδωσης ρυθμών, όπως πρωτοπόρησαν σε αυτό οι Alfano, Shapiro, Kaiser & συνεργάτες.⁹ Το Σχ. 10.10 αποτελεί μια τυπική πειραματική διάταξη. Χρησιμοποιείται ο παλμός από ένα Nd λέιζερ εγκλειδωσης ρυθμού, για να προκληθεί η υλική διέγερση από εξαναγκασμένη σκέδαση Raman και ο δεύτερος αρμονικός του παλμού εγκλειδωσης ρυθμού χρησιμοποιείται μετά από προσαρμόσιμη χρονική καθυστέρηση, για να ανιχνεύσει την διέγερση. Τα αποτελέσματα της αιθυλικής αλκοόλης του Σχ. 10.21 αποτελούν ένα παράδειγμα. Οι εκθετικές 'ουρές' των καμπυλών των $S_{coh}(t_D)$ και $S_{inc}(t_D)$ στο σχήμα, αποφέρουν άμεσα τα T_1 και T_2 . Η τεχνική μπορεί να επεκταθεί στη μελέτη φθινουσών διαδρομών μιας διέγερσης και στις δυναμικές αποσυμφωνίας μιας διέγερσης σε μεγάλα μόρια ή συμπυκνωμένη ύλη.⁴⁷

Να σημειωθεί όμως, ότι αυτή η ανάλυση για τις μετρήσεις του χρόνου αποσυμφωνίας, εφαρμόζεται μόνο σε ομοιογενώς διευρυμένη μετάβαση Raman.⁴⁸ Στην περίπτωση ανομοιογενούς διεύρυνσης, η υλική διέγερση έχει μια κατανομή συχνοτήτων συντονισμού ω_{ex} και τότε το $A(z,t)$ στην (10.50) και (10.51) θα πρέπει να αντικατασταθεί από το ολοκλήρωμα των κυμάτων διέγερσης ως προς την κατανομή του ω_{ex} . Το T_p θα υπερισχύσει της πτώσης του S_{coh} και τότε καμιά πληροφορία για το T_2 δε θα δύναται να εξαχθεί. Είναι, όμως, πιθανό, όταν ο παλμός αντλίας είναι τόσο έντονος που να προκαλεί

σύμφωνο κορεσμό στη μετάβαση Raman, η τιμή του T_2 να μπορεί ακόμη και τότε να εξαχθεί, από την πτώση του S_{coh} .⁴⁹ Περισσότερες λεπτομέρειες σχετικά με θεωρίες και πειράματα χαλάρωσης των δονήσεων, που να μελετήθηκαν μέσω υπερβραχέων παλμών, μπορούν να βρεθούν στις βιβλιογραφικές αναφορές 47 και 48.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. E.J. Woodbury & W.K. Ng, *Proc. IRE* 50, 2347 (1962).
2. E.J. Woodbury & G.M. Eckhardt, U.S. Patent No. 3,371,265 (27 February 1968).
3. R.W. Hellwarth, *Phys. Rev.* 130, 1850 (1963); *Appl. Opt.* 2, 847 (1963).
4. E. Garmire, E. Pandarese & C.H. Townes, *Phys. Rev. Lett.* 11, 160 (1963).
5. N. Bloembergen & Y.R. Shen, *Phys. Rev. Lett.* 12, 504 (1964); Y.R. Shen & N. Bloembergen, *Phys. Rev.* 137, A1786 (1965).
6. S.K. Kurtz & J.A. Giordmaine, *Phys. Rev. Lett.* 22, 192 (1969); J. Gelbwachs, R.H. Pantell, H.E. Pthoff & J.M. Yarborough, *Appl. Phys. Lett.* 14, 258 (1969).
7. C.K.N. Patel & E.D. Shaw, *Phys. Rev. Lett.* 24, 451 (1970); *Phys. Rev.* B3, 1279 (1971).
8. A. Owyong, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-14, 192 (1978); in H. Walther & K.W. Rothe, eds., *Laser Spectroscopy*, vol. IV (Springer-Verlag, Berlin, 1979), p. 175; in W.O.N. Guimaraes, C.T. Lin & A. Mooradian, eds., *Lasers and Applications* (Springer-Verlag, Berlin, 1981), p. 67.
9. D. von der Linde, A. Laubereau & W. Kaiser, *Phys. Rev. Lett.* 26, 954 (1971); R.R. Alfano & S.L. Shapiro, *Phys. Rev. Lett.* 26, 1247 (1971).
10. Δες, για παράδειγμα, W. Heitler, *Quantum Theory of Radiation*, 3rd ed. (Cambridge University Press, Cambridge, 1954), p. 192.
11. R. Glauber, *Phys. Rev.* 130, 2529 (1963); 131, 2766 (1963).
12. R.W. Terhune, *Solid State Design* 4, 38 (1963); R.Y. Chiao & B.P. Stoicheff, *Phys. Rev. Lett.* 12, 290 (1964); H.J. Zeiger, P.E. Tannenwald, S. Kem & R. Burendeem, *Phys. Rev. Lett.* 11, 419 (1963).
13. D. von der Linde, M. Maier & W. Kaiser, *Phys. Rev.* 178, 11 (1969).
14. G. Haidacher & M. Maier, VII Int. Quant. Electron. Conf., San Francisco (1974), post-deadline paper Q7.
15. N. Bloembergen, G. Bret, P. Lallemand, A. Pine & P. Simova, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-3, 197 (1967); P. Lallemand, P. Simova & G. Bret, *Phys. Rev. Lett.* 17, 1239 (1966).

16. E. Garmire, *Phys. Lett.* 17, 251 (1965).
17. N. Bloembergen & Y.R. Shen, *Phys. Rev. Lett.* 13, 720 (1964); R.L. Carman, F. Shimizu, C.S. Wang & N. Bloembergen, *Phys. Rev. A*2, 60 (1970); S.A. Akhmanov, Yu. E. D'yakov & L.I. Pavlov, *Sov. Phys. JETP* 39, 249 (1974); M.G. Raymer, J. Mostowski & J.L. Carlsten, *Phys. Rev. A*19, 2304 (1979); I.A. Walmsley & M.G. Raymer, *Phys. Rev. Lett.* 50, 962 (1983).
18. W.J. Jones & B.P. Stoicheff, *Phys. Rev. Lett.* 13, 657 (1964).
19. P.P. Sorokin, N.S. Shiren, J.R. Lankard, E.C. Hammond & T.G. Kazyaka, *Appl. Phys. Lett.* 22, 342 (1973); M. Rokni & S. Yatsiv, *Phys. Lett.* 24A, 277 (1967); J.J. Wynne & P.P. Sorokin, in Y.R. Shen, ed. *Nonlinear Infrared Generation* (Springer-Verlag, Berlin, 1977), p. 159.
20. D.C. Hanna, M.A. Yaratic & D. Cotter, *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules* (Springer-Verlag, Berlin, 1979), Chapter 5, και οι αναφορές που βρίσκονται σε αυτό.
21. D.S. Bethune, J.R. Lankard & P.P. Sorokin, *Opt. Lett.* 4, 103 (1980).
22. R. Frey & F. Pradere, *Opt. Comm.* 12, 98 (1974); V. Wilkie & W. Schmidt. *Appl. Phys.* 16, 151 (1978); T.R. Loree, R.C. Sze, D.L. Barker & P.B. Scott, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-15, 337 (1979).
23. R. Frey & F. Pradere, *Opt. Lett.* 5, 374 (1980).
24. J.J. Tice & C. Witting, *Appl. Phys. Lett.* 30, 420 (1977).
25. R.L. Byer, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-12, 732 (1976); R.L. Byer & W.R. Trunta, *Opt. Lett.* 3, 144 (1978); P. Rabinowitz, A. Stein, R. Brickman & A. Kaldor, *Appl. Phys. Lett.* 35, 739 (1979).
26. R. Frey, F. Pradere, J. Lukasik & J. Ducuing, *Opt. Comm.* 22, 355 (1977); R. Frey, F. Pradere & J. Ducuing, *Opt. Comm.* 23, 65 (1977); A. DeMartino, R. Frey & F. Pradere, *Opt. Comm.* 27, 262 (1978).
27. H.C. White & D. Henderson, *Phys. Rev. A*25, 1226 (1982); J.C. White, in H. Weber & W. Luthy, eds., *Laser Spectroscopy*, VI (Springer-Verlag, Berlin, 1983).
28. S.E. Harris, *Appl. Phys. Lett.* 31, 498 (1977); L.J. Zych, L. Lugasik, J.F. Young & S.E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* 40, 1493 (1978); S.E. Harris, R.W. Falcone, M. Gross, R. Normandin, K.D. Pedroti, J.E. Rothenberg, J.C. Wang, J.R. Willison & J.F. Young, in A.R. M. McKellar, T. Oka & B.P. Stoicheff, eds., *Laser Spectroscopy*, V, (Springer-Verlag, Berlin, 1983).
29. B.F. Levine, C.V. Shank & J.P. Heritage, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-15, 1418

- (1979); J.P. Heritage & D.L. Allara, *Chem. Phys. Lett.* 74, 507 (1980); B.F. Levine, C.G. Bethea, A.R. Tretola & M. Korngor, *Appl. Phys. Lett.* 37, 595 (1980).
30. K. Huang, *Proc. Roy. Soc. (London)* A208, 353 (1951); M. Born & K. Huang, *Dynamic Theory of Crystal Lattices* (Oxford University Press, Oxford, 1954), Chapter II; J.J. Hopfield, *Phys. Rev.* 112, 1555 (1958).
31. R. Loudon, *Proc. Phys. Soc.* 82, 393 (1963); Y.R. Shen, *Phys. Rev.* 138, A1741 (1965)
32. C.H. Henry & C.G.B. Garrett, *Phys. Rev.* 171, 1058 (1968); S.S. Sussman, Microwave Lab Report No. 1851, Stanford University (1970).
33. J.M. Yarborough, S.S. Sussman, H.E. Putboff, R.H. Pantell & B.C. Johnson, *Appl. Phys. Lett.* 15, 102 (1969).
34. P.A. Wolff, *Phys. Rev. Lett.* 16, 225 (1966); Y. Yafet, *Phys. Rev.* 152, 858 (1966).
35. S.R.J. Brueck & A. Mooradian, *Phys. Rev. Lett.* 28, 1458 (1972).
36. A. Mooradian, S.R. J. Brueck & F.A. Blum, *Appl. Phys. Lett.* 17, 481 (1970); S.R.J. Brueck & A. Mooradian, *Appl. Phys. Lett.* 18, 229 (1971).
38. H. Pascher, G. Appold, R. Ebert & H.G. Hafele, *Appl. Phys.* 15, 53 (1978); B. Walker, G.W. Chantry, D.G. Moss & C.C. Bradley, *J. Phys.* D9, 1501 (1976); M.J. Colles & C.R. Pidgeon, *Rep. Prog. Phys.* 38, 329 (1975); S.D. Smith, R.B. Dennis & R.G. Harrison, *Prog. Quant. Electron.* 5, 205 (1977).
39. Y.R. Shen, *Appl. Phys. Lett.* 26, 516 (1973).
40. V.T. Nguyen & T.J. Bridges, *Phys. Rev. Lett.* 29, 359 (1972); *Appl. Phys. Lett.* 23, 107 (1973).
41. M. Maier, W. Kaiser & J.A. Giordmaine, *Phys. Rev.* 177, 580 (1969).
42. R.L. Carmen, F. Shimizu, C.S. Wang & N. Bloembergen, *Phys. Rev.* A2, 60 (1970); C.S. Wang, in H. Rabin & C.L. Tang, eds., *Quantum Electronics*, vol. I (Academic Press, New York, 1975), p. 447.
43. E.E. Hagenlocker, R.W. Minck & W. G. Rado, *Phys. Rev.* 154, 226 (1967).
44. R.L. Carman & M.E. Mack, *Phys. Rev.* A5, 341 (1972).
45. R.L. Carman, M.E. Mack, F. Shimizu & N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.* 23, 1327 (1969); M.C. Mack, R.L. Carman, R. Reintjes & N. Bloembergen, *Appl. Phys. Lett.* 16, 209 (1970).
46. F. DeMartini & J. Ducuing, *Phys. Rev. Lett.* 17, 117 (1966).
47. A. Laubereau & W. Kaiser, *Rev. Mod. Phys.* 50, 607 (1978).
48. W. Zinth, *Appl. Phys.* B26, 213 (1981).
49. S.M. George & C.B. Harris, *Phys. Rev.* A28, 863 (1983).

Βιβλιογραφία

Bloembergen, N., *Am. J. Phys.* 35, 989 (1967).

