HIỂU TOÀN BỘ QUANG PHI TUYẾN SAU 4 PHÚT

Trong phần này, chúng tôi sẽ giúp các bạn có một cái nhìn tổng quan về môn quang phi tuyến. Các bạn sẽ biết được nguyên nhân xuất hiện của ngành quang phi tuyến, đối tượng nghiên cứu của nó là gì, các ý tưởng cơ bản của quang phi tuyến. Điều đó có nghĩa là bạn đã hiểu toàn bộ về quang phi tuyến nhưng chỉ ở mức độ sơ lược. Còn các phân tích chi tiết và các phương pháp cụ thể chúng ta sẽ được tiếp cận ngay sau bài học này.

Trong cơ học, chúng ta đã biết rằng để một con lắc lò xo dao động điều hòa thì lực tác động lên nó phải có độ lớn nằm trong một khoảng giới hạn nào đó. Lúc này, lực F chỉ làm cho quả nặng dịch chuyển một đoạn nhỏ x khỏi vị trí cân bằng. Mối quan hệ của chúng được biểu diễn bằng biểu thức:

$$F = -kx \tag{1}$$

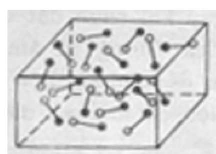
Như vậy, chúng ta thấy trong trường hợp này, đáp ứng của hệ con lắc lò xo (được biểu diễn bởi x) tỉ lệ tuyến tính với lực tác động từ bên ngoài (được biểu diễn bởi F).

Tuy nhiên, khi lực F tăng lên vượt ra ngoài khoảng giá trị mà ta vừa nói ở trên thì độ dịch chuyển vị trí của quả nặng khỏi vị trí cân bằng x không còn tỉ lệ tuyến tính với lực F nữa mà mối quan hệ giữa chúng bây giờ có thể được biểu diễn bởi một hệ thức phi tuyến nào đó.

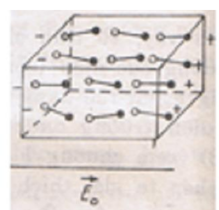
Quan sát định luật Hooke chi phối dao động điều hòa của con lắc lò xo: Xem tập tin “HookesLaw[1]” trong thư mục Loi_mo_dau.

Thực hiện các thí nghiệm về định luật Hooke: Làm thí nghiệm “mass-spring-lab[1]” trong thư mục Loi_mo_dau.

Trong quang học* cũng có những hiện tượng tương tự. Chẳng hạn, chúng ta hãy xét một môi trường điện môi. Một số chất điện môi trong nó đã tồn tại sẵn các lưỡng cực điện, ví dụ như H_2O, NaCl,v.v….Một số chất điện môi khác không có sẵn các lưỡng cực điện, ví dụ như H_2, N_2,…..



Điện môi khi chưa có điện trường



Điện môi khi có điện trường

Đối với loại điện môi thứ nhất, khi chưa có trường điện ngoài, các lưỡng cực phân tử sắp xếp hoàn toàn hỗn loạn theo mọi phương do chuyển động nhiệt. Tổng của các momen lưỡng cực phân tử sẽ bằng 0 nên vecto phân cực điện môi cũng bằng 0 (Cần nhắc lại rằng vecto phân cực điện môi bằng tổng các momen lưỡng cực điện trên một đơn vị thể tích). Khi có điện trường ngoài với cường độ không quá lớn tác động vào thì các momen lưỡng cực điện sẽ hướng theo chiều điện trường. Người ta chứng minh được, lúc này độ phân cực điện môi tỉ lệ tuyến tính với cường độ trường điện tác dụng theo hệ thức:

$$\overrightarrow{P} = \varepsilon_0 \chi \overrightarrow{E}$$

*Hiện tượng phân cực điện môi thể hiện sự đáp ứng của môi trường điện môi với trường điện ngoài. Trong các giáo trình Điện học đại cương, người ta hay khảo sát hiện tượng này. Vì vậy, bạn có thể nghĩ nó là đối tượng nghiên cứu của ngành điện học. Nhưng thật ra ánh sáng cũng là sóng điện từ. Hay nói cách khác, quang học cũng nghiên cứu sự tác động của trường điện từ (chủ yếu là trường điện) lên các môi trường vật chất. Vì vậy, hiện tượng phân cực điện môi cũng là đối tượng nghiên cứu của quang học. Đặc biệt là quang phi tuyến.

Đối với loại điện môi thứ hai, mối quan hệ giữa độ phân cực điện môi và trường điện tác dụng vào cũng tuân theo hệ thức tương tự.

Mở tập tin "electric3" trong thư mục "Loi_mo_dau" để thực hành thí nghiệm hiện tượng phân cực điện môi.

Xem tập tin "Hien_tuong_phan_cuc_dien_moi" trong thư mục "Loi_mo_dau" để biết cách thực hiện thí nghiệm.

Tuy nhiên, khi cường độ điện trường tăng đến một giới hạn nào đó thì P và E không còn tỉ lệ tuyến tính với nhau nữa mà chúng liên hệ với nhau qua biểu thức phi tuyến:

$$\overrightarrow{P} = \varepsilon_0(\chi \overrightarrow{E} + \chi_2 \overrightarrow{E^2} + \chi_3 \overrightarrow{E^3} + ...)$$

Quy ước: Đôi khi, chúng ta có thể dùng các kí tự in đậm để biểu diễn các đại lượng vecto và các kí tự thường để biểu diễn đại lượng vô hướng.

Cách biểu diễn độ phân cực thành chuỗi lũy thừa theo E có hai mục đích:

- Phản ánh được đặc tính phi tuyến của hệ vật chất.
- Có thể lấy tùy ý bao nhiêu số hạng trong chuỗi lũy thừa căn cứ vào mức độ phi tuyến của môi trường.

Trong trường hợp đang xét, chúng ta thấy độ phân cực điện môi ***P*** đặc trưng cho đáp ứng của môi trường vật chất và điện trường ***E*** là đại lượng đặc trưng cho yếu tố tác động bên ngoài. Như vậy, nói một cách tổng quát, quang học phi tuyến khảo sát những hiện tượng quang học trong đó những đại lượng đặc trưng cho đáp ứng của môi trường vật chất (không chỉ riêng điện môi) và những đại lượng đặc trưng cho yếu tố tác động từ bên ngoài có mối quan hệ phi tuyến với nhau. Mà như trên ta đã nói, các đại lượng đặc trưng cho yếu tố tác động bên ngoài phải tăng vượt quá một giới hạn nào đó thì các hiệu ứng phi tuyến mới xuất hiện. Thông thường, người ta kích thích môi trường quang học bằng ánh sáng. Tức là yếu tố tác động bên ngoài mà ta từng nói ở trên thường là ánh sáng. Với ánh sáng thông thường, thành phần điện trường trong nó có cường độ nhỏ vì thế không thể làm phát sinh các hiện tượng phi tuyến. Tuy nhiên, với ánh sáng Laser, thành phần điện trường trong nó có thể đạt đến cường độ cỡ $1.2\times10^8 V/m$. Cường độ điện trường này có thể đủ lớn để gây ra sự đánh thủng không khí (cỡ $3\times10^6 V/m$) và chỉ nhỏ hơn vài bậc so với cường độ trường điện để giữ các nguyên tử với nhau (cỡ $5\times10^{11} V/m$) đối với Hidro, số hạng này cũng còn được gọi là cường độ trường điện nguyên tử đặc trưng E_{at}). Với cường độ điện trường lớn như vậy, khi tác động vào môi trường vật chất thì đáp ứng của môi trường vật chất sẽ không còn tỉ lệ tuyến tính với tác động của nó nữa.

Như vậy, có thể nói, quang phi tuyến nghiên cứu tương tác của ánh sáng Laser cường độ cao với môi trường vật chất.

Ở trên, tôi vừa trình bày về đối tượng nghiên cứu của quang phi tuyến. Phần các phương pháp nghiên cứu của quang phi tuyến sẽ được trình bày cụ thể trong từng chương của giáo trình.

Giáo trình quang phi tuyến này dành cho những học viên cao học năm đầu. Mục đích của sách là giới thiệu lĩnh vực quang phi tuyến trong đó nhấn mạnh những khái niệm cơ bản và giúp cho học viên sau khi học xong giáo trình này có thể tự mình tiếp tục thực hiện nghiên cứu trong lĩnh vực này. Sách này có thể được dùng cho các học viên sau đại học chuyên nghành quang phi tuyến, quang lượng tử, điện tử học lượng tử, quang điện tử, và quang học hiện đại. Nếu lược bỏ những phần khó, sách cũng có thể được dùng cho các sinh viên ở mức độ nâng cao.Trái lại, một số phần hơi nâng cao trong sách sẽ thích hợp cho những học viên cao học năm cuối và những nhà khoa học.

Lĩnh vực quang phi tuyến cho đến nay đã được ba mươi tuổi, nếu lấy mốc từ phát minh tạo ra sóng hài bậc II của Franken và các cộng sự năm 1961. Sự quan tâm về lĩnh vực này đã được phát triển liên tục kể từ khi nó ra đời, và lĩnh vực quang phi tuyến trải dài từ những nghiên cứu cơ bản về tương tác của ánh sáng với vật chất đến những ứng dụng ví dụ như biến đổi tần số Laser và công tắc quang học. Quả thực, lĩnh vực quang phi tuyến phát triển quá mạnh đến nỗi một cuốn sách khó có thể bao quát mọi vấn đề đang được quan tâm trong hiện tại. Thêm vào đó, bởi vì tôi muốn sách này có thể đến được với những học viên cao học năm đầu, tôi đã thử giải quyết những vấn đề được đề cập theo kiểu độc lập một cách vừa phải. Cách tiếp cận này cũng hạn chế số chủ đề có thể được giải quyết. Chiến lược của tôi trong việc quyết định những đề tài nào cần được đưa vào là đề tài đó phải nhấn mạnh được những khía cạnh cơ bản của quang phi tuyến, và chỉ đưa vào những ứng dụng và những kết quả thí nghiệm những khi cần thiết để minh họa những vấn đề cơ bản này. Nhiều chủ đề đặc biệt mà tôi chọn mang giá trị lịch sử đặc biệt.