Shen, Y.R., in M. Cardon, ed., *Light Scattering in Solids* (Springer-Verlag, Berlin, 1975),
p. 275

Kaiser, W., & M. Maier, in F.T. Arecchi & E.O. Schulz-Dubuois, eds., *Laser Handbook*
(North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 1077.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 11 – Εξαναγκασμένη σκέδαση φωτός

Στο Κεφάλαιο 10, η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman αντιμετωπίστηκε ως αποτέλεσμα της παραμετρικής αλληλεπίδρασης μεταξύ φωτός και υλικής διέγερσης. Δόθηκαν παραδείγματα, στα οποία η διέγερση του υλικού έγινε είτε μέσω δόνησης είτε ηλεκτρονικά. Η εμπλεκόμενη μετατόπιση Raman θα μπορούσε, στη θεωρία, να κυμαίνεται από μηδέν, έως μια συχνότητα τόσο μεγάλη, όσο η συχνότητα του λέιζερ αντλίας. Μερικές υλικές διεγέρσεις έχουν πολύ χαμηλές συχνότητες, της τάξης $\approx 1\text{cm}^{-1}$ και συνήθως, σχετίζονται με ατομική ή μοριακή κίνηση. Η σκέδαση φωτός από τέτοιες υλικές διεγέρσεις, καλείται συνήθως με διαφορετική ονομασία από τη ‘σκέδαση Raman’. Για παράδειγμα, η σκέδαση Brillouin εμπεριέχει κυματική διέγερση, η σκέδαση Rayleigh σχετίζεται με κυματική διέγερση εντροπίας και η σκέδαση πτέρυγας Rayleigh σχετίζεται με μοριακού προσανατολισμού διέγερση.¹ Με επαρκώς μεγάλη ένταση λέιζερ αντλίας, όλες αυτές οι αυθόρμητες διαδικασίες σκέδασης φωτός, θα μπορούσαν να γίνουν εξαναγκασμένες. Μερικές από αυτές, αναλύονται σύντομα σε αυτό το κεφάλαιο.

11.1 Εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin

Η εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin προκύπτει από παραμετρική σύζευξη μεταξύ κυμάτων φωτός και ακουστικών κυμάτων. Η θεωρία τον γενικό φορμαλισμό που δίνεται στην Ενότητα 10.3 για την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, με το κύμα διέγερσης υλικού εδώ, να αναφέρεται στο ακουστικό κύμα. Μελετάμε εδώ, μόνο τη σκέδαση Brillouin σε υγρό. Οι συζευγμένες κυματικές εξισώσεις, παρόμοιες με την (10.22), είναι

$$\left[\nabla \times (\nabla \times) + \frac{\epsilon_1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathbf{E}_1 = \frac{4\pi\omega_1^2}{c^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega_1) \quad \text{και} \quad \left[\nabla \times (\nabla \times) + \frac{\epsilon_2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \mathbf{E}_2 = \frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega_2)$$

(11.1), μαζί με την οδηγούμενη εξίσωση ακουστικού κύματος

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial t^2} - 2\Gamma_B \frac{\partial}{\partial t} - v^2 \nabla^2 \right] \Delta \rho = -\nabla \cdot \mathbf{f}. \quad (11.2)$$

Χρησιμοποιούμε την διακύμανση πυκνότητας $\Delta \rho$ για να περιγράψουμε το ακουστικό κύμα, όπου v είναι η ακουστική ταχύτητα και Γ_B είναι ο συντελεστής ακουστικής απόσβεσης ή το ήμισυ πλάτος της γραμμής Brillouin στην αυθόρμητη σκέδαση. Η

κινητήρια δύναμη f και οι μη γραμμικές πολώσεις P^{NL} προκύπτουν από τη μη γραμμική σύζευξη των τριών κυμάτων και μπορούμε να τη λάβουμε ως ακολούθως:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{NL}(\omega_1) &= \frac{\partial}{\partial \rho} \left[\frac{\epsilon \mathbf{E}_2}{4\pi} \right] \Delta \rho = \frac{1}{4\pi} \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \mathbf{E}_2 \Delta \rho; \\ \mathbf{P}^{NL}(\omega_2) &= \frac{1}{4\pi} \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \mathbf{E}_1 \Delta \rho^*, \\ \mathbf{f} &= \nabla p = \nabla \left(\frac{1}{2\pi} \gamma \mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^* \right) \end{aligned} \quad (11.3)$$

όπου p είναι η ηλεκτροσυστολική πίεση, $\gamma = \rho_0 \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho}$ είναι ο συντελεστής ηλεκτροσυστολής και ρ_0 είναι η πυκνότητα μάζας του υγρού.

Το πρόβλημα είναι ένα ακόμη παράδειγμα παραμετρικής κυματικής αλληλεπίδρασης και η λύση των συζευγμένων κυματικών εξισώσεων (11.1) και (11.2) ακολουθεί εκείνες, που περιγράφηκαν επανειλημμένα στα Κεφάλαια 9 και 10. Μελετάμε, εδώ, μόνο την οπισθοδρομική εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin στην περίπτωση της σταθερής κατάστασης. Η εμπρόσθια κατεύθυνσης σκέδαση Brillouin δεν συμβαίνει, καθώς έχει μηδενική μετατόπιση συχνότητας. Έστω $\mathbf{E}_1 = \hat{e}_1 \mathcal{E}_1 \exp(ik_1 z - i\omega_1 t)$, $\mathbf{E}_2 = \hat{e}_2 \mathcal{E}_2 \exp(-ik_2 z - i\omega_2 t)$, και $\Delta \rho = A \exp(ik_\alpha z - i\omega_\alpha t)$, με $\omega_1 = \omega_2 + \omega_\alpha$ και $k_\alpha = \omega_\alpha / v$. Ακολουθώντας την προσέγγιση του βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους, οι (11.1) και (11.2) καταλήγουν στις

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{\alpha}{2} \right) \mathcal{E}_1 &= \frac{i\omega_1^2}{2k_1 c^2} \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} (\hat{e}_1^\dagger \cdot \hat{e}_2) \mathcal{E}_2 A e^{-i\Delta k z} \\ \left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{\alpha}{2} \right) \mathcal{E}_2^* &= \frac{i\omega_2^2}{2k_2 c^2} \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} (\hat{e}_1^\dagger \cdot \hat{e}_2) \mathcal{E}_1^* A e^{-i\Delta k z}, \\ \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{\Gamma_B}{v} \right) A &= \frac{ik_\alpha}{4\pi v^2} \rho_0 \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right) (\hat{e}_1^\dagger \cdot \hat{e}_2)^* \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* e^{i\Delta k z} \end{aligned} \quad (11.4)$$

όπου $\Delta k = k_1 + k_2 - k_\alpha$. Αυτό είναι ανάλογο με την περίπτωση της παραμετρικής ενίσχυσης οπίσθιας κατεύθυνσης, που περιγράφηκε στην Ενότητα 9.6. Αν οι σταθερές απόσβεσης α και Γ_B είναι επαρκώς μικρές, η ενίσχυση μπορεί θεωρητικά να μεταβεί σε ταλάντωση. Για τα ακουστικά κύματα που εμπλέκονται στη σκέδαση Brillouin οπισθοδρομικής κατεύθυνσης σε υγρά, όμως, το $\omega_\alpha/2\pi$ είναι συνήθως της τάξης των 5GHz και το αντίστοιχο $\Gamma_B/2\pi$ είναι γύρω στο 0,1GHz (δες Πίνακα 11.1), ο συντελεστής εξασθένισης Γ_B/v είναι 10^4 cm^{-1} με $v \sim 10^5 \text{ cm/sec}$.

Ουσία	Μετατόπιση συχνότητας ν_B (MHz)	Πλάτος γραμμής Γ_B (αυθόρμ.) (MHz)	Παράγοντας κέρδους	
			Υπολογισμένο $g_B^e(\max)$ (cm/MW)	Μετρημένο $g_B^e(\max)$ (cm/MW)
CS ₂	5850	52.3	0.197	0.13
Ακετόνη	4600	224	0.017	0.020
n-Εξάνιο		222	0.027	0.026
Τολουένιο	5910	579	0.013	0.013
CCl ₄	4390	520	0.0084	0.006
Μεθανόλη	4250	250	0.013	0.013
Βενζόλιο	6470	289	0.024	0.018
H ₂ O	5690	317	0.0066	0.0048
Κυκλοεξάνιο	5550	774	0.007	0.0068

Πίνακας 11.1 Μετατόπιση συχνότητας ν_B , Πλάτος γραμμής Γ_B και Μέγιστος Παράγοντας Κέρδους σταθερής κατάστασης της εξαναγκασμένης σκέδασης Brillouin, $(g_B^e)_{\max} \propto \beta_B^e$, για μερικά υγρά [I.L. Fabellinskii, 'Molecular Scattering of Light', (Plenum, New York, 1968)].

Αυτό όμως είναι συχνά μεγαλύτερο από τον συντελεστή κέρδους της εξαναγκασμένης σκέδασης Brillouin που υπολογίστηκε παρακάτω. Συνεπώς, η διέγερση ακουστικού κύματος, εδώ, μπορεί να θεωρηθεί ως πολύ αποσβενόμενο και η (11.4) μπορεί να λυθεί, αρχικά απαλείφοντας το A , χρησιμοποιώντας την προσέγγιση $\partial A/\partial z \cong i\Delta k A$. Τότε, έχουμε

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{\alpha}{2}\right)\mathcal{E}_1 = \frac{i2\pi\omega_1^2}{k_1c^2}\chi_B^{(3)}|\mathcal{E}_2|^2\mathcal{E}_1,$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{\alpha}{2}\right)\mathcal{E}_2^* = \frac{i2\pi\omega_2^2}{k_2c^2}\chi_B^{(3)}|\mathcal{E}_1|^2\mathcal{E}_2^* \quad (11.5), \quad \text{όπου} \quad \chi_B^{(3)} = \left[\frac{(\partial\epsilon/\partial\rho)(\hat{e}_1^\dagger \cdot \hat{e}_2)}{4\pi\nu}\right]^2 \frac{k_a\rho_0}{\Delta k - i\Gamma_B/\nu}.$$

Η εξίσωση (11.5) φαίνεται ακριβώς ίδια με την (10.15) στην εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, εκτός από το ότι η επιδεκτικότητα Brillouin $\chi_B^{(3)}$, αντικαθιστά τώρα την επιδεκτικότητα Raman $\chi_R^{(3)}$ στην (10.15). Αφού $\text{Im}\chi_B^{(3)} > 0$, η (11.5) δείχνει ότι το \mathcal{E}_2 θα αναπτυσσόταν προς την οπίσθια κατεύθυνση (-z) αν $(2\pi\omega_1/k_1c^2)\text{Im}\chi_B^{(3)} > \alpha/2$, ενώ το \mathcal{E}_1 θα έφθινε στην εμπρόσθια κατεύθυνση. Στην περίπτωση της αμελητέας μείωσης αντλίας,

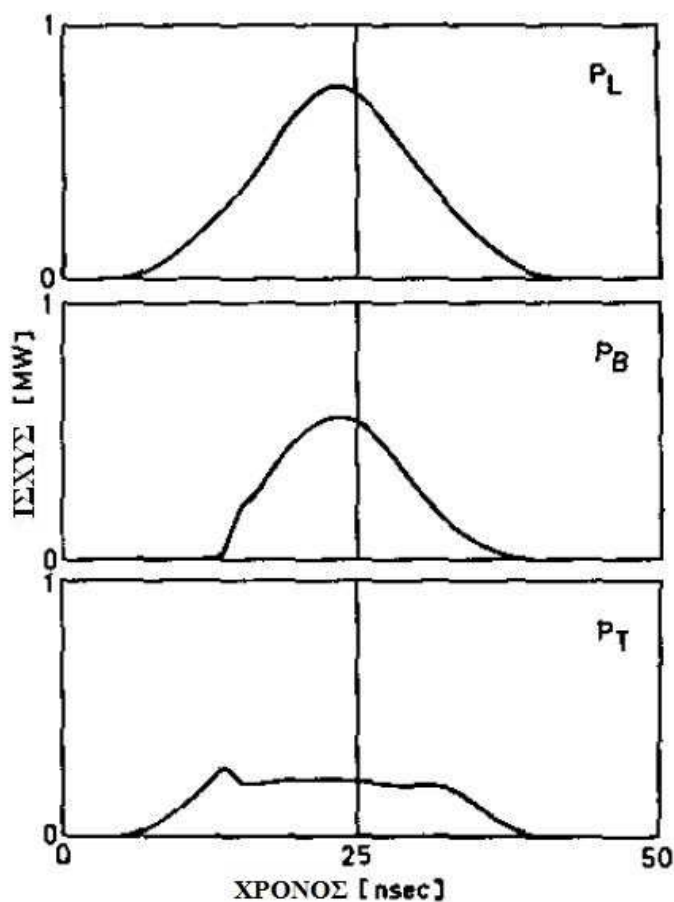
$$\text{η λύση της (11.5) είναι} \quad |\mathcal{E}_2(z)|^2 = |\mathcal{E}_2(l)|^2 e^{(G_B - \alpha)l - z} \quad (11.6), \quad \text{όπου το κέρδος Brillouin}$$

G_B για μερικά υγρά, παρουσιάζεται στον Πίνακα 11.1.² Φαίνεται ότι με 100MW/cm² ένταση αντλίας σε ένα κελί 10cm, το εκθετικό κέρδος $G_B l$ μπορεί να είναι της τάξης του

10 (πολύ μεγαλύτερο σε CS₂, λόγω του στενότερου πλάτους Brillouin), και επομένως η εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin, θα πρέπει να είναι εύκολα παρατηρήσιμη.

Η λύση της (11.5) συμπεριλαμβανομένης της μείωσης αντλίας, αλλά με $\alpha = 0$, μπορεί να εξαχθεί άμεσα.³ Μπορεί κάποιος να βρει τις ακόλουθες αλγεβρικές σχέσεις μεταξύ των εισόδων $|E_1(0)|^2 - |E_1(l)|^2 \cong |E_2(0)|^2 - |E_2(l)|^2$ (11.8) και

$$\frac{|E_2(l)|^2}{|E_2(0)|^2} \cong \frac{1 - |E_2(0)/E_1(0)|^2}{\exp\{[1 - |E_2(0)/E_1(0)|^2] G_B |E_1(0)|^2 l\} - |E_2(0)/E_1(0)|^2}$$

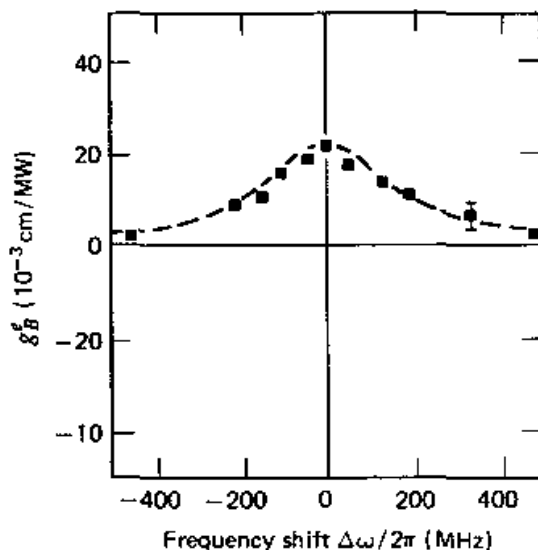


Σχ. 11.1 Ίχνη παλμογράφου του προσπίπτοντος παλμού λέιζερ P_L , ο παλμός Brillouin οπισθοδρομικής κίνησης P_B και ο εκπεμπόμενος παλμός λέιζερ P_T σε αιθυλικό αιθέρα. [M.Maier, Phys. Rev. 166, 113 (1968)].

Η σημαντική απώλεια της αντλίας στην εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin είναι στην πραγματικότητα ένα συνηθισμένο φαινόμενο. Ένα τυπικό παράδειγμα φαίνεται στο Σχ. 11.1, όπου η απώλεια του παλμού αντλίας έχει πλάτος, συγκρίσιμο με 1nsec ή λιγότερο. Η προσωρινή λύση εδώ μοιάζει με αυτήν της περίπτωσης Raman. Όμως, δε θα μείνουμε σε αυτό, εδώ, αλλά παραπέμπουμε τους αναγνώστες στον Kroll.⁵ Στην πραγματικότητα, τα πειράματα έδειξαν έντονη εξάρτηση του κέρδους από τον χρόνο ζωής του ακουστικού

κύματος για πλάτος παλμού λιγότερο από $\sim 100 \tau_B$. Αυτό ισχύει ιδιαίτερα κοντά στο κατώφλι για εξαναγκασμένη σκέδαση. Προσεκτικές μετρήσεις έχουν δείξει ποσοτική συμφωνία μεταξύ θεωρίας και πειράματος.⁶

Η εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin παρατηρήθηκε για πρώτη φορά από τους Chiaο κ.α.⁷ σε χαλαζία και ζαφείρι, χρησιμοποιώντας ένα Q-switched λέιζερ ρουμπινιού. Αυτοί, ανέλυσαν το ανακλώμενο φως από το μέσο με ένα συμβολόμετρο Fabry-Perot και βρήκαν τη μετατοπισμένη συνιστώσα Brillouin. Εξαιτίας της μεγάλης απόδοσης μετατροπής, ο παλμός σκέδασης Brillouin οπίσθιας κατεύθυνσης είναι συχνά τόσο έντονος, που μπορεί να ανιχνευθεί με το μάτι. Χωρίς κατάλληλη απομόνωση μεταξύ του δείγματος και του συστήματος λέιζερ, ο παλμός σκέδασης Brillouin οπίσθιας κατεύθυνσης, θα διαδίδεται στο λέιζερ μέσο και θα ενισχύεται περαιτέρω. Το αποτέλεσμα είναι ότι μια μετατοπισμένη συνιστώσα Brillouin θα εμφανιστεί στην έξοδο του λέιζερ. Μια τέτοια διαδικασία μπορεί να επαναληφθεί αρκετές φορές και η έξοδος του λέιζερ θα έχει τότε ένα φάσμα, που θα περιέχει μετατοπισμένες συνιστώσες Brillouin αρκετών τάξεων.⁸ Αυτό είναι που θα μπορούσε κανείς να αποφύγει στα πειράματα που απαιτούν δέσμη λέιζερ μονού ρυθμού.



Σχ. 11.2 Πειραματικός παράγοντας κέρδους Brillouin, $g_B^e \propto \beta_B^e$ ως προς τη συχνότητα μετατόπισης $\Delta\omega/2\pi$ για ένα μη απορροφητικό υγρό (66% CS_2 και 34% CCl_4). Η θεωρητική εφαρμογή φαίνεται από μια Λορεντζιανή καμπύλη. (Βιβλιογρ. Αναφ. 15).

Όπως στην περίπτωση Raman, ο καλύτερος τρόπος για να δοκιμαστεί η θεωρία της εξαναγκασμένης σκέδασης Brillouin είναι να διεξαχθούν μετρήσεις κέρδους, με μια

διάταξη ταλαντωτή – ενισχυτή, παρόμοια με αυτή του Σχ. 10.9. Ένα παράδειγμα φαίνεται στο Σχ. 11.2.⁹ Μια θεωρητική εφαρμογή των δεδομένων χρησιμοποιώντας την (10.7), επιτρέπει την εξαγωγή του Γ_B , το οποίο μπορεί να συγκριθεί αρκετά καλά με το Γ_B που λαμβάνεται από αυθόρμητη σκέδαση.

Η σύγκριση των κερδών Brillouin στον Πίνακα 11.1 με τα κέρδη Raman στον Πίνακα 10.1, δείχνει ότι η εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin θα πρέπει συνήθως να υπερσχύει της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman στα περισσότερα υγρά σε σταθερή κατάσταση. Με μια δυνατή δέσμη λέιζερ αντλίας, ειδικά με μια εστιασμένη, η εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin, μπορεί στην πραγματικότητα, να παρουσιάσει αρκετό κέρδος προς όλες τις κατευθύνσεις. Πειραματικά, ακουστικά κύματα διαφόρων συχνοτήτων παράγονται το σημείο εστίασης σε διάφορες κατευθύνσεις. Ένας ακουστός ήχος μπορεί να είναι ακουστός τη στιγμή που συμβαίνει. Είναι πιθανό, να προκαλείται ένα κύμα πολύ υψηλής έντασης (shock wave) στο σημείο εστίασης. Τα παράθυρα των κελιών συχνά κομματιάζονται από τα κύματα υψηλής πίεσης που παράγονται, αλλά ο λεπτομερής μηχανισμός που εμπλέκεται σε αυτό, δεν είναι ακόμα κατανοητός.

11.2 Εξαναγκασμένη θερμική σκέδαση Brillouin και Rayleigh

Έχουμε υποθέσει ως τώρα, ότι το ακουστικό κύμα περιγράφεται από τη διακύμανση της πυκνότητας $\Delta\rho$. Αυτό είναι, όμως, μια προσέγγιση που πρωτοχρησιμοποιήθηκε από τον Einstein¹⁰ και τον Brillouin¹¹ για να περιγραφεί η αυθόρμητη σκέδαση φωτός από θερμοδυναμικές διακυμάνσεις χαμηλών συχνοτήτων σε ένα μονοσυστατικό μέσο. Στην πραγματικότητα, το ρ είναι συνάρτηση της πίεσης p και εντροπίας S , και μπορεί να γραφτεί $\Delta\rho = \left(\frac{\partial \rho}{\partial p}\right)_S \Delta p + \left(\frac{\partial \rho}{\partial S}\right)_p \Delta S$. Τότε, το $\Delta\rho(t)$ περιγράφει το ακουστικό κύμα, ενώ το $\Delta S(t)$ περιγράφει το κύμα εντροπίας στη μηδενική συχνότητα, με μια εξίσωση κίνησης τύπου διάχυσης. Στην αυθόρμητη σκέδαση, το $\Delta\rho$ είναι υπεύθυνο για τον διπλασιασμό φάσματος Brillouin και το ΔS για την κεντρική συνιστώσα Rayleigh.¹ Επομένως, για την εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin που συζητήθηκε στην προηγούμενη ενότητα, ένας πιο σωστός φορμαλισμός θα πρέπει να αντικαταστήσει το $\Delta\rho$ με το Δp και το $\frac{\partial \rho}{\partial p}$ με το $\left(\frac{\partial \rho}{\partial p}\right)_S$. Σε μερικές περιπτώσεις, όμως, είναι πιο βολικό να χρησιμοποιηθούν οι ανεξάρτητες θερμοδυναμικές μεταβλητές ρ και T , αντί για τις p και S . Αυτό ισχύει, ιδιαίτερα όταν η θερμοκρασία T ποικίλει στην άμεση απόκριση του μέσου στην εξωτερική θερμότητα. Στις εξισώσεις κίνησης, περιμένουμε ότι τα $\Delta\rho(t)$ και $\Delta T(t)$ είναι συζευγμένα, αφού και τα δυο, με το να είναι γραμμικοί συνδυασμοί των $\Delta p(t)$ και

$\Delta S(t)$, είναι μίγματα κυμάτων ακουστικών και εντροπίας. Η σκέδαση φωτός υπό την επίδραση της θερμοκρασίας εξαιτίας οπτικής απορρόφησης είναι γνωστή ως θερμική σκέδαση φωτός.¹²

Οι εξισώσεις κίνησης για $\Delta\rho$ και ΔT είναι αντίστοιχα, η εξίσωση Navier-Stokes σε συνδυασμό με την εξίσωση συνέχειας¹²,

$$\begin{aligned} \rho_0 \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \frac{v^2}{\delta} \nabla(\Delta\rho) + \frac{v^2 \beta_T \rho_0}{\delta} \nabla(\Delta T) - \eta \nabla^2 \mathbf{v} \\ = \frac{\gamma}{2\pi} \nabla(\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^*) - \frac{1}{2\pi} \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_\rho (\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^*) \nabla(\Delta T), \\ \frac{\partial}{\partial t} \Delta\rho + \rho_0 \nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \end{aligned} \quad (11.9)$$

και η εξίσωση μεταφοράς ενέργειας

$$\begin{aligned} \left(\rho_0 C_v \frac{\partial}{\partial t} - \lambda_T \nabla^2 \right) \Delta T - \frac{C_v (\delta - 1)}{\beta_T} \frac{\partial}{\partial t} \Delta\rho \\ = \frac{nca}{\pi} (\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^*) + \frac{1}{\pi} \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_\rho T_0 \mathbf{E}_1 \cdot \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}_2^* \end{aligned} \quad (11.10)$$

όπου v είναι η ταχύτητα ακουστικού κύματος, $\delta = C_p / C_v$ είναι ο λόγος των θερμοχωρητικότητων σε συνεχή πίεση και όγκο, β_T είναι η ισοθερμική συμπιεστικότητα, το η χαρακτηρίζει την ακουστική απόσβεση, το $\gamma = \rho_0 \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_T$, λ_T είναι η θερμική αγωγιμότητα και a είναι ο συντελεστής γραμμικής απορρόφησης. Οι δυο εξισώσεις στην (11.9) μπορούν να συνδυαστούν και να αποφέρουν

$$\begin{aligned} \left(-\frac{\partial^2}{\partial t^2} + \frac{v^2}{\delta} \nabla^2 + \frac{\eta \partial}{\rho_0 \partial t} \nabla^2 \right) \Delta\rho + \frac{v^2 \beta_T \rho_0}{\delta} \nabla^2(\Delta T) \\ = \frac{\gamma}{2\pi} \nabla^2(\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^*) - \frac{1}{2\pi} \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_\rho \nabla \cdot [\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^* \nabla(\Delta T)]. \end{aligned} \quad (11.11)$$