Sách được sắp xếp như sau:

Chương 1 giới thiệu về quang phi tuyến từ sự phác họa độ cảm phi tuyến. Độ cảm phi tuyến là một đại lượng được dùng để xác định sự phân cực phi tuyến của môi trường vật chất theo cường độ của trường điện tác dụng vào. Vì thế nó cung cấp một cơ sở nền tảng để mô tả hiện tượng quang phi tuyến.

Chương 2 tiếp tục mô tả quang học phi tuyến bằng cách mô tả sự lan truyền của sóng ánh sáng qua môi trường quang phi tuyến bằng phương trình sóng quang học.Chương này giới thiệu một khái niệm quan trọng là sự kết hợp pha và mô tả chi tiết một hiện tượng quang phi tuyến quan trọng là *sự tạo sóng hài bậc II* và *sự tạo tần số phách* và *tần số tổng*.

Chương 3 kết thúc phần giới thiệu của sách bằng cách đưa ra sự mô tả lí thuyết cơ học lượng tử của độ cảm quang phi tuyến. Đầu tiên, biểu thức đơn giản của độ cảm phi tuyến được tìm ra bằng cách sử dụng phương trình Schrodinger, và sau đó biểu thức chính xác hơn được tìm ra bằng cách sử dụng phương trình chuyển động ma trận mật độ. Tiên đề ma trận mật độ được tự xây dựng trong quá trình xem xét chi tiết chương này và đây cũng là đề tài cho các học viên thảo luận.

Chương 4 giới thiệu về *chiết suất phi tuyến*. Những tính chất, kể cả những tính chất tenxo của chiết suất phi tuyến được thảo luận chi tiết, và những quá trình vật lí dẫn đến chiết suất phi tuyến, ví dụ như sự phân cực điện tử không cộng hưởng và sự định hướng phân tử cũng được mô tả.

Chương 5 nói về *nguồn gốc phân tử của đáp ứng quang phi tuyến*. Chương này nghiên cứu sự phi tuyến điện tử trong phép gần đúng dừng, mô hình bán thực nghiệm của độ cảm phi tuyến, sự đáp ứng phi tuyến của polime liên hợp, mô hình điện tích liên kết của sự phi tuyến quang học, quang phi tuyến của vật liệu Chiral, và quang phi tuyến của tinh thể lỏng.

Chương 6 dành cho việc mô tả *sự phi tuyến của chiết suất do sự đáp ứng của nguyên tử 2 mức*. Những chủ đề liên quan được thảo luận trong chương này bao gồm sự bão hòa, sự mở rộng cường độ, sự dịch chuyển Stark quang học, dao động Rabi, và những trạng thái nguyên tử ghép cặp.

Chương 7 nói về *ứng dụng của chiết suất phi tuyến*. Chủ đề được khảo sát là liên hợp pha quang học, sự tự hội tụ, sự ghép 2 chùm hạt, sự lan truyền xung, và cấu trúc của soliton quang học.

Chương 8 đến chương 10 nói về tán xạ ánh sáng cảm ứng và tự phát và chủ đề liên quan là âm quang học.

Chương 8 giới thiệu lĩnh vực này bằng cách đưa vào *lí thuyết tán xạ ánh sáng tự phát* và bằng cách mô tả chủ đề thực hành quan trọng là *âm quang học*. ***Chương 9*** mô tả *tán xạ Brillouin cảm ứng* và *tán xạ Rayleigh cảm ứng*. Những chủ đề có liên quan đến phần này là tán xạ ánh sáng do sự nhiễu động trong vật liệu có thể được mô tả theo những biến nhiệt động lực học chuẩn là áp lực và entropy. Cũng được đưa vào trong chương này là sự mô tả liên hiệp pha bởi tán xạ Brillouin cảm ứng và sự mô tả lí thuyết tán xạ Brillouin cảm ứng trong chất khí. ***Chương 10*** mô tả tán xạ Raman cảm ứng và tán xạ Rayleigh-Wing cảm ứng. Những tiến trình này có liên quan đến tán xạ ánh sáng từ sự nhiễu lọan liên quan đến vị trí của nguyên tử trong phân tử.

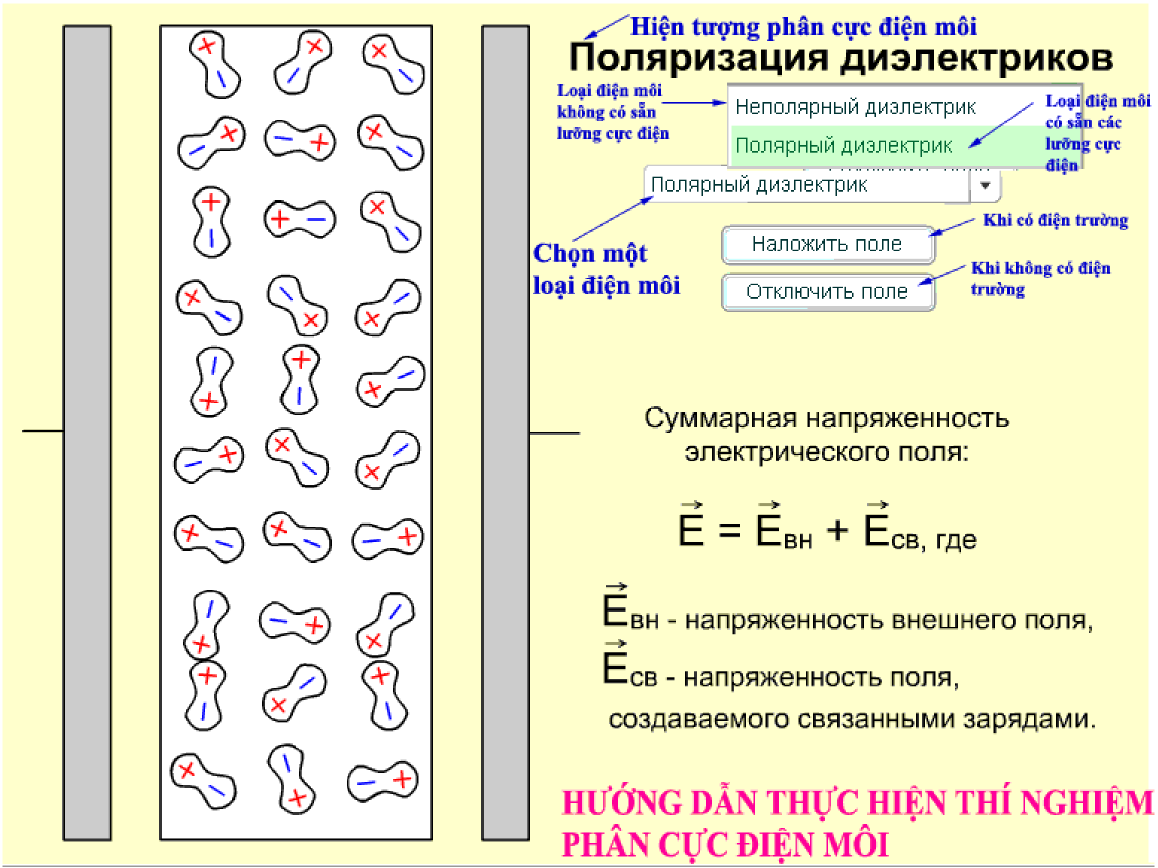
Chương 11 nói về *hiệu ứng chiết quang và hiệu ứng điện quang* (khác với hiệu ứng quang điện). Chương này bắt đầu bằng sự mô tả hiệu ứng điện quang và mô tả cách dùng những hiệu ứng này để sản xuất những bộ điều khiển quang học. Sau đó chương này tiếp tục mô tả hiệu ứng chiết quang, hiệu ứng này là tương tác quang phi tuyến do hiệu ứng điện quang. Việc sử dụng hiệu ứng chiết quang trong sự liên kết 2 chùm tia và sự tổ hợp 4 sóng cũng được mô tả.

Chương 12 nói về sự cố cảm ứng quang học và sự hấp thụ nhiều photon.

Sách kết thúc ở ***chương 13*** nói về quang phi tuyến trong trường cường độ siêu cao và siêu nhanh.

Tp Hồ Chí Minh, 2/11/2009

Góp ý về nội dung xin gửi đến: thanhlam1910_2006@yahoo.com
Hoặc frbwrthes@gmail.com



Để có thể hiểu được dễ dàng quang phi tuyến, các bạn cần có một ít kiến thức về Vật lí laser và Vật lí tinh thể. Những tài liệu có liên quan đến các môn học này được gửi đính kèm cùng với sách này. Trong đó, các bạn đặc biệt chú ý đến các bài giảng rất cô đọng và dễ hiểu của PGS.TS Trương Quang Nghĩa. Kèm theo sách này gồm có:

- Một thư mục mang tên Loi_mo_dau trong đó có các thí nghiệm ảo để minh họa cho phần đầu tiên.
- Các bài giảng Vật lí tinh thể của PGS.TS Trương Quang Nghĩa.
- Một bài báo cáo về Vật lí Laser của tôi về Sự phát đơn mode và đa mode.

Mục lục

CHƯƠNG I: ĐỘ CẢM QUANG PHI TUYẾN

1.1. Giới thiệu quang phi tuyến

Quang phi tuyến nghiên cứu những hiện tượng xuất hiện do hệ quả của sự biến đổi tính chất quang học của hệ vật chất khi có sự hiện diện của ánh sáng. Thông thường, chỉ những chùm sáng Laser cường độ đủ mạnh mới có thể làm biến đổi tính chất quang học của hệ vật chất. Quả thực, sự ra đời của quang phi tuyến thường được tính từ phát minh của Franken về sự tạo sóng hài bậc II vào năm 1961, một thời gian ngắn sau khi Maiman phát minh ra tia Laser vào năm 1960. Hiện tượng quang phi tuyến là khách quan, chúng xuất hiện do sự đáp ứng của môi trường vật chất khi có trường quang học đặt vào và đáp ứng ấy phụ thuộc phi tuyến vào cường độ của trường quang học. Chẳng hạn, sự phát sinh sóng hài bậc II xuất hiện do phần đáp ứng nguyên tử phụ thuộc bậc II vào cường độ của trường quang học. Do đó, cường độ của sóng được tạo ra tại tần số hài bậc II có khuynh hướng tăng theo bình phương của cường độ ánh sáng Laser đặt vào.