Παρατηρούμε, ότι αν οι προσεγγίσεις $\delta = 1$, $a = 0$ και $\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_\rho = 0$ χρησιμοποιηθούν, η (11.10) δίνει $\Delta T = 0$ και η (11.11) καταλήγει στην εξίσωση ακουστικού κύματος της (11.2). Η εξαναγκασμένη θερμική σκέδαση Brillouin και Rayleigh περιγράφεται τώρα από τη σύζευξη των (11.10) και (11.11) με τις κυματικές εξισώσεις για E_1 και E_2 στην (11.1) να

$$\text{έχουν } \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega_1) = \frac{\gamma}{4\pi\rho_0} E_2 \Delta\rho + \frac{1}{4\pi} \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_\rho E_2 \Delta T \quad (11.12)$$

$$\text{και } \mathbf{P}^{\text{NL}}(\omega_2) = \frac{\gamma}{4\pi\rho_0} E_1 \Delta\rho^* + \frac{1}{4\pi} \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_\rho E_1 \Delta T^*$$

Η λύση των συζευγμένων κυματικών εξισώσεων είναι παρόμοια με εκείνες της εξαναγκασμένης σκέδασης Raman και Brillouin. Μελετάμε μόνο την λύση σταθερής κατάστασης για σκέδαση οπίσθιας κατεύθυνσης, εδώ, και υποθέτουμε ότι και οι δυο διεγέρσεις $\Delta\rho$ και ΔT είναι εξαιρετικά αποσβεννυμένα. Μπορούμε έπειτα να

αντικαταστήσουμε το $\frac{\partial}{\partial t}$ με την $-i\omega_a = -i(\omega_1 - \omega_2)$ και την $\mathbf{v} = \frac{\partial}{\partial z}$ με την $i(k_1 + k_2)$ στις (11.10) και (11.11) και να λύσουμε για $\Delta\rho$ και ΔT . Υποκαθιστώντας τις εκφράσεις του $\Delta\rho$ και ΔT στην (11.12) και έπειτα το \mathbf{P}^{NL} στην (11.1) και χρησιμοποιώντας την προσέγγιση βραδέως μεταβαλλόμενου πλάτους για E_1 και \mathbf{E}_2^* , βρίσκουμε και πάλι τις εξισώσεις πλάτους για τα \mathcal{E}_1 και \mathcal{E}_2^* με τη μορφή της (11.5) ή

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial z} + \alpha \right) |\mathcal{E}_1|^2 &= -\beta |\mathcal{E}_1|^2 |\mathcal{E}_2|^2 \\ \left(\frac{\partial}{\partial z} - \alpha \right) |\mathcal{E}_2|^2 &= -\beta |\mathcal{E}_1|^2 |\mathcal{E}_2|^2. \end{aligned} \quad (11.13)$$

Με την προσέγγιση $\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_{T\rho} \gg \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_{\rho T}$, έχουμε

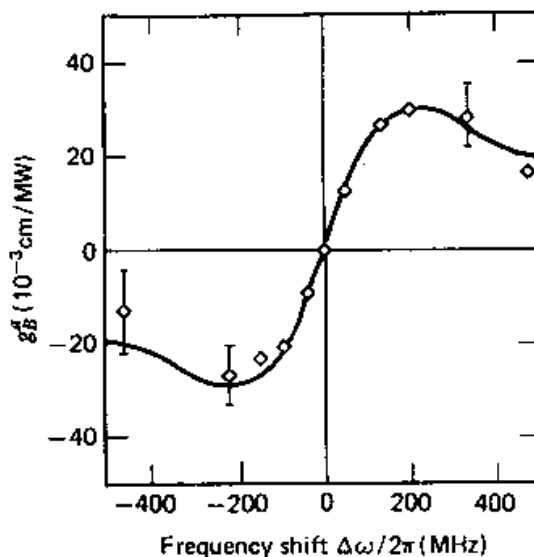
$$\beta = \beta_B^c \frac{1}{1 + (\Delta\Omega/\Gamma_B)^2} + \beta_B^a \frac{2(\Delta\Omega/\Gamma_B)}{1 + (\Delta\Omega/\Gamma_B)^2} + (\beta_{\text{RL}}^c + \beta_{\text{RL}}^a) \frac{2\omega_a/\Gamma_{\text{RL}}}{1 + (\omega_a/\Gamma_{\text{RL}})^2}, \quad \text{όπου}$$

$$\begin{aligned}
\Delta\Omega &= \frac{(k_1 + |k_2|)v}{\delta^{1/2}} - (\omega_1 - \omega_2), \\
\beta_B^e &= \frac{\omega_2^2 \gamma^2}{4\pi c^2 \rho_0 v \Gamma_B}, \\
\beta_B^a &= \frac{\omega_2^2 \gamma \gamma^a}{8\pi c^2 \rho_0 v \Gamma_B}, \\
\beta_{RL}^e &= \frac{\omega_2^2 \gamma \gamma^R}{4\pi c^2 \rho_0 v \Gamma_{RL}}, \\
\beta_{RL}^a &= \frac{\omega_2^2 \gamma \gamma^a}{4\pi c^2 \rho_0 v \Gamma_{RL}}, \\
\gamma^a &= \frac{avc^2 \beta_T}{c_p \omega_2}, \\
\gamma^R &= \frac{(\delta - 1)c\gamma \Gamma_{RL}}{4\pi v \omega_2}, \\
\Gamma_B &= \frac{\eta(k_1 + k_2)^2}{\rho_0}, & \Gamma_{RL} &= \frac{\lambda_T(k_1 + k_2)^2}{\rho_0 C_p}.
\end{aligned}$$

(11.14) και

Στο όριο της αμελητέας μείωσης αντλίας, το $|\mathcal{E}_2|^2$ αναπτύσσεται εκθετικά στην οπίσθια κατεύθυνση με κέρδος $G - \alpha = \beta |\mathcal{E}_1|^2 - \alpha$.

Οι δυο πρώτοι όροι στην (11.14) είναι υπεύθυνοι για την εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin και ο τελευταίος όρος για την εξαναγκασμένη σκέδαση Rayleigh. Ο όρος β_B^e είναι για κανονική εξαναγκασμένη σκέδαση Brillouin. Το φάσμα κέρδους κεντράρεται στο $\Delta\Omega = 0$ ή στην $\omega_1 - \omega_2 = (k_1 + k_2)v/\delta^{1/2}$, η οποία είναι η συχνότητα διέγερσης ακουστικού κύματος, που εμπλέκεται στην σκέδαση οπίσθιας κατεύθυνσης Brillouin. Ο όρος β_B^a αντιστοιχεί στη θερμική σκέδαση Brillouin, αφού μηδενίζεται, αν ο συντελεστής απορρόφησης α είναι μηδέν.



Σχ. 11.3 Πειραματικός θερμικός παράγοντας κέρδους Brillouin, $g_B^a \propto \beta_B^a$, ως προς τη μετατόπιση συχνότητας $\Delta\omega/2\pi$ για ένα απορροφητικό υγρό (66% CS_2 και 34% CCl_4 με μια μικρή ποσότητα από I_2) με συντελεστή απορρόφησης $\alpha = 0,83\text{cm}^{-1}$. Η θεωρητική καμπύλη είναι το σκεδαστικό αντίστοιχο μιας Λορεντζιανής. (Βιβλ.Αναφ. 15)

Το φάσμα κέρδους είναι αντισυμμετρικό περίπου $\Delta\Omega = 0$. Ο όρος β_{RL}^a μηδενίζεται επίσης όταν $\alpha = 0$ και αντιστοιχεί στη θερμική σκέδαση Rayleigh με μέγιστο κέρδος στην $\omega_a = \omega_1 - \omega_2 = \Gamma_{RL}$. Τελικά, ο όρος β_{RL}^e αντιστοιχεί στη συνηθισμένη σκέδαση Rayleigh με το ίδιο φάσμα κέρδους όπως το β_{RL}^a .

Πειραματικά, η εξαναγκασμένη σκέδαση Rayleigh είναι πιο δύσκολο να παρατηρηθεί, εξαιτίας του μικρού β_{RL}^e , αλλά στη πραγματικότητα έχει παρατηρηθεί.¹³ Το μέγιστο κέρδος Rayleigh στα υγρά υπολογίζεται να είναι δυο τάξεις μεγέθους χαμηλότερες από ότι το κέρδος Brillouin.² Με την απορρόφηση, η σκέδαση Rayleigh μπορεί να είναι πολύ ενισχυμένη μέσω του όρου β_{RL}^a . Πράγματι, η εξαναγκασμένη θερμική σκέδαση Rayleigh μπορεί άμεσα να παρατηρηθεί σε απορροφητικά αέρια και υγρά.¹⁴ Η εξαναγκασμένη θερμική σκέδαση Brillouin σε απορροφητικό μέσο είναι επίσης παρατηρήσιμη.¹⁵ Η παρουσία του αποδεικνύεται από μια μικρή μετατόπιση προς τα πάνω της μετατοπισμένης συχνότητας Brillouin, αφού το συνδυασμένο φάσμα του κέρδους που παρουσιάζεται από τους όρους β_B^e και β_B^a στην (11.14) έχει ένα μέγιστο στο $\Delta\Omega > 0$. Ο καλύτερος τρόπος για να μελετηθεί το φαινόμενο της θερμικής σκέδασης Brillouin είναι να μετρηθεί το κέρδος Brillouin, όπως περιγράφηκε στην Ενότητα 11.1. Το μετρημένο φάσμα κέρδους, μπορεί τότε να συγκριθεί άμεσα με το θεωρητικό φάσμα στην (11.14).

Στο Σχ. 11.3 παρουσιάζεται ένα παράδειγμα, το οποίο δείχνει μια καλή συμφωνία μεταξύ θεωρίας και πειράματος.

11.3 Εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh

Οι διακυμάνσεις του προσανατολισμού των μορίων και της κατανομής σε ένα υγρό μέσο, καταλήγουν σε διακυμάνσεις της διηλεκτρικής σταθεράς και οδηγούν σε αυθόρμητη σκέδαση φωτός.¹ Αυτό είναι γνωστό ως εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh, η οποία έχει ένα φάσμα παρόμοιο με τη σκέδαση Rayleigh, αλλά πολύ φαρδύτερο σε πλάτος. Η εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh αναμένεται επίσης σε υψηλή ένταση αντλίας. Η φυσική εικόνα έχει ως ακολούθως: η ανάμιξη των E_1 και E_2 επαναπροσανατολίζει και ανακατανέμει τα μόρια· ο μοριακός επαναπροσανατολισμός και ανακατανομή, που ποικίλουν χωρικά και χρονικά, υπερνικούν το E_1 και επιβάλλουν την παρουσία του E_2 . Η εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh είναι τότε, απλώς, το αποτέλεσμα της σύζευξης μεταξύ των E_1 και E_2 και της προκαλούμενης διακύμανσης στον μοριακό επαναπροσανατολισμό και ανακατανομή. Για ποσοτική περιγραφή, πρέπει να βρούμε την εξίσωση κίνησης για μοριακό επαναπροσανατολισμό και ανακατανομή. Εδώ, μελετάμε μόνο το μηχανισμό επαναπροσανατολισμού.

Υποθέτουμε την ύπαρξη ανισοτροπικών μορίων με κυλινδρική συμμετρία. Οι οπτικές πολωσιμότητες παράλληλα και κάθετα στο μοριακό άξονα, δηλώνονται με α_{\parallel} και α_{\perp} , αντίστοιχα. Έστω η κλίση του μοριακού άξονα με γωνία θ από τον άξονα x (Σχ. 11.4). Τότε, το γραμμικά πολωμένο πεδίο E , κατά μήκος του x , προκαλεί ένα δίπολο p στο μόριο με $p_x = \alpha_{xx}E$ και $\alpha_{xx} = \alpha_{\parallel} \cos^2\theta + \alpha_{\perp} \sin^2\theta = \bar{\alpha} + \Delta\alpha(\cos^2\theta - \frac{1}{3})$ (11.15), όπου $\bar{\alpha} = \frac{1}{3}(\alpha_{\parallel} + 2\alpha_{\perp})$ and $\Delta\alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$.

Το εφαρμοσμένο πεδίο E , αλληλεπιδρά τώρα με το επαγωγικό δίπολο και τείνει να ευθυγραμμίζει το μόριο κατά μήκος του x , ενάντια στη θερμική τυχαιότητα. Ας υποθέσουμε ότι έχουμε μια ομάδα μόρια που δεν αλληλεπιδρούν με πυκνότητα N και μια τυχαία προσανατολιζόμενη κατανομή, απουσία του E . Με το εφαρμοσμένο E , η συνάρτηση της προσανατολιζόμενης κατανομής σε κατάσταση ισορροπίας, γίνεται

$$f(\theta) = \frac{\exp(-2\alpha_{xx}|E|^2/k_B T)}{Z} \quad (11.16), \text{ όπου } Z = \int_0^{\pi} \exp\left(-\frac{2\alpha_{xx}|E|^2}{k_B T}\right) \sin\theta d\theta, \quad , k_B \text{ είναι}$$

η σταθερά Boltzmann και ο παράγοντας 2 αντί του $\frac{1}{2}$ εμφανίζεται στην εκθετική, λόγω

της σύμβασής μας για το πλάτος του E (Ενότητα 2.9). Τότε, η συνιστώσα ταυιστή χ_{xx} της οπτικής επιδεκτικότητας, κατά την (11.15) και (11.16), δίνεται από την

$$\begin{aligned} \bar{\chi} &= N\bar{\alpha}, \\ \chi_{xx} &= \bar{\chi} + \frac{2}{3}N\Delta\alpha Q, \quad \mu\epsilon \quad Q = \frac{1}{2}\langle \cos^2\theta - \frac{1}{3} \rangle \\ &= \frac{\int_0^\pi \frac{1}{2}(\cos^2\theta - \frac{1}{3}) \exp[-2\Delta\alpha|E|^2(\cos^2\theta - \frac{1}{3})/k_B T] \sin\theta d\theta}{\int_0^\pi \exp[-2\Delta\alpha|E|^2(\cos^2\theta - \frac{1}{3})/k_B T] \sin\theta d\theta}, \end{aligned}$$

όπου το $\langle \rangle$ δηλώνει το μέσο προσανατολισμό. Κατά παρόμοιο τρόπο, βρίσκουμε

$$\chi_{yy} = \chi_{zz} = \bar{\chi} - \frac{1}{3}N\Delta\alpha Q. \quad (11.18)$$

Φυσικώς, η ποσότητα Q, η οποία περιγράφει το βαθμό της μοριακής ευθυγράμμισης, συχνά είναι γνωστή ως προσανατολιστική παράμετρος τάξης. Για τυχαία κατανομή, $Q \approx 0$ και για τέλεια ευθυγράμμιση $Q = 1$. Η πόλωση που προκαλείται από το E παίρνει τη μορφή

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \hat{x}\chi_{xx}E \\ &= \hat{x}\left(\bar{\chi}E + \frac{2}{3}N\Delta\alpha QE\right). \end{aligned} \quad (11.19).$$

Αφού το Q είναι επίσης συνάρτηση του E, ο δεύτερος όρος στην (11.19) αντιπροσωπεύει μια μη γραμμική πόλωση \mathbf{P}^{NL} , $\mathbf{P}^{\text{NL}} = \hat{x}\frac{2}{3}N\Delta\alpha QE$ (11.20). Για σχετικά αδύναμα πεδία, έχουμε $Q \propto |E|^2$ και τότε το \mathbf{P}^{NL} είναι μια γραμμική πόλωση τρίτης τάξης.

Στην εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh, η προσανατολιστική κατανομή των μορίων αλλάζει αποκρινόμενη στη συμβολή των δυο οπτικών πεδίων E_1 και E_2 . Η εξίσωση κίνησης για τον μοριακό επαναπροσανατολισμό από αυτήν την συνδυασμένη δράση των E_1 και E_2 παρέχεται από την εξίσωση περιστροφικής διάχυσης Debye για τη συνάρτηση κατανομής $f(\theta)$:¹⁶

$$\nu \frac{\partial f}{\partial t} = \frac{1}{\sin\theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[\sin\theta \left(\frac{\partial f}{\partial \theta} + \frac{4\Delta\alpha|E|^2 \sin\theta \cos\theta}{kT} f \right) \right] \quad (11.21)$$

Η εξίσωση (11.21) μπορεί να μετατραπεί σε μια απλή εξίσωση κίνησης για το Q , πολλαπλασιάζοντας και τα δυο μέλη με $\frac{1}{2}(\cos^2\theta - \dots)$, κάνοντας κατόπιν το ολοκλήρωμα ως προς θ και αγνοώντας τους όρους που εξαρτώνται από το πεδίο και που βρίσκονται σε

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = -\frac{Q}{\tau_D} + \frac{4}{3\nu}\Delta\alpha|E|^2 \quad (11.22), \text{ όπου } \tau_D = \nu/5 k_B T$$

ανώτερη τάξη από την $|E|^2/k_B T$: είναι ο χρόνος χαλάρωσης Debye και ν είναι ο συντελεστής ιξώδους για ένα μεμονωμένο μόριο. Τώρα που $E = E_1 + E_2 = \hat{x}\mathcal{E}_1\exp(i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - i\omega_1 t) + \hat{x}\mathcal{E}_2\exp(i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - i\omega_2 t)$ και αφού ενδιαφερόμαστε για την προσανατολιστική ανακατανομή που διεγείρεται από τη συμβολή των E_1 και E_2 , ο όρος $|E|^2$ στην (11.22) θα πρέπει να αντικατασταθεί από το $\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^*$. Η εξίσωση (11.22) είναι τότε συζευγμένη με τις κυματικές εξισώσεις της (11.1) για E_1 και E_2 μέσω της (11.20). Στην περίπτωση σταθερής κατάστασης, μπορεί να βρεθεί

$$\begin{aligned} Q &= \frac{4\tau_D\Delta\alpha E_1 E_2^*}{3\nu(1 - i\omega\tau_D)} \\ \mathbf{P}^{NL}(\omega_2) &= \chi_{RW}^{(3)}|\mathcal{E}_1|^2\mathcal{E}_2 \\ \chi_{RW}^{(3)} &= \frac{8N\tau_D(\Delta\alpha)^2}{9\nu(1 + i\omega\tau_D)} \end{aligned} \quad (11.23), \text{ με } \omega = \omega_1 - \omega_2.$$

Η επιδεκτικότητα πτέρυγας Rayleigh $\chi_{RW}^{(3)}$ έχει ένα αρνητικό φανταστικό μέρος. Σε αναλογία με άλλες περιπτώσεις εξαναγκασμένης σκέδασης φωτός, αυτό δείχνει, ότι το E_2 μπορεί να παρουσιάσει εκθετικό κέρδος $\exp(G_{RW} - \alpha)z$, με

$$\begin{aligned} G_{RW} &= \frac{2\pi\omega_2}{cn} \text{Im}(\chi_{RW}^{(3)})|\mathcal{E}_1|^2 \\ &= 16\pi \frac{\omega_2}{cn} \frac{N(\Delta\alpha)^2\omega\tau_D|\mathcal{E}_1|^2}{45k_B T(1 + \omega^2\tau_D^2)}, \end{aligned} \quad (11.24), \text{ που έχει το μέγιστό του στην } \omega = 1/\tau_D.$$

Για ένα υγρό με $\tau_D \sim 10^{-11}$ sec και $16\pi N(\Delta\alpha)^2/45k_B T \sim 10^{11}$ cm³/erg σε μια τυπική περίπτωση, έχουμε $(G_{RW})_{\max} \sim 10^{-3}$ cm/MW, συγκρίσιμο με τα κέρδη Raman σε πολλά υγρά.² Η εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh αναμένεται επομένως, να είναι εύκολα παρατηρήσιμη, όπως είναι πράγματι, σε αυτήν την περίπτωση.^{17,18} Στην πραγματικότητα, είναι πολύ ανάλογο προς την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman που προκαλείται από δόνηση: η διέγερση υλικού $|Q\rangle$ είναι ανεξάρτητη από το

κυματοδιάνυσμα, έτσι ώστε το εξαναγκασμένο κέρδος είναι ιστροπικό. Συνεπώς, η σύζευξη Stokes—anti-Stokes (δες Ενότητα 10.4) που οδηγεί στη γένεση ακτινοβολίας anti-Stokes στην κοντινή εμπρόσθια κατεύθυνση στην εξαναγκασμένη σκέδαση Raman, συμβαίνει επίσης και στην εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh.¹⁹ Τα αποτελέσματα είναι κάπως διαφορετικά, λόγω της διαφοράς των συχνοτήτων συντονισμού των υλικών διεγέρσεων. Σε αντίθεση με την περίπτωση Raman, το μέγιστο κέρδος με τη σύζευξη Stokes—anti-Stokes στην εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh, εμφανίζεται στην $\omega_l - \omega_s = \omega_{as} - \omega_l = 0$ με k_s και k_{as} να σχηματίζουν μια γωνία θ_{opt} με k_l .¹⁹ Με άλλα λόγια, η δέσμη λέιζερ, παράγει μέσω της εξαναγκασμένη σκέδαση πτέρυγας Rayleigh, έναν κώνο με ακτινοβολία ίδιας συχνότητας σε μια γωνία θ_{opt} από την δέσμη λέιζερ. Στην πραγματικότητα, μια δέσμη λέιζερ πεπερασμένης διατομής, έχει άνοιγμα $k_l \cdot H$. Η επίδραση της εξαναγκασμένης σκέδασης πτέρυγας Rayleigh έγκειται στο να διευρύνει αυτό το άνοιγμα του k_l ή ισοδύναμα, να μειώσει τη διατομή της δέσμης λέιζερ. Επομένως, η δέσμη λέιζερ εμφανίζεται να αυτοεστιάζει, καθώς διαδίδεται στο μέσο. Αυτός είναι ένας αντισυμβατικός τρόπος περιγραφής της αυτοεστίασης του φωτός. Ο συμβατικός τρόπος θα συζητηθεί στο Κεφάλαιο 19. Σημειώνουμε, εδώ, ότι είναι η ενίσχυση των υπαρχόντων εκτός άξονα k_l συνιστωσών, που οδηγεί στην αυτοεστίαση. Αν η εξαναγκασμένη σκέδαση Raman συμβαίνει επίσης στο μέσο, προκαλείται από ενίσχυση του θορύβου. Αφού το κέρδος Raman και το κέρδος πτέρυγας Rayleigh είναι συγκρίσιμα σε πολλά υγρά, μπορούμε να περιμένουμε ότι το γεγονός της αυτοεστίασης, συχνά προηγείται από την εξαναγκασμένη σκέδαση Raman.

11.4 Άλλη εξαναγκασμένη σκέδαση φωτός

Σε ένα πολυσυστατικό σύστημα, οι τοπικές συγκεντρώσεις των συστατικών μπορεί να αυξομειώνονται, προκαλώντας διακύμανση στη διηλεκτρική σταθερά και σκέδαση του φωτός, γνωστό και ως συγκέντρωση σκέδασης.¹ Στον τομέα της θερμοδυναμικής, οι συγκεντρώσεις μαζί με τα ρ , T ή p , S σχηματίζουν ένα σετ από θερμοδυναμικές μεταβλητές. Η διακύμανση της διηλεκτρικής σταθεράς ενός συστήματος δυο συστατικών, μπορεί να γραφτεί για παράδειγμα, ως

$$\Delta \epsilon = \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} \right)_{C, T} \Delta \rho + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial T} \right)_{C, \rho} \Delta T + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial C} \right)_{\rho, T} \Delta C \quad (11.25)$$

όπου C είναι η σχετική συγκέντρωση. Στην εξαναγκασμένη συγκέντρωση σκέδασης, η ΔC διεγείρεται από τη συμβολή των E_1 και E_2 , υπακούοντας μια εξίσωση καθοδηγούμενης διάχυσης²⁰

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - D\nabla^2\right)\Delta C = -\frac{D(\partial\varepsilon/\partial C)_{\rho,T}\nabla^2(\mathbf{E}_1 \cdot \mathbf{E}_2^*)}{8\pi\rho_0(\partial\mu/\partial C)_{\rho,T}} \quad (11.26)$$

Στην (11.26), αγνοήσαμε τη σύζευξη του ΔC στο $\Delta\rho$ και ΔT . D είναι ο συντελεστής διάχυσης και μ είναι το χημικό δυναμικό. Σε μια πιο ακριβή και αυστηρή αντιμετώπιση, η σύζευξη μεταξύ ΔC , $\Delta\rho$ και ΔT μπορεί να ληφθεί υπόψη.²⁰ Ανάλογη με άλλες περιπτώσεις εξαναγκασμένης σκέδασης του φωτός, η εξαναγκασμένη συγκέντρωση σκέδασης, περιγράφεται τότε, από τη λύση των συζευγμένων εξισώσεων (11.26) και (11.1), με $P^{NL}(\omega_1) = (\partial\varepsilon/\partial C)_{\rho,T} E_2 \Delta C / 4\pi$ και $P^{NL}(\omega_2) = (\partial\varepsilon/\partial C)_{\rho,T} E_1 \Delta C^* / 4\pi$. Το εξαναγκασμένο κέρδος έχει ένα φάσμα ανάλογο προς το $\omega_C(1 + \omega^2\tau_C^2)^{-1} = Dk^2$ και $k = k_1 - k_2$. Λεπτομέρειες για τη θεωρία και τα πειράματα της εξαναγκασμένης συγκέντρωσης σκέδασης, μπορούν να βρεθούν στην βιβλιογραφική αναφορά 20.