Để mô tả chính xác hơn về tính phi tuyến quang học, chúng ta hãy xem xét tổng số momen lưỡng cực trên một đơn vị thể tích, hoặc độ phân cực $\tilde{P}(t)$ của hệ thống vật liệu phụ thuộc vào cường độ điện trường $\tilde{E}(t)$ của trường quang học đặt vào như thế nào. Trong quang học thông thường (chẳng hạn quang tuyến tính), độ phân cực cảm ứng phụ thuộc tuyến tính vào cường độ điện trường theo hệ thức

$$\tilde{P}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \tilde{E}(t) \qquad (1.1.1)$$

ở đây hằng số tỉ lệ $\chi^{(1)}$ được gọi là độ cảm tuyến tính .

Trong quang học phi tuyến, sự đáp ứng quang học thường được mô tả bằng cách tổng quát hóa phương trình (1.1.1) qua sự biểu diễn độ phân cực $\tilde{P}(t)$ như một chuỗi lũy thừa theo cường độ điện trường

$$\begin{aligned}\tilde{P}(t) = \; & \varepsilon_0[\chi^{(1)}\tilde{E}(t) + \chi^{(2)}\tilde{E}^2(t) + \chi^{(3)}\tilde{E}^3(t) + ...] \\ & \equiv \tilde{P}^{(1)}(t) + \tilde{P}^{(2)}(t) + \tilde{P}^{(3)}(t) + ... \end{aligned} \qquad (1.1.2)$$

Đại lượng $\chi^{(2)}$ và $\chi^{(3)}$ lần lượt là độ cảm quang phi tuyến bậc 2 và bậc 3. Để đơn giản, chúng ta đã xem trường $\tilde{P}(t)$ và $\tilde{E}(t)$ là những đại lượng vô hướng trong khi viết phương trình (1.1.1) và phương trình (1.1.2). Trong phần 1.3 chúng ta sẽ chỉ ra cách để khảo sát bản chất vectơ của trường; trong trường hợp như thế $\chi^{(1)}$ sẽ trở thành tenxơ hạng II, $\chi^{(2)}$ trở thành tenxơ hạng III, v.v…Với cách viết phương trình (1.1.1) và (1.1.2) dưới dạng như trên, chúng ta đã giả sử rằng sự phân cực tại thời điểm t chỉ phụ thuộc vào giá trị tức thời của cường độ trường điện. Giả thiết môi trường đáp ứng tức thời cũng có nghĩa là (theo hệ thức Kramers-Kronig) môi trường phải không mất mát và không tán sắc. Chúng ta cũng sẽ thấy trong phần 1.3 cách để mở rộng những phương trình này cho môi trường mất mát và tán sắc. Nói chung, độ cảm phi tuyến phụ thuộc vào tần số của trường đặt vào, nhưng theo giả thiết về sự đáp ứng tức thời chúng ta có thể xem chúng là hằng số.

Chúng ta sẽ gọi $\tilde{P}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \tilde{E}^2(t)$ là độ phân cực phi tuyến bậc II và $\tilde{P}^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} \tilde{E}^3(t)$ là độ phân cực phi tuyến bậc III. Sau này chúng ta sẽ thấy rằng những quá trình vật lí xuất hiện do độ phân cực bậc II sẽ khác biệt so với những quá trình xuất hiện do độ phân cực bậc III. Thêm vào đó, trong phần 1.5 chúng ta sẽ chỉ ra rằng tương tác quang phi tuyến bậc II chỉ xuất hiện trong tinh thể không đối xứng xuyên tâm, nghĩa là, trong những tinh thể không thể hiện tính chất đối xứng đảo. Bởi vì chất lỏng, chất khí, và chất rắn vô định hình (ví dụ như thủy tinh), và nhiều tinh thể có tính chất đối xứng đảo, $\chi^{(2)}$ sẽ triệt tiêu trong những môi trường như thế, và do đó chúng không thể tạo ra tương tác quang học phi tuyến bậc 2. Ngược lại, tương tác quang học phi tuyến bậc 3(được mô tả bởi độ cảm $\chi^{(3)}$) có thể xuất hiện cả trong môi trường đối xứng xuyên tâm và không xuyên tâm.

Chúng ta sẽ thấy trong phần sau của sách này cách tính giá trị độ cảm phi tuyến cho những cơ chế vật lí khác nhau dẫn đến sự phi tuyến quang học. Bây giờ, chúng ta sẽ thực hiện một đánh giá đơn giản về bậc độ lớn của những đại lượng này trong trường hợp tổng quát mà ở đó sự phi tuyến là do đáp ứng của môi trường với trường điện bên ngoài (xem Armstrong và các cộng sự, 1962). Người ta tiên đoán rằng số hạng hiệu chỉnh bậc thấp nhất $\tilde{P}^{(2)}$ sẽ có thể gần bằng số hạng biểu diễn đáp ứng tuyến tính $\tilde{P}^{(1)}$ khi độ lớn của trường $\tilde{E}$ đặt vào cùng bậc độ lớn với cường độ trường điện nguyên tử đặc trưng $E_{at} = e/4\pi\varepsilon_0 a_0^2$, ở đây e là điện tích của electron và $a_0 = 4\pi\varepsilon_0\hbar^2/me^2$ là bán kính quỹ đạo Bohr của nguyên tử hidro ($\hbar$ là hằng số Planck chia cho 2π, và m là khối lượng của electron). Thay số vào, chúng ta thấy rằng $E_{at} = 5.14 \times 10^{11} V/m$. Suy ra dưới điều kiện kích thích không cộng hưởng độ cảm bậc II sẽ bằng $\chi^{(1)}/E_{at}$. Đối với vật chất cô đặc $\chi^{(1)}$ bằng 1 , và do đó $\chi^{(2)}$ sẽ bằng $1/E_{at}$,

hoặc :

$$\chi^{(2)} \approx 1.94 \times 10^{-12} m/V \qquad (1.1.3)$$

Tương tự, chúng ta suy ra rằng $\chi^{(3)} = \chi^{(1)}/E_{at}^2$, đối với vật chất cô đặc:

$$\chi^{(3)} \approx 3.78 \times 10^{-24} m^2/V^2. \qquad (1.1.4)$$

Những tiên đóan này quả thực hòan tòan chính xác, chúng ta có thể thấy điều này khi so sánh những giá trị này với những giá trị đo bằng thực nghiệm của $\chi^{(2)}$ (chẳng hạn xem bảng 1.5.3) và $\chi^{(3)}$ (Chẳng hạn xem bảng 4.3.1).

Như vừa ta vừa nói, đối với vật chất cô đặc $\chi^{(1)}$ bằng 1. Kết quả này có thể được giải thích bằng kinh nghiệm hoặc có thể được giải thích một cách chặt chẽ hơn bằng cách chú ý rằng $\chi^{(1)}$ là tích của mật độ nguyên tử và độ phân cực nguyên tử. Mật độ hạt N của vật chất cô đặc có bậc vào cỡ $(a_0)^{-3}$, và độ phân cực không cộng hưởng có bậc vào cỡ $(a_0)^3$. Vì thế, chúng ta suy ra rằng $\chi^{(1)}$ bằng 1.

Chúng ta cũng có thể biểu diễn độ cảm bậc 2 và bậc 3 theo những hằng số vật lí cơ bản. Sau đó chúng ta tìm ra được $\chi^{(2)} \approx (4\pi\varepsilon_0)^3\hbar^4/m^2e^5$ và $\chi^{(3)} \approx (4\pi\varepsilon_0)^6\hbar^8/m^4e^{10}$ Xem Boyd (1999) để được giải thích chi tiết hơn.

Cách thông thường nhất để mô tả hiện tượng quang phi tuyến là biểu diễn độ phân cực $\tilde{P}(t)$ theo cường độ trường điện đặt vào $\tilde{E}(t)$, như chúng ta đã từng làm trong phương trình (1.1.2). Lí do tại sao độ phân cực giữ vai trò then chốt trong việc mô tả hiện tượng quang phi tuyến là: độ phân cực theo thời gian có thể đóng vai trò như nguồn của những thành phần mới của trường điện từ. Chẳng hạn, chúng ta sẽ thấy trong phần 2.1 phương trình sóng trong môi trường quang phi tuyến thường có dạng :

$$\nabla^2\tilde{E} - \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2\tilde{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\frac{\partial^2\tilde{P}^{NL}}{\partial t^2} \qquad (1.1.5)$$

ở đây *n* là chiết suất tuyến tính thông thường và *c* là tốc độ ánh sáng trong chân không. Chúng ta có thể hiểu biểu thức này như là phương trình sóng không đồng nhất trong đó độ phân cực $\tilde{P}^{NL}$ gắn với đáp ứng phi tuyến điều khiển trường điện $\tilde{E}$. Phương trình này nói lên rằng, bất cứ khi nào $\frac{\partial^2\tilde{P}^{NL}}{\partial t^2}$ khác không , điện tích sẽ được gia tốc, và theo lí thuyết Larmor khi điện tích được gia tốc trong điện trường thì nó sẽ tạo ra bức xạ điện từ.

Nên chú ý rằng chuỗi lũy thừa được biễu diễn bởi phương trình (1.1.2) không cần phải hội tụ. Trong trường hợp ngược lại công thức biểu thị mối liên hệ giữa sự đáp ứng của vật liệu và độ lớn của trường đặt vào cần phải được biểu diễn theo cách khác. Môt ví dụ như thế là trong kích thích cộng hưởng của một hệ nguyên tử, một phần đáng kể những nguyên tử có thể rời khỏi trạng thái cơ bản. Hiệu ứng bão hòa lọai này được mô tả trong chương 6. Ngay cả dưới điều kiện không cộng hưởng, phương trình (1.1.2) cũng không còn đúng nếu cường độ của trường Laser đặt vào có thể so sánh với cường độ trường nguyên tử đặc trưng E_{at}, bởi vì sự quang ion hóa mạnh có thể xuất hiện trong những điều kiện này. Để tham khảo sau này, chúng ta chú ý rằng cường độ Laser quan hệ với trị số đỉnh của trường E_{at} theo hệ thức:

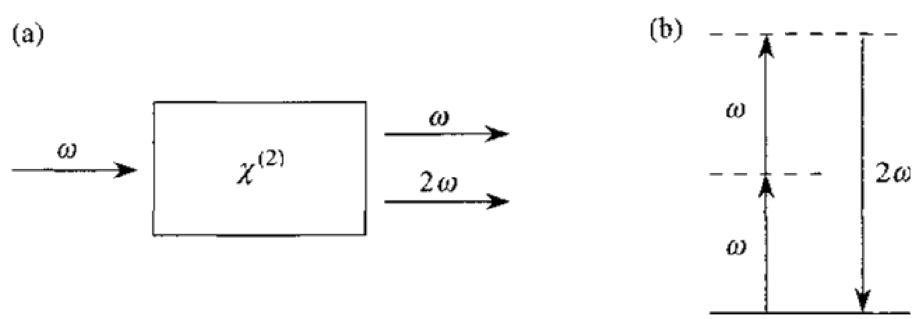
$$I_{at} = \frac{1}{2}\varepsilon_0 c E_{at}^2 = 3.5\times10^{16} W/cm^2 \qquad (1.1.6)$$

Chúng ta cũng sẽ thấy trong các phần sau của sách những quá trình quang phi tuyến biểu thị những đặc điểm định tính khác nhau như thế nào khi bị kích thích trong những trường siêu mạnh như thế.