Υπάρχουν, φυσικά, πολλοί άλλοι τύποι σκέδασης φωτός: σκέδαση φωτός με μοριακή ταλάντωση (περιστροφική ταλάντωση), με εγκάρσια κύματα, με κύματα spin (περιδίνησης), με επιφανειακά κύματα, κ.λ.π.¹ Στη θεωρία, με επαρκή ένταση αντλίας, μπορούν όλα να εξαναγκαστούν σε διέγερση: γνωρίζοντας τη δυναμική εξίσωση για την υλική διέγερση, η θεωρητική αντιμετώπιση και πάλι ακολουθεί την προσέγγιση του συζευγμένου κύματος. Όμως, το κατώφλι για μια συγκεκριμένη εξαναγκασμένη σκέδαση, ίσως είναι υψηλότερο από την οπτική ζημιά κατωφλίου· εάν συμβεί αυτό, μια τέτοια εξαναγκασμένη σκέδαση, δεν θα είναι παρατηρήσιμη.

Ένα διαφορετικό είδος εξαναγκασμένης σκέδασης φωτός είναι η εξαναγκασμένη σκέδαση Compton, που προτάθηκε για πρώτη φορά από τους Pantell κ.α.²¹ Σκεδιάζοντας μικροκύματα προς την οπίσθια κατεύθυνση από μια σχετικιστική δέσμη ηλεκτρονίων, θα μπορούσε να παραχθεί ρυθμιζόμενη ακτινοβολία στο μακρινό υπέρυθρο. Οι Sukhamte & Wolff²² έδειξαν ότι η εξαναγκασμένη σκέδαση Compton θα μπορούσε να ενισχυθεί κατά πολύ σε ένα μαγνητικό πεδίο, αν η μικροκυματική συχνότητα είναι ίση με την κυκλοτρονική συχνότητα συντονισμού. Πειράματα στην εξαναγκασμένη σκέδαση Compton δεν έχουν ακόμη αναφερθεί. Όμως, σε ένα σχετικό πρόβλημα, ρυθμιζόμενη μικροκυματική ακτινοβολία και ακτινοβολία μακρινού υπέρυθρου, παρήχθησαν από σχετικιστικά ηλεκτρόνια, τα οποία εκτελούσαν κυκλοτρονική κίνηση σε ένα μαγνητικό

πεδίο.²³ Επίσης, έχει παρατηρηθεί έντονη μικροκυματική εκπομπή με ισχύ κορυφής \approx 500 MW και απόδοση μετατροπής 17%, σε σύμφωνη ακτινοβολία Cherenkov, από σχετικιστική δέσμη ηλεκτρονίων, η οποία αλληλεπιδρά με μια αργή κυματική δομή.²⁴

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. Δες, για παράδειγμα, I.L. Fabellinskii, *Molecular Scattering of Light* (Plenum, New York, 1968).
2. W. Kaiser & M. Maier, in F.T. Arrechi & E.O. Schulz-Dubois, eds., *Laser Handbook* (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 1077.
3. C.L. Tang, *J. Appl. Phys.* 37, 2945 (1966).
4. M. Maier, *Phys. Rev.* 166, 113 (1968).
5. N.M. Kroll, *J. Appl. Phys.* 36, 34 (1965).
6. M. Maier & G. Renner, *Phys. Lett.* 34A, 299 (1971); *Opt. Comm.* 3, 301 (1971).
7. R.Y. Chiao, C.H. Townes, B.P. Stoicheff, *Phys. Rev. Lett.* 12, 592 (1964).
8. E. Garmire & C.H. Townes, *Appl. Phys. Lett.* 5, 84 (1964).
9. D. Pohl & W. Kaiser, *Phys. Rev.* B1, 31 (1970).
10. A. Einstein, *Ann. Phys.* 33, 1275 (1910).
11. L. Brillouin, *Ann. Phys. (Paris)* 17, 88 (1922).
12. R.M. Herman & M.A. Gray, *Phys. Rev. Lett.* 19, 824 (1967).
13. G.I. Zaitsev, u. i. Kyzylasov, V.S. Starunov & I.L. Fabellinskii, *JETP Lett.* 6, 255 (1967); I.L. Fabellinskii, D.I. Mash, V.V. Morozov & V.S. Starunov, *Phys. Lett.* 27A, 253 (1968).
14. D.H. Rank, C.W. Cho, N.D. Foltz & T.A. Wiggins, *Phys. Rev. Lett.* 19, 828 (1969).
15. D. Pohl & W. Kaiser, *Phys. Rev.* B1, 31 (1970).
16. P. Debye, *Polar Molecules* (Dover, New York, 1929).
17. D.I. Mash, V.V. Morozov, V.S. Starunov & I.L. Fabellinskii, *JETP Lett.* 2,25 (1925).
18. M. Denariez & G. Bret, *Compt. Rend.* 265, 144 (1967); *Phys. Rev.* 171, 160 (1968).
19. R.Y. Chiao, P.L. Kelley & E. Garmire, *Phys. Rev. Lett.* 17, 1158 (1966); R.L. Carman, R.Y. Chiao & P.L. Kelley, *Phys. Rev. Lett.* 17, 1281 (1966).
20. W.H. Lowdermilk & N. Bloembergen, *Phys. Rev.* A5, 1423 (1972).
21. R.H. Pantell, G. Soncini & H.E. Puthoff, *IEEE J. Quant. Electron.* QE-4, 905 (1968).
22. V.P. Sukhamte & O.A. Wikffm *IEEE J. Quant. Electron.* QE-10, 870 (1974).
23. V.L. Granatstein, M. Herndon, R.K. Parker & S.P. Schlessinger, *IEEE J. Quant.*

Electron. QE-10, 651 (1974).

24. Y. Carmel, J. Ivers, R.E. Kribel & J. Nation, *Phys. Rev. Lett.* 33, 1278 (1974).

Βιβλιογραφία

Fabellinskii, I.L. *Molecular Scattering of Light* (Plenum, New York, 1968).

Kaiser, W. & M. Maier, in F.T. Arrecchi & E.O. Schutz-Dubois, eds., *Laser Handbook* (North Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 1077.

ΚΕΦΑΛΑΙΟ 12 – Διφωτονική απορρόφηση

Οι μονοφωτονικές και διφωτονικές μεταβάσεις ακολουθούν διαφορετικούς κανόνες επιλογής. Επομένως, λειτουργούν συμπληρωματικά η μια στην άλλη, ως φασματοσκοπικά εργαλεία. Ένα πολύ γνωστό παράδειγμα είναι η απορρόφηση υπερύθρων σε αντιδιαστολή με τη σκέδαση Raman. Σε μια διαδικασία διφωτονικής απορρόφησης, δυο φωτόνια απορροφούνται ταυτόχρονα, για να διεγείρουν ένα υλικό σύστημα. Με το να είναι μια διαδικασία υψηλότερης τάξης, η απορρόφηση διατομής του είναι συχνά πολλές τάξεις μεγέθους μικρότερη από την μονοφωτονική απορρόφηση. Ακόμη κι έτσι, η διφωτονική απορρόφηση είναι άμεσα παρατηρήσιμη με λέιζερ και έχει γίνει μια πολύτιμη φασματοσκοπική τεχνική, συμπληρωματική στη φασματοσκοπία γραμμικής απορρόφησης. Αυτό το κεφάλαιο, περιγράφει σύντομα την βασική θεωρία, τεχνικές μέτρησης και διάφορες εφαρμογές της διφωτονικής απορρόφησης.

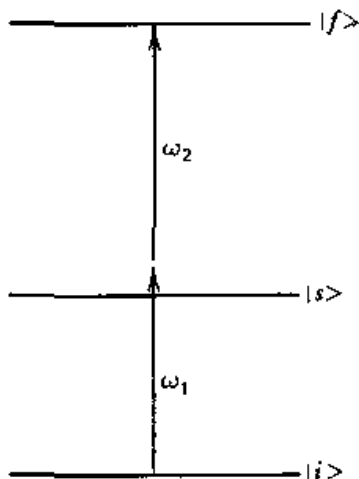
12.1 Θεωρία

Η πιθανότητα μετάβασης μιας διφωτονικής διαδικασίας πρωτοεξήχθη από την Göppert-Mayer χρησιμοποιώντας τη θεωρία διαταραχών δευτέρας τάξης.¹ Η παραγωγή δόθηκε στην Ενότητα 10.2 για την περίπτωση της σκέδασης Raman. Για τη διφωτονική απορρόφηση, η πιθανότητα μετάβασης ανά μονάδα χρόνου, ανά μονάδα όγκου, ανά μονάδα διαστήματος ενέργειας, μοιάζει πολύ με αυτήν στην (10.2) και δίνεται από την

$$\frac{dW_{fi}}{d(\hbar\omega_1)} = \frac{dW_{fi}}{d(\hbar\omega_2)} = \frac{8\pi^3 N\omega_1\omega_2}{\epsilon_1\epsilon_2} |\langle f|M|i\rangle|^2 |\langle \alpha_f|a_2 a_1|\alpha_i\rangle|^2 g(\hbar\Delta\omega),$$

$$M = \sum_s \left[\frac{\mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_2 |s\rangle \langle s| \mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_1}{\hbar(\omega_1 - \omega_{si})} + \frac{\mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_1 |s\rangle \langle s| \mathbf{e}\mathbf{r} \cdot \hat{\mathbf{e}}_2}{\hbar(\omega_2 - \omega_{si})} \right] \quad (12.1)$$

(δες Σχ. 12.1). Η σημειογραφία εδώ, ακολουθεί αυτήν της Ενότητας 10.2, με $\Delta\omega = \omega_1 + \omega_2 - \omega_{fi}$. Στην ημι-κλασσική προσέγγιση, το $|\langle \alpha_f|a_2 a_1|\alpha_i\rangle|^2 = \bar{n}_1 \bar{n}_2$, μπορεί να αντικατασταθεί από το $(\epsilon_1 \epsilon_2) |E_1|^2 |E_2|^2 / (2\pi)^2 (\hbar\omega_1)(\hbar\omega_2) = I_1 I_2 (\epsilon_1 \epsilon_2)^{1/2} / c^2 (\hbar\omega_1)(\hbar\omega_2)$, όπου I_1 και I_2 είναι οι εντάσεις της δέσμης στην ω_1 και ω_2 , αντίστοιχα. Οι δύο δέσμες



Σχ. 12.1 Διφωτονική διέγερση ενός συστήματος από $|i\rangle$ ως $|f\rangle$ μέσω της εικονικής μεσαίας κατάστασης $|s\rangle$.

που διαδίδονται κατά μήκος του z άξονα, σε ένα τέτοιο μη γραμμικό απορροφητικό μέσο, έχουν εξασθενίσεις, που διέπονται από την εξίσωση

$$\gamma = \frac{[dW_{fi}/d(\hbar\omega_2)](\rho_i - \rho_f)}{I_1 I_2}$$

$$\frac{dI_1}{dz} = -\omega_1 \gamma I_1 I_2, \quad \frac{dI_2}{dz} = -\omega_2 \gamma I_1 I_2 \quad (12.2), \text{ με } \gamma = \frac{8\pi^3 N}{\epsilon_1^{1/2} \epsilon_2^{1/2} c^2} |M_{fi}|^2 g(\hbar \Delta\omega)(\rho_i - \rho_f).$$

Όπως και στην περίπτωση Raman, η παραπάνω εξίσωση, μπορεί για γ να εξαχθεί επίσης από την προσέγγιση συζευγμένου κύματος. Φαίνεται εύκολα, ακολουθώντας μια παραγωγή, παρόμοια με αυτήν της Ενότητας 10.3, ότι ο συντελεστής διφωτονικής απορρόφησης γ είναι γραμμικώς ανάλογος προς το φανταστικό μέρος της μη γραμμικής επιδεκτικότητας τρίτης τάξης $\chi^{(3)}$ για την διαδικασία της διφωτονικής απορρόφησης:

$$\gamma = \frac{8\pi^2}{c^2 \epsilon_1^{1/2} \epsilon_2^{1/2}} \text{Im} \chi^{(3)}$$

$$\text{Im} \chi^{(3)} = N\pi |M_{fi}|^2 g(\hbar \Delta\omega)(\rho_i - \rho_f). \quad (12.3)$$

Το ίδιο αποτέλεσμα μπορεί φυσικά να ληφθεί, αντιμετωπίζοντας τη διφωτονική απορρόφηση, ως μια διαδικασία ανάμιξης κυμάτων, στην οποία τα δυο οπτικά κύματα στην ω_1 και ω_2 διεγείρουν από κοινού το κύμα διέγερσης του υλικού $\rho_{fi}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2)$. Η παραγωγή γίνεται με τον ίδιο τρόπο, με αυτόν στην Ενότητα 10.3.

Οι συζευγμένες εξισώσεις στην (12.2) μπορούν να λυθούν αναλυτικά,

σημειώνοντας ότι $\frac{1}{\omega_1} \frac{dI_1}{dz} = \frac{1}{\omega_2} \frac{dI_2}{dz}$, το οποίο είναι η συνέπεια της ύπαρξης ίσων αριθμών απορροφούμενων φωτονίων στις ω_1 και ω_2 σε μια διαδικασία διφωτονικής απορρόφησης. Αν I_{10} και I_{20} είναι οι εντάσεις της δέσμης στην είσοδο του μέσου, έχουμε

$$\frac{I_{10} - I_1}{\omega_1} = \frac{I_{20} - I_2}{\omega_2} \quad (12.4)$$

Η λύση της (12.2) μπορεί τότε να εξαχθεί, απαλείφοντας πρώτα είτε το I_1 είτε το I_2 . Υποθέτοντας ότι $I_{10} > I_{20}$, βρίσκουμε

$$\begin{aligned} I_1 &= I_{10} \frac{(I_{10}/\omega_1) - (I_{20}/\omega_2)}{(I_{10}/\omega_1) - (I_{20}/\omega_2) \exp(-Kz)}, \\ I_2 &= I_{20} \frac{[(I_{10}/\omega_1) - (I_{20}/\omega_2)] \exp(-Kz)}{(I_{10}/\omega_1) - (I_{20}/\omega_2) \exp(-Kz)}, \\ K &= \omega_1 \omega_2 \gamma \left(\frac{I_{10}}{\omega_1} - \frac{I_{20}}{\omega_2} \right). \end{aligned} \quad (12.5)$$

Αν $I_{10} \gg I_{20}$, τότε η εξασθένιση του I_1 είναι αμελητέα και η λύση γίνεται $I_1 \approx I_{10}$, $I_2 \approx I_{20} \exp(-Kz)$ (12.6).

Μια ειδική περίπτωση που παρουσιάζει ενδιαφέρον είναι όταν $\omega_1 = \omega_2$. Οι συμβάσεις της Ενότητας 2.9 θα πρέπει να χρησιμοποιηθούν για τη διαχείριση των συντελεστών της διφωτονικής απορρόφησης σε αυτήν την περίπτωση. Η εξίσωση (12.2)

γίνεται $\frac{dI_1}{dz} = -\omega_1 \gamma I_1^2$ (12.7) και η λύση παίρνει τη μορφή $I_1 = \frac{I_{10}}{1 + I_{10} \omega_1 \gamma z}$ (12.8).

Στην περίπτωση αδύναμης απορρόφησης, γίνεται $I_1 = I_{10}(1 - I_{10} \omega_1 \gamma z)$. (12.9).

Ο συντελεστής διφωτονικής απορρόφησης γ και η αντίστοιχη επιδεκτικότητα τρίτης τάξης $\chi^{(3)}$ είναι σε γενικές γραμμές, τανυστικές ποσότητες. Ανάλογα προς την σκέδαση Raman, οι κανόνες επιλογής μπορούν να εξαχθούν από τη θεωρία ομάδων. Αυτοί έχουν εξαχθεί από τους Inoue & Toyozawa² για 32 σημείο-ομάδες κρυστάλλου και από τον McClain³ για υγρά μορίων. Η σύζευξη τροχιάς spin έχει συμπεριληφθεί από τους Bader & Gold⁴ ως μια επέκταση του υπολογισμού των Inoue & Toyozawa.

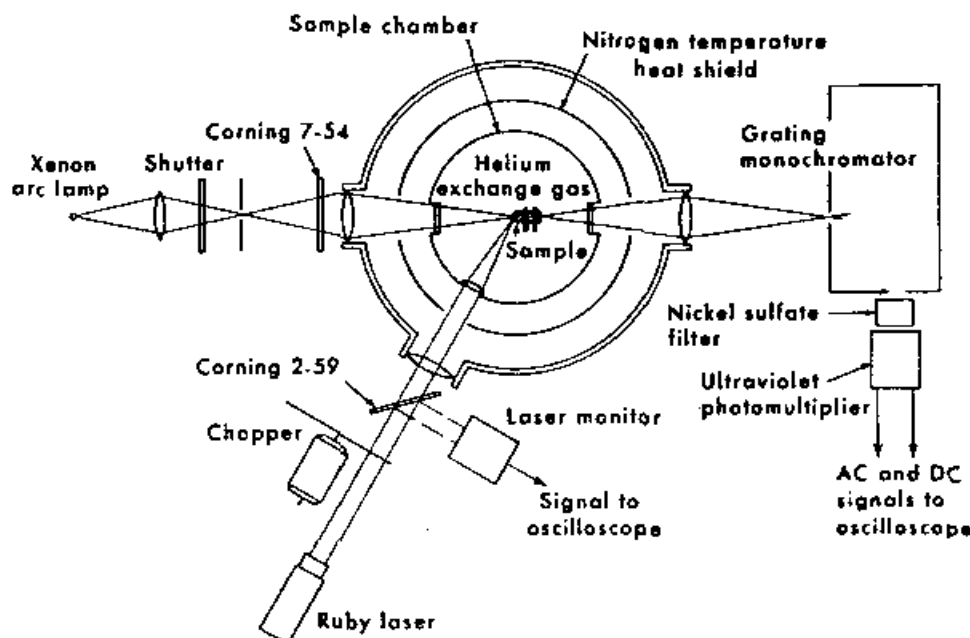
12.2 Πειραματικές τεχνικές

Η διφωτονική απορρόφηση μπορεί να μετρηθεί άμεσα από την εξασθένηση της δέσμης, αν η απορρόφηση είναι επαρκώς δυνατή. Ας υποθέσουμε, ως παράδειγμα έναν τυπικό συντελεστή διφωτονικής απορρόφησης με $\text{Im } \chi^{(3)} = 10^{-12}$ esu για ένα συμπυκνωμένο μέσο. Τότε, από τις (12.3) και (12.5), ο προκαλούμενος συντελεστής εξασθένησης K είναι της τάξης $\text{tn } 10^{-2}$ για $I_I \text{ μ} \text{μερικά MW/cm}^2$. Αυτό, αντιστοιχεί σε μια εξασθένηση $\text{μ} \text{1% της δέσμης που φέρει την } \omega_2$, καθώς αυτή διασχίζει το μέσο, μήκους 1cm και θα πρέπει να είναι εύκολα μετρήσιμη. Επομένως, η άμεση μέτρηση της εξασθένησης της διφωτονικής απορρόφησης είναι αρκετά εύκολη με λέιζερ παλμών, εκτός κι αν η $\chi^{(3)}$ είναι τάξεις μεγέθους μικρότερη από 10^{-12} esu.

Σε μια διφωτονική φασματοσκοπική εργασία, θα πρέπει μια από τις δυο δέσμες εισόδου να είναι ρυθμιζόμενη. Τα πρώτα χρόνια υπήρχαν διαθέσιμα μόνο λέιζερ με σταθερή συχνότητα. Η ρυθμιζόμενη δέσμη έγινε εφικτή, όταν συνδυάστηκε λάμπα πυρακτώσεως ή τόξου με έναν μονοχρωματική. Λήφθηκε ένα φάσμα διφωτονικής απορρόφησης, μετρώντας την προκαλούμενη από το λέιζερ εξασθένηση, ως συνάρτηση της συχνότητας της ρυθμιζόμενης δέσμης στο μέσο. Μια τυπική πειραματική διάταξη παρουσιάζεται στο Σχ. 12.2⁵. Με το πέρασμα των χρόνων, διάφορες ερευνητικές ομάδες κατασκεύασαν πιο εξεζητημένες, αυτοματοποιημένες εκδόσεις, αυτής της διάταξης.⁶ Η ασύμφωνη (ως πηγή) λυχνία μπορεί τώρα να αντικατασταθεί από ένα ρυθμιζόμενο λέιζερ με πολύ μεγάλη βελτίωση, όσον αφορά στο λόγο του σήματος προς το θόρυβο. Δυστυχώς, η δυνατότητα ρύθμισης ενός λέιζερ είναι ακόμα περιορισμένη. Η αντικατάσταση της λυχνίας από ένα ρυθμιζόμενο λέιζερ είναι προτιμητέα, μόνο αν ενδιαφερόμαστε για ένα στενό φασματικό εύρος.

Η μικρή εξασθένηση δέσμη είναι γενικά δύσκολο να μετρηθεί. Θα μπορούσε ίσως κάποιος να ήθελε να βρει νέες μεθόδους, μεγαλύτερης ευαισθησίας για τη μέτρηση της διφωτονικής απορρόφησης. Σε πολλά μέσα, η φωτοβολία ίσως εμφανιστεί μετά από διέγερση. Αυτό είναι κάτι, που συμβαίνει πάντα με τα αέρια, και είναι αρκετά συνηθισμένο σε συμπυκνωμένα μέσα, παρά το γεγονός, ότι το κβάντο που παράγεται, θα μπορούσε να είναι μικρό. Αφού η φωτοβολία είναι εύκολα ανιχνεύσιμη, παρέχει ένα μέσο για την παρακολούθηση της διφωτονικής απορρόφησης με μια ευαισθησία, πολλές τάξεις μεγέθους υψηλότερη από αυτήν της μέτρησης της εξασθένησης δέσμης. Το πρώτο πείραμα διφωτονικής απορρόφησης διεξήχθη, στην πραγματικότητα, με αυτήν την τεχνική.⁷ Όμως, στην φασματοσκοπία διφωτονικής απορρόφησης, θα πρέπει κάποιος να είναι σίγουρος, ότι το κβάντο που προκύπτει από τη φωτοβολία δεν εξαρτάται έντονα από τη συχνότητα διέγερσης, διαφορετικά, το φάσμα θα εμφανιστεί αλλοιωμένο.

Η διφωτονική διέγερση κοντά ή πάνω από το επίπεδο ιονισμού ενός ατόμου ή μορίου ίσως οδηγήσει σε ιονισμό και τα παραγόμενα ηλεκτρόνια και ιόντα είναι εύκολα ανιχνεύσιμα.⁸ Επομένως, ο φωτο-ιονισμός, μπορεί επίσης να είναι μια ευαίσθητη μέθοδος για την ανίχνευση της διφωτονικής απορρόφησης.



Σχ. 12.2 Σχηματικό διάγραμμα της πειραματικής διάταξης για φασματοσκοπία διφωτονικής απορρόφησης.
(Βιβλ. Αναφ. 5)

Η εφαρμογή του, όμως, περιορίζεται στην περίπτωση, όπου η τελική διεγερμένη κατάσταση είναι κοντά ή πάνω από το επίπεδο ιονισμού. Το παρατηρούμενο φάσμα είναι το φάσμα διφωτονικής απορρόφησης, σταθμισμένο από τον λόγο ιονισμού, που σε γενικές γραμμές εξαρτάται από την ενέργεια της τελικής διεγερμένης κατάστασης.