1.2. Mô tả các quá trình quang phi tuyến

Trong phần này, chúng ta sẽ mô tả định tính sơ lược một số quá trình quang phi tuyến. Thêm vào đó, chúng ta cũng sẽ chỉ ra những quá trình này có thể được mô tả theo những thành phần phi tuyến trong phương trình (1.1.2)* như thế nào. Mục đích của chúng tôi là cung cấp cho đọc giả một sự chỉ dẫn về những loại hiện tượng quang phi tuyến có thể xuất hiện. Những tương tác này sẽ được mô tả chi tiết hơn trong những phần sau của sách. Trong phần này chúng ta cũng đưa vào một số quy ước về kí hiệu và một vài khái niệm cơ sở của quang học phi tuyến.

* Cần nhớ rằng phương trình(1.1.2) chỉ có giá trị cho môi trường không mất mát và không tán sắc.



Hình 1.2.1 (a) Sơ đồ hình học của sự tạo sóng hài bậc 2, (b) Biểu đồ mức năng lượng mô tả sự tạo sóng hài bậc 2

1.2.1. Sự phát sinh sóng hài bậc 2:

Chúng ta xét một hiện tượng tương tác quang học phi tuyến điển hình. Đó là quá trình phát sinh sóng hài bậc II như được minh họa trong hình 1.2.1. Ở đây cường độ điện trường của chùm tia laser tới được biểu diễn như sau:

$$\tilde{E}(t) = Ee^{-i\omega t} + c.c. \tag{1.2.1}$$

c.c (complex conjugate) là liên hợp phức của số hạng đầu, tức là $c.c = Ee^{i\omega t}$. Với quy ước này, $\tilde{E}(t)$ sẽ là số thực và mang ý nghĩa vật lí. Quy ước này sẽ được dùng từ nay về sau.

Chùm tia này được chiếu vào tinh thể có độ cảm bậc II $\chi^{(2)}$ khác 0. Theo phương trình (1.1.2), độ phân cực phi tuyến được tạo ra trong tinh thể này là $\tilde{P}^2(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \tilde{E}^2(t)$

Hoặc tương đương

$$\tilde{P}^2(t) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} EE^* + (\varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2 e^{-2\omega t} + c.c) \tag{1.2.2}$$

c.c là liên hợp phức của số hạng đứng trước nó.

Chúng ta thấy rằng độ phân cực bậc II bao gồm sự có mặt của tần số 0 (số hạng đầu) và tần số 2ω (số hạng thứ 2). Theo phương trình sóng bức xạ (1.1.5), số hạng thứ hai có thể dẫn đến sự tạo bức xạ sóng hài bậc 2. Chú ý rằng số hạng thứ nhất trong phương trình (1.2.2) không dẫn đến sự tạo bức xạ điện từ (bởi vì đạo hàm cấp II theo thời gian của nó sẽ bằng 0); nó dẫn đến một quá trình được gọi là sự chỉnh lưu quang học. Đó là một quá trình tạo ra trường tĩnh điện trong tinh thể phi tuyến.

Dưới những điều kiện thực nghiệm thích hợp, quá trình tạo sóng hài bậc II có thể quá hiệu quả đến nổi gần như tòan bộ năng lượng trong bức xạ tới tại tần số ω đều được chuyển sang bức xạ tần số hài bậc II 2ω. Một ứng dụng phổ biến của sự tạo sóng hài bậc II là để chuyển sóng phát ra từ máy phát laser có tần số cố định sang một vùng phổ khác. Chẳng hạn, Laser Nd: YAG họat động trong vùng hồng ngọai gần tại bước sóng 1.06 μm. Sự tạo sóng hài bậc II thường được dùng để chuyển bước sóng của bức xạ này đến 0.53 μm, ở giữa vùng phổ nhìn thấy.

Sự tạo sóng hài bậc II có thể được hình dung bằng cách xem xét tương tác theo quan điểm trao đổi photon giữa những thành phần có tần số khác nhau của trường. Theo hình 1.2.1, hai photon có tần số ω bị hủy và một photon có tần số 2ω cùng lúc đó cũng được tạo ra trong một quá trình cơ học lượng tử. Đường đậm trong hình biểu diễn trạng thái cơ bản của nguyên tử, những đường nét đứt biễu diễn những mức ảo . Những mức này không phải là những mức năng lượng riêng của nguyên tử tự do, mà biểu diễn năng lượng kết hợp của một trong những trạng thái năng lượng riêng của nguyên tử và của một hoặc nhiều photon của trường bức xạ. Lí thuyết về sự tạo sóng hài bậc II sẽ được xây dựng đầy đủ hơn trong phần 2.6.

1.2.2. Sự phát sinh tần số tổng và tần số phách

Chúng ta hãy xem xét trường hợp chùm ánh sáng tới môi trường phi tuyến được đặc trưng bởi một độ cảm phi tuyến $\chi^{(2)}$. Chùm sáng này bao gồm 2 thành phần tần số khác nhau, chúng được biểu diễn dưới dạng

$$\tilde{E}(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c. \tag{1.2.3}$$

Do đó, theo giả thiết trong phương trình (1.1.2) , đóng góp bậc II vào độ phân cực phi tuyến có dạng

$$\tilde{P}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \tilde{E}^2(t), \tag{1.2.4}$$

Chúng ta tìm được độ phân cực phi tuyến là

$$\begin{aligned} \tilde{P}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} [E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} \\ + 2E_1 E_2^* e^{-(\omega_1-\omega_2)t} + c.c] + 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} [E_1 E_1^* + E_2 E_2^*]. \end{aligned} \tag{1.2.5}$$

c.c là liên hợp phức của cả cụm
$E_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + E_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} + 2E_1 E_2^* e^{-(\omega_1-\omega_2)t}$

Sẽ thuận tiện hơn nếu biểu diễn kết quả này bằng kí hiệu xích ma

$$\tilde{P}^{(2)}(t) = \sum_n P(\omega_n) e^{-i\omega_n t}, \tag{1.2.6}$$

ở đây phép lấy tổng được thực hiện trên những tần số âm và dương ω_n. Vì thế, biên độ phức của những thành phần có tần số khác nhau của độ cảm phi tuyến được cho bởi

$$P(2\omega_1) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^2 \quad \text{(SHG)},$$

$$P(2\omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_2^2 \quad \text{(SHG)},$$

$$P(\omega_1+\omega_2) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2 \ \text{(SFG)}, \tag{1.2.7}$$

$$P(\omega_1-\omega_2) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2^* \quad \text{(DFG)},$$

$$P(0) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} (E_1 E_1^* + E_2 E_2^*) \qquad \text{(OR)}.$$

Ở đây chúng ta đặt tên của mỗi biểu thức theo tên của những quá trình vật lí mà nó mô tả, chẳng hạn như sự tạo sóng hài bậc 2 (SHG), sự tạo tần số tổng (SFG), sự tạo tần số phách (DFG), và sự chỉnh lưu quang học (OR). Chú ý rằng, tương ứng với kí hiệu phức của chúng ta, cũng có một sự tương ứng tại miền âm của những tần số khác không được cho ở trên, nghĩa là :

$$P(-2\omega_1) = \chi^{(2)} E_1^{*2}, \qquad P(-2\omega_2) = \chi^{(2)} E_2^{*2},$$

$$P(-\omega_1 - \omega_2) = 2\chi^{(2)} E_1^* E_2^*, \qquad P(\omega_2 - \omega_1) = 2\chi^{(2)} E_2 E_1^*,$$

Tuy nhiên, bởi vì mỗi số hạng này đơn giản chỉ là liên hợp phức những đại lượng được cho trong phương trình (1.2.7), do đó không cần thiết phải tính tóan rõ ràng cả những thành phần tần số dương và âm.*

* Không phải tất cả đồng nghiệp khác trong quang phi tuyến sử dụng những quy ước của chúng ta về các trường và độ phân cực được cho bởi phương trình (1.2.3) và (1.2.6). Quy ước thông thường khác định nghĩa biên độ trường theo

$$\tilde{E}(t) = \frac{1}{2}\left(E'_1 e^{-i\omega_1 t} + E'_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.\right),$$

$$\tilde{P}^2(t) = \frac{1}{2}\sum_n P'(\omega_n) e^{i\omega_n t},$$

ở đây biểu thức thứ hai tổng được lấy theo tất cả các tần số âm và dương. Dùng quy ước này, người ta có thể tìm ra được

$$P'(2\omega_1) = \frac{1}{2}\chi^{(2)} E'^2_1 \qquad P'(2\omega_2) = \frac{1}{2}\chi^{(2)} E'^2_2$$

$$P'(\omega_1 + \omega_2) = \chi^{(2)} E'_1 E'_2 \qquad P'(\omega_1 - \omega_2) = \chi^{(2)} E_1 E'^*_2$$

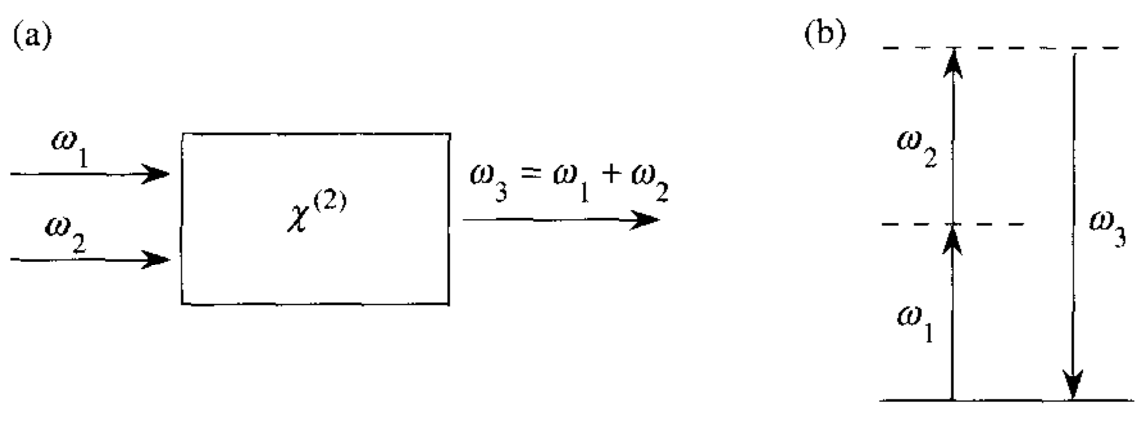
$$P'(0) = \chi^{(2)} (E'_1 E'^*_1 + E'_2 E'^*_2).$$

Chú ý rằng những biểu thức này khác với những biểu thức ở (1.2.7) bởi hệ số 1/2.

Chúng ta thấy từ phương trình (1.2.7) rằng 4 thành phần tần số khác không xuất hiện trong độ phân cực phi tuyến. Tuy nhiên, thông thường chỉ một trong số các thành phần này sẽ xuất hiện trong bức xạ được phát ra với cường độ có thể quan sát được. Lí do là vì độ phân cực phi tuyến có thể tạo ra một tín hiệu đầu ra có năng suất cao chỉ khi nào điều kiện kết hợp pha (sẽ được thảo luận chi tiết trong phần 2.7) được thõa mãn, và thông thường thì điều kiện này không thể được thõa mãn cho tất cả các thành phần tần số của độ phân cực phi tuyến. Trong thực nghiệm, người ta thường chọn thành phần tần số được phát ra bằng cách chọn độ phân cực của bức xạ đầu vào và sự định hướng của tinh thể phi tuyến thích hợp.

1.2.3. Sự phát sinh tần số tổng

Chúng ta hãy xét quá trình tạo tần số tổng được minh họa trong hình 1.2.2. Theo phương trình (1.2.7), biên độ phức của độ cảm phi tuyến mô tả quá trình này được cho bởi biểu thức



Hình 1.2.2 Sự tạo tần số tổng, (a) Mô hình của tương tác, (b) Mô tả mức năng lượng.

$$P(\omega_1+\omega_2)=2\chi^{(2)}E_1E_2. \qquad (1.2.9)$$

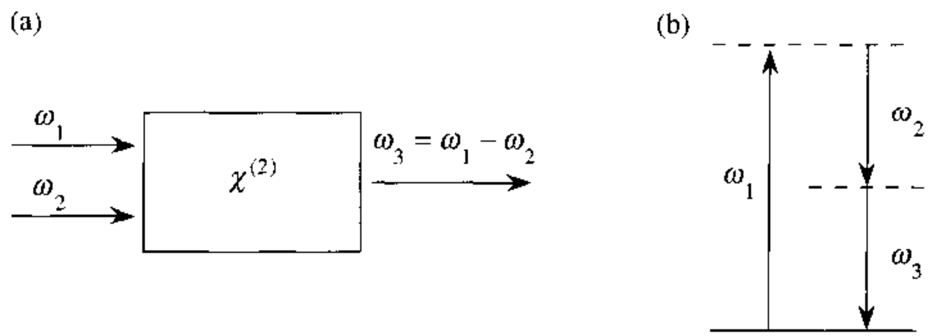
Về nhiều mặt, quá trình phát sinh tần số tổng giống với quá trình phát sinh sóng hài bậc II, chỉ khác nhau một điểm duy nhất là trong sự phát sinh tần số tổng hai sóng đầu vào có tần số khác nhau. Một ứng dụng của sự tạo dao động tần số tổng là để tạo ra bức xạ điều chỉnh được trong vùng tử ngọai bằng cách chọn một trong những sóng đầu vào là đầu ra của laser nhìn thấy có tần số cố định và cái còn lại là đầu ra của laser nhìn thấy có tần số điều chỉnh được. Lí thuyết về sự tạo tần số tổng được xây dựng đầy đủ hơn trong phần 2.2 và 2.4.

1.2.4. Sự tạo tần số phách

Quá trình tạo tần số phách được mô tả bởi độ phân cực phi tuyến có dạng

$$P(\omega_1 - \omega_2) = 2\chi^{(2)} E_1 E_2^*. \qquad (1.2.10)$$

Và được minh họa trong hình 1.2.3. Ở đây tần số của sóng được tạo ra khác với tần số sóng của những trường đặt vào. Sự tạo tần số phách có thể được dùng để tạo ra bức xạ hồng ngoại có thể điều chỉnh được bằng cách trộn sóng đầu ra của laser nhìn thấy có thể điều chỉnh tần số được với sóng đầu ra của laser nhìn thấy có tần số không đổi. Nói một cách gần đúng, sự tạo tần số phách và sự tạo tần số tổng là những quá trình rất giống nhau. Tuy nhiên, một sự khác nhau quan trọng giữa 2 quá trình này có thể được suy ra từ sự mô tả quá trình tạo tần số theo giản đồ mức năng lượng photon (hình 1.2.3b). Chúng ta thấy rằng sự bảo tòan năng lượng đòi hỏi rằng khi mỗi photon được tạo ra tại tần số phách $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$, photon với tần số đầu vào cao hơn (ω_1) phải bị hủy đi và một photon với tần số đầu vào thấp hơn (ω_2) phải được tạo ra.



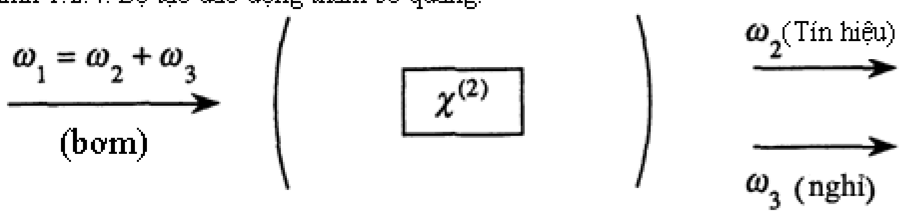
Hình 1.2.3 Sự tạo tần số phách, (a) Mô hình tương tác, (b) Mô tả mức năng lượng.

Vì thế, trường đầu vào tần số thấp hơn ω_2 được khuếch đại bởi quá trình tạo tần số phách. Vì lí do này, quá trình tạo tần số phách cũng được gọi là khuếch đại tham số quang. Theo sự mô tả mức năng lượng photon của sự tạo tần số phách, nguyên tử đầu tiên hấp thụ một photon tần số ω_1 và nhảy lên mức ảo cao nhất. Mức này phân rã bằng một tiến trình phát 2 photon bị cảm ứng do sự hiện diện của trường ω_2, là trường đã có sẵn rồi. Sự phát 2 photon có thể xuất hiện thậm chí nếu trường ω_2 không được đặt vào. Trường được tạo ra trong trường hợp như thế yếu hơn rất nhiều, bởi vì chúng được tạo ra từ sự phát 2 photon đồng thời từ một mức ảo. Quá trình này được gọi là hùynh quang tham số và đã được quan sát trong thực nghiệm (Harris và các cộng sự, 1967; Byer và Harris, 1968). Lí thuyết về sự tạo tần số phách được khảo sát chi tiết hơn trong phần 2.5

1.2.5. Bộ dao động tham số quang

Chúng ta vừa thấy rằng trong quá trình tạo tần số phách sự hiện diện của bức xạ tại tần số ω_2 và ω_3 có thể cảm ứng sự phát thêm photon tại những tần số này. Nếu tinh thể phi tuyến được sử dụng trong quá trình này được đặt trong một buồng cộng hưởng quang học, như được chỉ ra trong Hình 1.2.4, trường ω_2 và/hoặc ω_3 có thể được tạo ra với những giá trị lớn. Một thiết bị như thế được gọi là bộ tạo dao động tham số quang.

Hình 1.2.4: Bộ tạo dao động tham số quang.



Gương ở cuối buồng cộng hưởng có độ phản xạ cao tại tần số ω_2 và/hoặc ω_3. Tần số đầu ra được điều vhirnh bởi sự định hướng của tinh thể.

Bộ tạo dao động tham số quang được sử dụng thường xuyên tại bước sóng hồng ngọai, ở đó những nguồn bức xạ điều chỉnh được không thể sử dụng. Một thiết bị như thế là điều chỉnh được bởi vì có rất nhiều ω_2 nhỏ hơn ω_1 có thể thõa mãn điều kiện $\omega_2 + \omega_3 = \omega_1$ đối với một vài tần số ω_3. Trong thực tế, người ta điều khiển tần số đầu ra của bộ tạo dao động tham số quang học bằng cách điều chỉnh điều kiện thích ứng pha, sẽ được thảo luận trong phần 2.7. Tần số của trường đặt vào ω_1 thường được gọi là tần số bơm, tần số đầu ra mong muốn được gọi là tần số tín hiệu, và tần số còn lại, không mong muốn được gọi là tần số nghỉ.