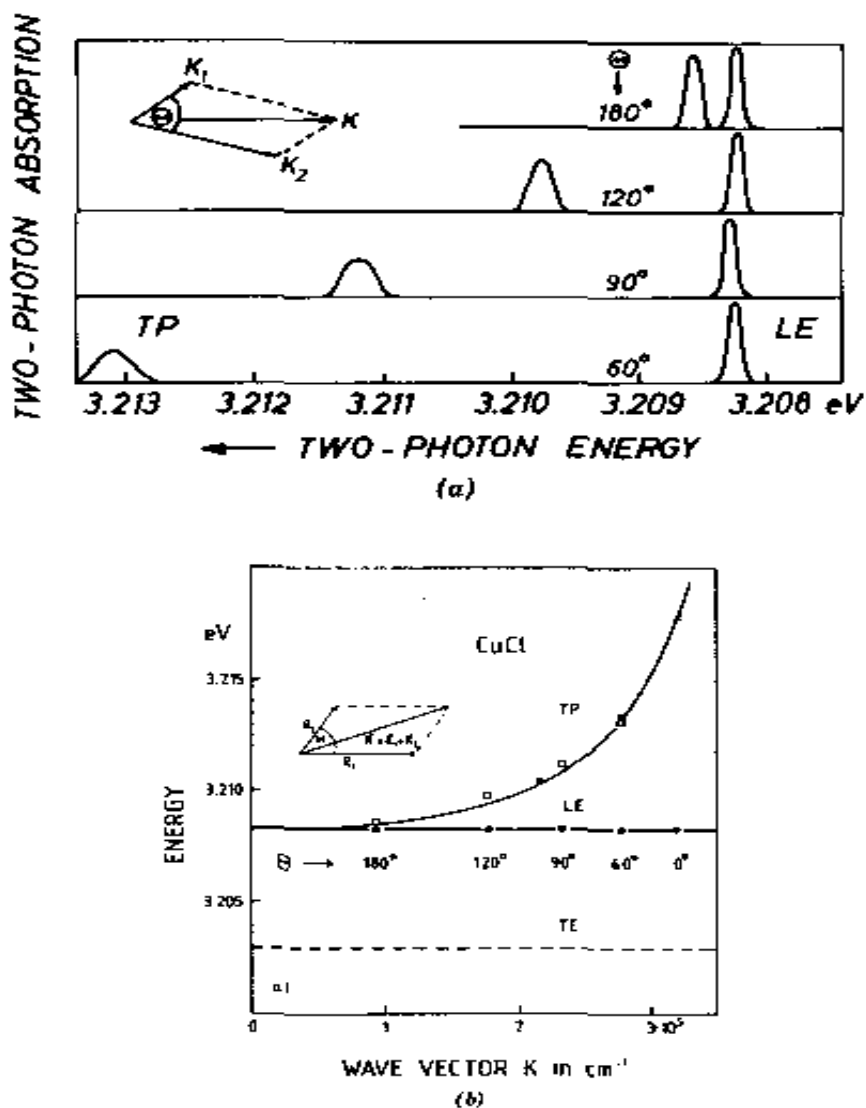
Με την ίδια λογική, η φωτοαγωγιμότητα μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί για να ανιχνεύσει τη διφωτονική απορρόφηση σε ένα στερεό. Αν η θερμότητα που απελευθερώνεται μέσω της χαλάρωσης, μετά τη διφωτονική διέγερση, μπορεί να παρακολουθηθεί, τότε μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί και για τη μέτρηση της διφωτονικής απορρόφησης. Ένα παράδειγμα είναι η φωτοακουστική φασματοσκοπία, στην οποία η θερμότητα που απελευθερώνεται, εμφανίζεται ως ένα ακουστικό σήμα, το οποίο είναι ανιχνεύσιμο είτε μέσω μικροφώνου είτε μέσω μορφοτροπέα. Λιγότερο συμβατικές μέθοδοι ανίχνευσης της διφωτονικής απορρόφησης, συμπεριλαμβάνουν την φωτοεκπομπή, τη φωτοδιάσπαση, τη φωτοχημική αντίδραση και το οπτογαλβανικό φαινόμενο.

12.3 Φασματοσκοπία διφωτονικής απορρόφησης

Στερεά

Οι πρώτες φασματοσκοπικές μετρήσεις διφωτονικής απορρόφησης διεξήχθησαν από τους Hopfield κ.α.⁵ σε alkali halides κοντά στα άκρα της ζώνης, χρησιμοποιώντας τη διάταξη που φαίνεται στο Σχ. 12.2. Αφού οι κρύσταλλοι έχουν αντίστροφη συμμετρία, οι καταστάσεις κοντά στα άκρα της ζώνης έχουν λίγο έως πολύ συγκεκριμένες ισοτιμίες. Επομένως, τα φάσματα μονοφωτονικής και διφωτονικής απορρόφησης, αναμένονται να είναι διαφορετικά, όπως φαίνεται στο Σχ. 12.3. Συγκεκριμένα, καμιά κορυφή εξιτονίου δεν είναι παρούσα στο φάσμα διφωτονικής απορρόφησης. Το αποτέλεσμα χρησιμοποιήθηκε από τους Hopfield κ.α. για να δοκιμάσουν την εγκυρότητα διαφόρων μοντέλων εξιτονίου για alkali halides.

Η διφωτονική απορρόφηση σε ημιαγωγούς είναι το αντικείμενο σε πολυάριθμες μελέτες.⁹ Υπήρχε η ελπίδα ότι η τεχνική θα οδηγούσε σε νέες πληροφορίες και νέες δομές ζωνών. Απέχοντας κατά πολύ από αυτές τις προσδοκίες, τα αποτελέσματα ήταν απογοητευτικά, κυρίως επειδή, πρώτον, οι δομές των ζωνών εκείνων των ημιαγωγών ήταν ήδη πολύ γνωστές και δεύτερον, τα δεδομένα διφωτονικής απορρόφησης δεν είναι πάντα ακριβή, εξαιτίας των διακυμάνσεων του λέιζερ και τρίτον οι φασματικές περιοχές που καλύπτονται από διφωτονική απορρόφηση είναι πολύ περιορισμένες. Παρόλα αυτά, η διφωτονική απορρόφηση είναι ένα χρήσιμο εργαλείο για να μελετηθούν οι διεγέρσεις και τα εξιτόνια – πολαριτόνια σε έναν ημιαγωγό. Με τη μονοφωτονική απορρόφηση, μόνο η ύπαρξη των εξιτονίων-πολαριτονίων μπορεί να φανεί από την παρατήρηση της ζώνης Reststrahlen. Με την διφωτονική απορρόφηση, η καμπύλη διασποράς των εξιτονίων-πολαριτονίων μπορεί να μετρηθεί.¹⁰ Ένα παράδειγμα δίνεται στο Σχ. 12.4. Σε αυτήν την περίπτωση, τα εξιτόνια μπορούν να διεγερθούν και από τις μονοφωτονικές και από τις διφωτονικές μεταβάσεις.



Σχ. 12.4 (α) Κορυφές διφωτονικής απορρόφησης κοντά στην πρώτη εξιτονική διέγερση του CuCl για διαφορετικές γωνίες θ μεταξύ των δυο εισερχόμενων ακτινών στο 1,5 K. (β) Καμπύλες διασποράς του εγκάρσιου εξιτονίου πολαριτόνιου (TP) και του διαμήκους εξιτονίου (LE) του CuCl. Οι γραμμές είναι θεωρητικές καμπύλες που υπολογίστηκαν από δεδομένα ανακλαστικότητας. Τα διαφανή τετράγωνα και οι συμπαγείς κύκλοι είναι αποτελέσματα που έχουν μετρηθεί από διφωτονική απορρόφηση (και οι σταυροί είναι από γένεση δεύτερης αρμονικής). [D.Fröhlich, *Festkörperprobleme XXI*, 363 (1981).]

Η παρατηρούμενη διφωτονική απορρόφηση οφείλεται κατά ένα μέρος στη διέγερση των εξιτονίων και κατά ένα άλλο μέρος στη γένεση αθροίσματος συχνοτήτων (ή δεύτερης αρμονικής).¹¹ Η σωστή θεωρητική αντιμετώπιση του προβλήματος, ακολουθεί πιστά την παραγωγή στην Ενότητα 10.7.¹²

Η διφωτονική απορρόφηση έχει επίσης χρησιμοποιηθεί για να ανιχνεύσει τις καταστάσεις των εξιτονικών μορίων¹³, οι οποίες δε μπορούν να επιτευχθούν από μονοφωτονική διέγερση. Σε άλλες εφαρμογές, η διφωτονική απορρόφηση μπορεί να

χρησιμοποιηθεί για να αποφέρει ομοιόμορφη διέγερση των φορέων στον όγκο. Αυτό θα μπορούσε να είναι χρήσιμο και σε μελέτες φυσικής και σε μελέτες συσκευών.

Η διφωτονική απορρόφηση μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να ανιχνεύσει διεγερμένες καταστάσεις που δε μπορούν να επιτευχθούν από την μονοφωτονική διέγερση. Σε μόρια με κέντρα συμμετρίας, οι ηλεκτρονικές καταστάσεις μπορούν να διαιρεθούν σε άρτιες [*gerade, (g)*] και περιττές [*ungerade, (u)*]. Οι μονοφωτονικές μεταβάσεις από *g* σε *g* ή από *u* σε *u*, απαγορεύονται, αλλά οι διφωτονικές μεταβάσεις επιτρέπονται. Επομένως, με τη διφωτονική απορρόφηση, είναι τώρα πιθανό να μελετηθούν νέες ομάδες ηλεκτρονικών, δονητικών και περιστροφικών καταστάσεων, οι οποίες δε μπορούν να επιτευχθούν από μονοφωτονική απορρόφηση. Πολυάριθμα παραδείγματα παραθέτονται στην βιβλιογραφική αναφορά 14. Ο McClain³ έχει δείξει ότι παρόλο που τα μόρια είναι τυχαία προσανατολισμένα σε ένα αέριο ή υγρό, η διφωτονική απορρόφηση με $\omega_1 \neq \omega_2$ παρουσιάζει ακόμη ιδιότητες πόλωσης, οι οποίες μας επιτρέπουν να καθορίσουμε τη συμμετρία των διεγερμένων καταστάσεων των μορίων. Επομένως, η διφωτονική απορρόφηση έχει γίνει ένα σημαντικό εργαλείο στο πεδίο της μοριακής φασματοσκοπίας, όπως έχει αποδείξει ο μεγάλος αριθμός των αναφορών που παραθέτονται στην βιβλιογραφική αναφορά 14.

Άτομα

Η διφωτονική απορρόφηση μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί για να μελετηθούν οι ηλεκτρονικές καταστάσεις ενός ατόμου, οι οποίες δε μπορούν να ανιχνευτούν από τη μονοφωτονική απορρόφηση. Παραδείγματα αποτελούν οι καταστάσεις *ns* και *nd* στα άτομα αλκαλίου. Εξαιτίας των στοιχείων μεγάλης μετάβασης του πίνακα μεταξύ των ατομικών καταστάσεων, η διφωτονική απορρόφηση σε ατομικά αέρια είναι γενικά πολύ εντονότερη από ότι στα μοριακά αέρια. Παρόλα αυτά, είναι ακόμα πολύ αδύναμη για να παρατηρηθεί από τη μέτρηση της εξασθένισης της δέσμης. Ευτυχώς, άλλες μέθοδοι, όπως η φωτο-εκπομπή και ο φωτο-ιονισμός, μπορούν να χρησιμοποιηθούν. Είναι αρκετά ευαίσθητοι για ανιχνεύσουν τη διφωτονική απορρόφηση σε έναν ατμό, πίεσης λιγότερο από 1 torr. Με δέσμες αντίθετα διαδιδόμενες, ίδιας συχνότητας, η διφωτονική απορρόφηση στα αέρια μπορεί να αποφέρει φασματικές γραμμές χωρίς Doppler. Αυτό περιγράφεται στο Κεφάλαιο 13. Οι εφαρμογές της διφωτονικής απορρόφησης στις μελέτες του ατόμου για υψηλές Rydberg καταστάσεις, η κβαντική θεωρία και οι αυτο-ιονισμοί, συζητιούνται στο Κεφάλαιο 18.

Βιβλιογραφικές αναφορές

1. M. Göppert-Mayer, *Ann. Physik* 9, 273 (1931).
2. M. Inoue & Y. Toyozawa, *J. Phys. Soc. Japan* 20, 363 (1965).
3. W. M. McClain, *J. Chem. Phys.* 55, 2789 (1971).
4. T.R. Bader & A. Gold, *Phys. Rev.* 171, 997 (1968).
5. J.J. Hopfield, J.M. Worlock & K.J. Park, *Phys. Rev. Lett.* 11, 414 (1963); J.J. Hopfield & J.M. Worlock, *Phys. Rev.* 137, A1455 (1965).
6. Δες, για παράδειγμα, B. Stagninus, D. Fröhlich & T. Caps, *Rev. Sci. Inst.* 39, 1129 (1968); M.W. Dowley & W.L. Peticolas, *IBM Res. Dev.* 12, 188 (1968); R.L. Swofford & W.M. McClain, *Rev. Sci. Inst.* 44, 978 (1973).
7. W. Kaiser & C.G.B. Garrett, *Phys. Rev. Lett.* 7, 229 (1961).
8. Δες Κεφάλαιο 18 για τον πολυφωτονικό ιονισμό.
9. Δες, για παράδειγμα, C.C. Lee & H.Y. Fan, *Phys. Rev.* B9, 3502 (1974).
10. D. Fröhlich, E. Mohler & P. Wiesner, *Phys. Rev. Lett.* 26, 554 (1971).
11. D.C. Hauseisen & H. Mahr, *Phys. Rev. Lett.* 26, 838 (1971).
12. D. Boggett & R. Loudon, *Phys. Rev. Lett.* 28, 1951 (1972).
13. G.M. Gale & A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* 32, 727 (1974); L.L. Chase, N. Peyghambarian, G. Grymberg & A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* 42, 1231 (1979).
14. M.W. McClain, *Ann. Rev. Phys. Chem.* 31, 559 (1980).

Βιβλιογραφία

- Goid, A., in R. Glauber, ed., *Quantum Optics* (Academics Press, New York, 1969), p. 397.
- McClain, W.M., *Acc. Chem. Res.* 7, 129 (1974).
- McClain, W.M., *Ann. Rev. Phys. Chem.* 31, 559 (1980).
- Mahr, H., in H. Rabin & C.L. Tang, eds., *Treatise in Quantum Electronics* (Academic Press, New York, 1975), p. 472
- Worlock, J.M., in F.T. Arrecchi & E.O. Schulz-Dubois, eds., *Laser Handbook* (North-Holland Publishing Co., Amsterdam, 1972), p. 1323.