1.2.6. Quá trình quang học phi tuyến bậc 3

Tiếp theo chúng ta sẽ xem xét thành phần bậc 3 của độ phân cực phi tuyến

$$\tilde{P}^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} \tilde{E}(t)^3. \quad (1.2.11)$$

Đối với trường hợp tổng quát trong đó trường $\tilde{E}(t)$ bao gồm những thành phần tần số khác nhau, biểu thức cho $\tilde{P}^{(3)}(t)$ rất phức tạp. Vì lí do này, đầu tiên chúng ta xem xét trường hợp đơn giản trong đó trường đặt vào đơn sắc

$$\tilde{E}(t) = E_0 \cos\omega t. \quad (1.2.12)$$

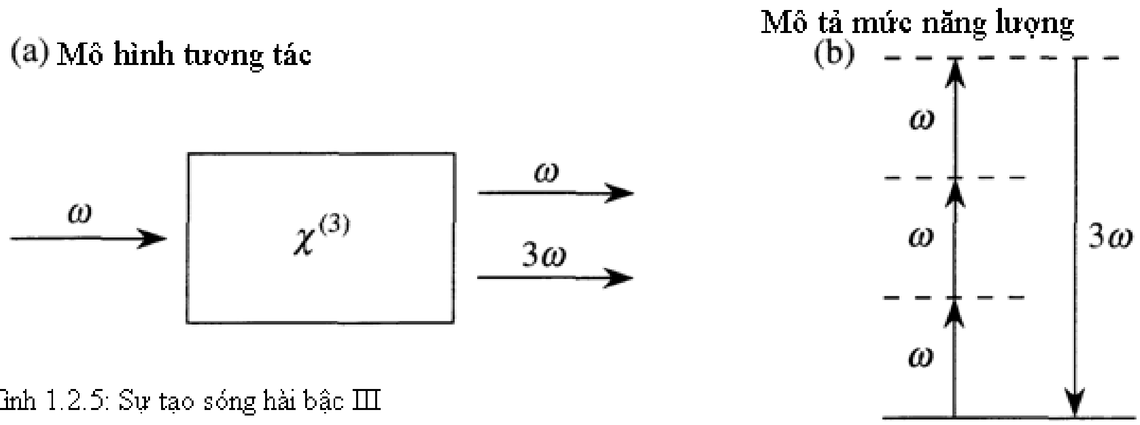
Do đó, bằng cách sử dụng đồng nhất thức $\cos^3\omega t = \frac{1}{4}\cos 3\omega t + \frac{3}{4}\cos\omega t$, độ phân cực phi tuyến có thể được biểu diễn là

$$\tilde{P}^{(3)}(t) = \frac{1}{4}\varepsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \cos 3\omega t + \frac{3}{4}\varepsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \cos\omega t. \quad (1.2.13)$$

Ý nghĩa của một trong 2 số hạng trong biểu thức này được mô tả vắn tắt ngay bên dưới.

1.2.7 Sự tạo sóng hài bậc 3

Số hạng đầu trong phương trình (1.2.13) mô tả phát sinh tần số 3ω do trường ngoài có tần số ω. Số hạng này dẫn đến sự tạo sóng hài bậc 3, nó được minh họa trong Hình 1.2.5. Theo sự mô tả photon của quá trình này, được chỉ trong phần (b) của hình, 3 photon tần số ω bị hủy đi và một photon tần số 3ω được tạo ra trong mỗi quá trình sơ cấp.



Hình 1.2.5: Sự tạo sóng hài bậc III

1.2.8 Chiết suất phụ thuộc cường độ

Số hạng thứ hai trong phương trình (1.2.13) mô tả sự đóng góp phi tuyến vào độ phân cực của tần số trường đến; vì thế số hạng này dẫn đến sự đóng góp phi tuyến vào chiết suất đã biết của một sóng ở tần số ω . Chúng ta sẽ thấy trong phần 4.1 rằng chiết suất với sự hiện diện của loại phi tuyến này có thể được biểu diễn như sau:

$$n = n_0 + n_2 I \qquad (1.2.14a)$$

ở đây n_0 là hệ số khúc xạ thông thường (chẳng hạn, tuyến tính hoặc cường độ nhỏ), ở đây

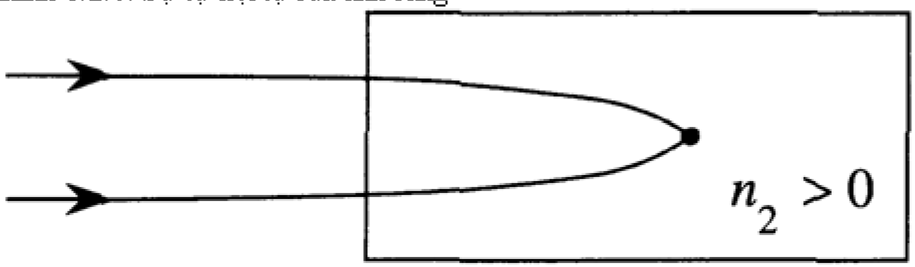
$$n_2 = \frac{3}{2n_0^2\varepsilon_0 c}\chi^{(3)} \qquad (1.2.14b)$$

Là một hằng số quang học đặc trưng cho cường độ của sự phi tuyến quang học, và ở đây $I = \frac{1}{2}n_0\varepsilon_0 c E_0^2$ là cường độ của sóng tới.

Sự tự hội tụ

Một trong những quá trình có thể xuất hiện như hệ quả của chiết suất phụ thuộc cường độ là hiện tượng tự hội tụ, được minh họa trong hình 1.2.6. Quá trình này có thể xuất hiện khi một chùm ánh sáng phân bố cường độ theo phương ngang không đồng nhất truyền qua vật liệu có n_2 dương. Trong điều kiện này, vật liệu đóng vai trò như một thấu kính hội tụ, làm cho chùm tia cong hướng vào nhau. Quá trình này cực kì quan trọng trong thực tế bởi vì cường độ vết điều tiêu của chùm tia tự hội tụ thường đủ lớn để dẫn đến sự phá hủy quang học vật liệu. Quá trình tự hội tụ được mô tả chi tiết hơn trong phần 7.1.

Hình 1.2.6: Sự tự hội tụ của ánh sáng



1.2.9. Tương tác bậc 3 (trường hợp tổng quát)

Chúng ta hãy khảo sát dạng của độ phân cực phi tuyến

$$\tilde{P}^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} \tilde{E}(t)^3. \tag{1.2.15a}$$

bị cảm ứng bởi một trường đặt vào chứa ba thành tần số khác nhau:

$$\tilde{E}(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + E_3 e^{-i\omega_3 t} + c.c. \tag{1.2.15b}$$

Khi chúng ta tính toán $\tilde{E}(t)^3$, chúng ta tìm thấy biểu thức kết quả chứa đựng 44 thành phần tần số khác nhau, nếu chúng ta xem những tần số dương và âm là khác nhau. Những tần số này là:

$$\omega_1, \omega_2, \omega_3, 3\omega_1, 3\omega_2, 3\omega_3, (\omega_1+\omega_2+\omega_3), (\omega_1+\omega_2-\omega_3), (\omega_1+\omega_3-\omega_2),$$
$$(\omega_2+\omega_3-\omega_1), (2\omega_1 \pm \omega_2), (2\omega_1 \pm \omega_3), (2\omega_2 \pm \omega_1), (2\omega_2 \pm \omega_3), (2\omega_3 \pm \omega_1),$$
$$(2\omega_3 \pm \omega_2),$$

và những số âm tương ứng. Một lần nữa biểu diễn độ phân cực phi tuyến dưới dạng:

$$\tilde{P}^{(3)}(t) = \sum_n P(\omega_n) e^{-i\omega_n t}, \tag{1.2.16}$$

Chúng ta có thể viết những biên độ phức của độ phân cực phi tuyến cho những tần số dương như sau

$$P(\omega_1) = \chi^{(3)}(3E_1E_1^* + 6E_2E_2^* + 6E_3E_3^*)E_1,$$

$$P(\omega_2) = \chi^{(3)}(6E_1E_1^* + 3E_2E_2^* + 6E_3E_3^*)E_2,$$

$$P(\omega_3) = \chi^{(3)}(6E_1E_1^* + 6E_2E_2^* + 3E_3E_3^*)E_3,$$

$$P(3\omega_1) = \chi^{(3)}E_1^3, \qquad P(3\omega_2) = \chi^{(3)}E_2^3, \qquad P(3\omega_3) = \chi^{(3)}E_3^3,$$

$$P(\omega_1+\omega_2+\omega_3) = 6\chi^{(3)}E_1E_2E_3, \qquad P(\omega_1+\omega_2-\omega_3) = 6\chi^{(3)}E_1E_2E_3^*,$$

$$P(\omega_1+\omega_3-\omega_2) = 6\chi^{(3)}E_1E_3E_2^*, \qquad P(\omega_2+\omega_3-\omega_1) = 6\chi^{(3)}E_2E_3E_1^*,$$

$$P(2\omega_1+\omega_2) = 3\chi^{(3)}E_1^2E_2, \qquad P(2\omega_1+\omega_3) = 3\chi^{(3)}E_1^2E_3,$$

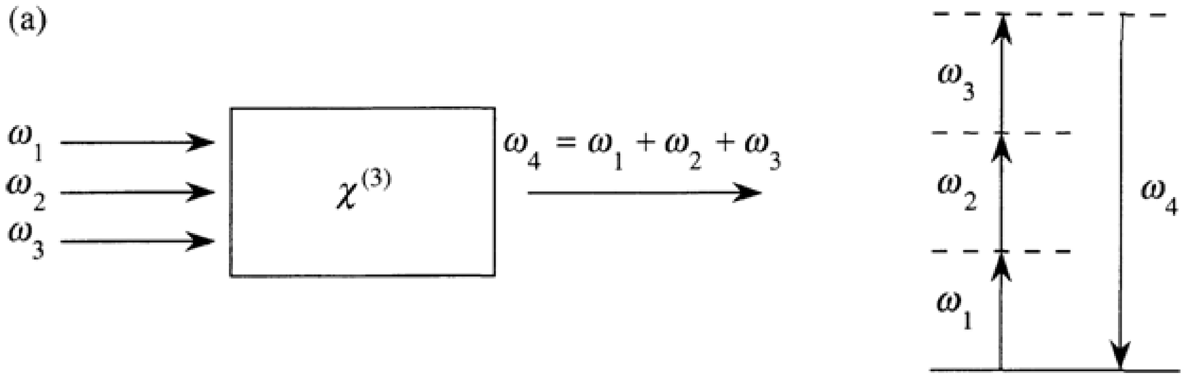
$$P(2\omega_2+\omega_1) = 3\chi^{(3)}E_2^2E_1, \qquad P(2\omega_2+\omega_3) = 3\chi^{(3)}E_2^2E_3,$$

$$P(2\omega_3+\omega_1) = 3\chi^{(3)}E_3^2E_1, \qquad P(2\omega_3+\omega_2) = 3\chi^{(3)}E_3^2E_2,$$

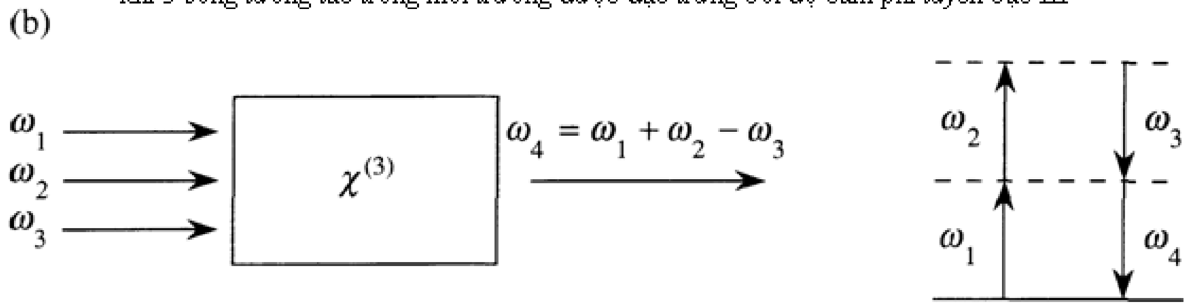
$$P(2\omega_1-\omega_2) = 3\chi^{(3)}E_1^2E_2^*, \qquad P(2\omega_1-\omega_3) = 3\chi^{(3)}E_1^2E_3^*,$$

$$P(2\omega_2-\omega_1) = 3\chi^{(3)}E_2^2E_1^*, \qquad P(2\omega_2-\omega_3) = 3\chi^{(3)}E_2^2E_3^*,$$

$$P(2\omega_3-\omega_1) = 3\chi^{(3)}E_3^2E_1^*, \qquad P(2\omega_3-\omega_2) = 3\chi^{(3)}E_3^2E_2^*, \tag{1.2.17}$$



Hình 1.2.7: Hai quá trình trộn sóng có thể xảy ra (phương trình (1.2.17)) khi 3 sóng tương tác trong môi trường được đặc trưng bởi độ cảm phi tuyến bậc III



Chúng ta đã trình bày những biểu thức này rất chi tiết bởi vì nó cung cấp cho chúng ta rất nhiều thông tin khi nghiên cứu dạng của nó. Trong mỗi trường hợp, đối số tần số của *P* bằng tổng những tần số có liên quan đến cường độ trường xuất hiện ở phía tay phải của phương trình, nếu chúng ta thừa nhận quy ước rằng tần số âm được liên kết với những trường xuất hiện như là một liên hợp phức. Tương tự, những chỉ số (1, 3, hoặc 6) xuất hiện trong mỗi số hạng ở phía bên phải của mỗi phương trình bằng số các hóan vị phân biệt của tần số của trường đóng góp cho số hạng đó. Một vài quá trình pha trộn quang phi tuyến được mô tả bởi phương trình (1.2.17) được minh họa trong hình 1.2.7.

1.2.10. Quá trình tham số và không tham số

Tất cả những quá trình được mô tả trong chương này là những ví dụ về quá trình tham số. Nguồn gốc của thuật ngữ này còn chưa được rõ, nhưng từ tham số có nghĩa là một quá trình trong đó những trạng thái cơ học lượng tử đầu tiên và cuối cùng của hệ là đồng nhất. Do đó, trong quá trình tham số các electron chuyển từ mức cơ bản lên mức ảo và tồn tại ở đây trong khoảng thời gian ngắn. Theo hệ thức bất định, nguyên tử có thể cư trú ở một mức ảo trong khoảng thời gian cỡ $\hbar/\delta E$, ở đây δE là độ chênh lệch năng lượng giữ mức ảo và mức thực gần nhất. Ngược lại, những quá trình liên quan đến sự chuyển nơi cư trú từ một mức thực đến một mức khác được gọi là quá trình không tham số. Những quá trình mà chúng ta mô tả trong các mục tiếp theo đây là tất cả những ví dụ về quá trình không tham số.

Một sự khác nhau giữa quá trình tham số và quá trình không tham số là quá trình tham số luôn luôn có thể được mô tả bởi độ cảm thực; ngược lại, những quá trình không tham số được mô tả bởi độ cảm phức theo cách sẽ được mô tả trong phần sau, Phần 1.3. Một sự khác nhau nữa là năng lượng photon luôn luôn được bảo tòan trong quá trình tham số; năng lượng photon không cần thiết phải được bảo tòan trong quá trình không tham số, bởi vì năng lượng có thể được chuyển vào hoặc ra từ môi trường vật liệu. Vì lí do này, giản đồ mức năng lượng được chỉ ra trong những hình . 1.2.1, 1.2.2, 1.2.3, 1.2.5, và 1.2.7 để mô tả quá trình tham số đóng vai trò ít dứt khóac hơn trong việc mô tả quá trình không tham số.

Như là một ví dụ để phân biệt giữa quá trình tham số và không tham số, chúng ta hãy xem xét hệ số khúc xạ thông thường (tuyến tính). Phần thực của hệ số khúc xạ là kết quả của quá trình tham số, trong khi phần ảo là kết quả của quá trình không tham số, bởi vì phần ảo của hệ số khúc xạ mô tả sự hấp thụ bức xạ, nó do sự chuyển nơi cư trú từ trạng thái cơ bản của nguyên tử đến trạng thái kích thích.

1.2.11 Sự hấp thụ bão hòa

Một ví dụ về quá trình quang phi tuyến không tham số là sự hấp thụ bão hòa. Nhiều loại vật liệu có tính chất: hệ số hấp thụ của chúng tăng lên khi phép đo có sử dụng cường độ tia laser cao. Thông thường sự phụ thuộc của hệ số hấp thụ đo được α theo cường độ I của bức xạ laser tới được cho bởi biểu thức*

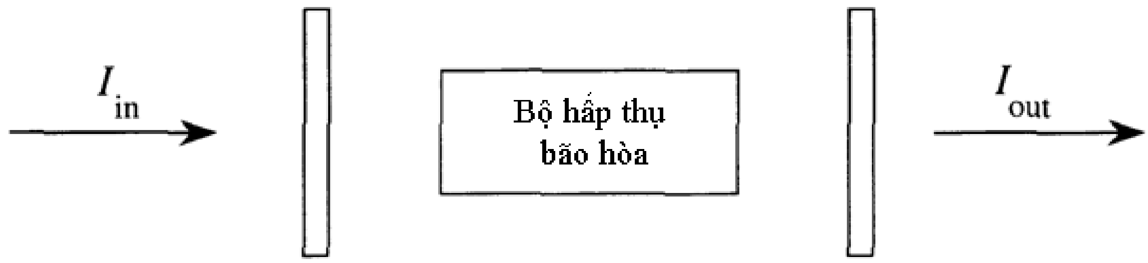
$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s}, \tag{1.2.18}$$

ở đây α_0 là hệ số áp thụ cường độ thấp, và I_s là tham số được gọi là cường độ bão hòa.

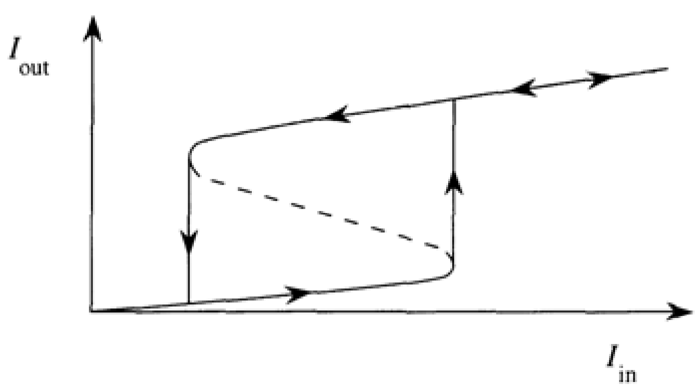
*Thiết bị này sẽ có giá trị, chẳng hạn như, cho trường hợp của sự mở rộng đồng nhất của một sự chuyển đơn nguyên tử.

Tính lưỡng bền quang học. Một hệ quả của sự hấp thụ bão hòa là tính lưỡng bền quang học. Một cách để chế tạo thiết bị quang học lưỡng bền là đặt bộ hấp thụ bão hòa bên trong một buồng cộng hưởng Fabry-Perot , như được minh họa trong Hình. 1.2.8. Khi cường độ đầu vào tăng lên, trường ở bên trong

Hình 1.2.8: Thiết bị quang lưỡng bền



buồng cộng hưởng tăng lên, làm giảm sự hấp thụ trường đi qua và do đó cường độ trường vẫn còn gia tăng nữa. Nếu sau đó cường độ của trường được làm giảm, trường bên trong buồng cộng hưởng có khuynh hướng giữ lại độ lớn bởi vì sự hấp thụ của hệ vật liệu đã bị giảm rồi. Sơ đồ đặc trưng tín hiệu đầu ra tương ứng với đầu vào được minh họa định tính trong Hình 1.2.9. Chú ý rằng một khoảng đáng kể của cường độ đầu vào lớn hơn cường độ đầu ra là có thể xảy ra. Quá trình lưỡng bền quang học được mô tả chi tiết hơn trong phần 7.3.



Hình 1.2.9 Đặc tuyến đầu ra theo đầu vào của thiết bị quang học lưỡng hài

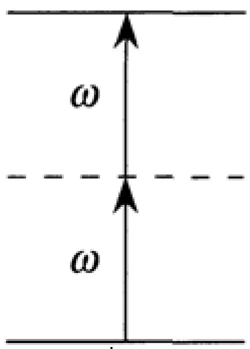
1.2.12 Sự hấp thụ 2 photon

Trong quá trình hấp thụ 2 photon, được minh họa trong Hình. 1.2.10, một nguyên tử chuyển từ trạng thái cơ bản của nó đến trạng thái kích thích bằng cách hấp thụ đồng thời 2 photon laser. Tiết diện hấp thụ σ mô tả tiến trình này tăng tuyến tính theo cường độ laser theo hệ thức

$$\sigma = \sigma^{(2)} I \qquad (1.2.19)$$

ở đây $\sigma^{(2)}$ là một hệ số mô tả sự hấp thụ 2 photon. (Nhớ lại rằng theo quy ước, tiết diện hấp thụ tuyến tính là một hằng số.)

Do đó, hệ số chuyển dời nguyên tử R gây ra bởi sự hấp thụ 2 photon tỉ lệ



Hình 1.2.10: Sự hấp thụ 2 photon

theo bình phương cường độ laser, bởi vì $R = \sigma I / \hbar\omega$, hoặc là

$$R = \frac{\sigma^{(2)} I^2}{\hbar\omega}. \qquad (1.2.20)$$

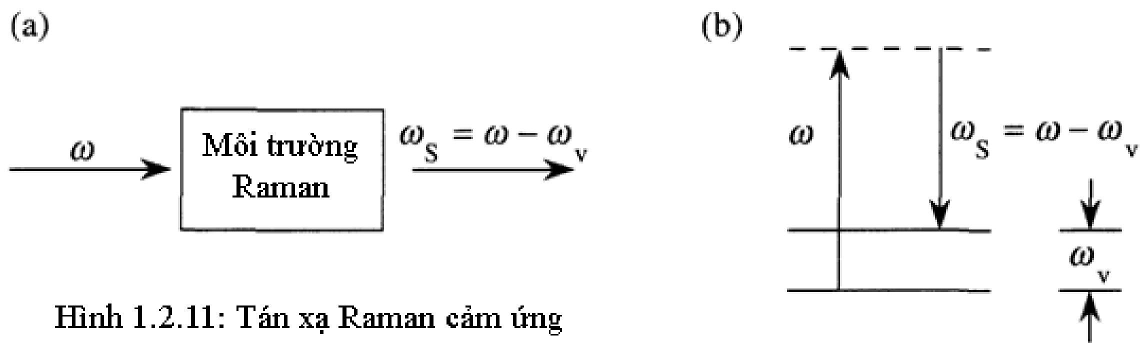
Sự hấp thụ 2 photon là một công cụ phổ học hữu dụng cho việc xác định vị trí mức năng lượng không liên quan đến trạng thái cơ bản của nguyên tử bởi một sự chuyển dời photon. Sự hấp thụ 2 photon lần đầu tiên được quan sát bằng thực nghiệm bởi Kaiser và Garrett (1961).

1.2.13 Tán xạ Raman cảm ứng

Trong tán xạ Raman cảm ứng, được minh họa trong hình.1.2.11, một photon có tần số ω bị mất đi và một photon tại tần số dịch chuyển Stokes $\omega_s = \omega - \omega_v$ được tạo ra, giữ cho nguyên tử (hoặc phân tử) ở trạng thái kích thích với năng lượng $\hbar\omega_v$. Năng lượng kích thích được đề cập đến như là ω_v

bởi vì tán xạ Raman cảm ứng đầu tiên được nghiên cứu trong hệ phân tử, ở đây $\hbar\omega_v$ tương ứng với năng lượng dao động. Hiệu quả của quá trình này có thể hòan tòan lớn, thường là 10% hoặc hơn năng lượng của ánh sáng tới được chuyển thành tần số Stokes. Trái lại, hiệu quả của tán xạ Raman thông thường và tự phát thông thường thấp hơn nhiều bậc về độ lớn. Tán xạ Raman cảm ứng được mô tả đầy đủ hơn trong chương 9.

Những quá trình tán xạ cảm ứng còn lại như tán xạ Brillouin cảm ứng và tán xạ Rayleigh cảm ứng cũng xuất hiện và được mô tả đầy đủ hơn trong Chương 8.



Hình 1.2.11: Tán xạ Raman cảm ứng

1.3. Định nghĩa hình thức độ cảm phi tuyến

Tương tác quang phi tuyến được mô tả theo độ phân cực phi tuyến (phương trình 1.2.2) chỉ áp dụng cho những hệ thống vật chất không mất mát và không tán sắc. Trong phần này, chúng ta sẽ xem xét trường hợp tổng quát hơn, đó là trường hợp của vật liệu tán sắc và/hoặc mất mát. Trong trường hợp tổng quát này, độ cảm phi tuyến trở thành một đại lượng phức thiết lập mối liên hệ giữa biên độ phức của trường điện và độ phân cực.

Giả sử rằng chúng ta có thể biểu diễn vectơ cường độ điện trường của sóng quang học theo tổng của những trường điện thành phần với tần số khác nhau:

$$\tilde{\boldsymbol{E}}(\boldsymbol{r},t) = {\sum_n}' \tilde{\boldsymbol{E}}_n(\boldsymbol{r},t) \tag{1.3.1}$$

Ở đây

$$\tilde{\mathbf{E}}_n(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_n(\mathbf{r})e^{-i\omega_n t} + \text{c.c.} \tag{1.3.2}$$

Dấu phẩy trong kí hiệu tổng của phương trình (1.3.1) có nghĩa là tổng chỉ được lấy theo những tần số dương. Để thuận tiện người ta định nghĩa một biên độ trường biến thiên chậm trong không gian qua hệ thức:

$$\mathbf{E}_n(\mathbf{r}) = \mathbf{A}_n e^{i\mathbf{k}_n\cdot\mathbf{r}}, \tag{1.3.3}$$

Vì thế

$$\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = {\sum_n}' \mathbf{A}_n e^{i(\mathbf{k}_n\cdot\mathbf{r}-\omega_n t)} + \text{c.c.} \tag{1.3.4}$$

Đôi khi, chúng ta có thể biểu diễn biên độ trường dùng một trong số các quy ước sau:

$$\mathbf{E}_n = \mathbf{E}(\omega_n) \quad \textbf{và} \quad \mathbf{A}_n = \mathbf{A}(\omega_n), \tag{1.3.5}$$

Ở đây

$$\mathbf{E}(-\omega_n) = \mathbf{E}(\omega_n)^* \quad \textbf{và} \quad \mathbf{A}(-\omega_n) = \mathbf{A}(\omega_n)^*. \tag{1.3.6}$$

Dùng quy ước này, chúng ta có thể viết trường tổng cộng dưới dạng cô đọng hơn:

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) &= \sum_n \mathbf{E}(\omega_n)e^{-i\omega_n t} \\ &= \sum_n \mathbf{A}(\omega_n)e^{i(\mathbf{k}_n\cdot\mathbf{r}-\omega_n t)},\end{aligned} \tag{1.3.7}$$

Ở đây, kí hiệu tổng không được đánh dấu phẩy có nghĩa là tổng được lấy trên tất cả các tần số, cả dương và âm.

Chú ý rằng theo định nghĩa của chúng ta về biên độ trường, trường có dạng

$$\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \mathcal{E}\cos(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t) \tag{1.3.8}$$

được biểu diễn bằng biên độ phức

$$\mathbf{E}(\omega) = \frac{1}{2}\mathcal{E}e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \qquad \mathbf{E}(-\omega) = \frac{1}{2}\mathcal{E}e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \tag{1.3.9}$$

Hoặc thay vào đó, có thể biểu diễn bằng các biên độ biến thiên chậm

$$\mathbf{A}(\omega) = \frac{1}{2}\mathcal{E}, \qquad \mathbf{A}(-\omega) = \frac{1}{2}\mathcal{E}. \tag{1.3.10}$$

Trong cả hai trường hợp, hệ số ½ xuất hiện bởi vì biên độ trường vật lí được chia đều giữa các thành phần trường tần số âm và dương.

Dùng quy ước tương tự như trong phương trình (1.3.7), chúng ta có thể biểu diễn độ phân cực phi tuyến là:

$$\tilde{\mathbf{P}}(\mathbf{r},t) = \sum_n \mathbf{P}(\omega_n)e^{-i\omega_n t}, \tag{1.3.11}$$

như trước, ở đây, tổng được lấy trên tất cả các thành phần trường tần số âm và dương.

Bây giờ, chúng ta định nghĩa những thành phần của tenxo độ cảm bậc II $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n+\omega_m,\omega_n,\omega_m)$ như hằng số tỉ lệ thiết lập mối quan hệ giữa độ phân cực phi tuyến và tích của các biên độ trường theo hệ thức:

$$P_i(\omega_n+\omega_m)=\epsilon_0\sum_{jk}\sum_{(nm)}\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n+\omega_m,\omega_n,\omega_m)E_j(\omega_n)E_k(\omega_m). \quad (1.3.12)$$

Ở đây *ijk* để chỉ các thành phần trong hệ tọa độ Đề các của trường. Kí hiệu *(nm)* có nghĩa là, trong phép thực hiện lấy tổng trên *n* và *m*, tổng $\omega_n+\omega_m$ được giữ cố định, mặc dù từng giá trị ω_n và ω_m được phép thay đổi. Bởi vì biên độ $E(\omega_n)$ gắn với thành phần phụ thuộc thời gian $\exp(-i\omega_n t)$, và biên độ $E(\omega_m)$ gắn với thành phần phụ thuộc thời gian $\exp(-i\omega_m t)$ nên tích của chúng $E(\omega_n)E(\omega_m)$ gắn với thành phần phụ thuộc thời gian là $\exp[-i(\omega_n+\omega_m)]$. Vì thế tích $E(\omega_n)E(\omega_m)$ dẫn đến sự đóng góp vào độ phân cực phi tuyến dao động với tần số $\omega_n+\omega_m$ như kí hiệu trong phương trình (1.3.12). Theo quy ước, chúng ta đã viết $\chi^{(2)}$ như hàm của ba đối số tần số. Đây là thủ thuật không cần thiết trong đó đối số thứ nhất luôn luôn bằng tổng của 2 cái còn lại. Để nhấn mạnh điều này, thỉnh thoảng độ cảm $\chi^{(2)}(\omega_3,\omega_2,\omega_1)$ được viết là $\chi^{(2)}(\omega_3;\omega_2,\omega_1)$ như nhắc rằng đối số thứ nhất khác với 2 đối số còn lại, hoặc nó có thể được viết tượng trưng là $\chi^{(2)}(\omega_3=\omega_2+\omega_1)$.

Chúng ta hãy xét một số hệ quả nảy sinh do cách định nghĩa độ cảm phi tuyến như trong phương trình (1.3.12) bằng cách xét hai ví dụ đơn giản.

1. Sự tạo tần số tổng. Chúng ta hãy đặt những tần số của trường tới (có lúc ta gọi là trường đầu vào) là ω_1 và ω_2 và tần số tổng là $\omega_3=\omega_2+\omega_1$. Sau đó, thực hiện lấy tổng trên ω_n và ω_m trong phương trình (1.3.12), chúng ta tìm được :

$$P_i(\omega_3)=\epsilon_0\sum_{jk}\big[\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3,\omega_1,\omega_2)E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)$$
$$+\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3,\omega_2,\omega_1)E_j(\omega_2)E_k(\omega_1)\big]. \quad (1.3.13)$$

Bây giờ chúng ta chú ý rằng *j* và *k* là những chỉ số giả và do đó có thể đổi chổ cho nhau trong số hạng thứ hai. Tiếp theo chúng ta giả sử rằng độ cảm phi tuyến có một sự đối xứng hoán vị nội tại (sự đối xứng này được thảo luận chi tiết hơn trong phương trình (1.5.6) bên dưới), có nghĩa là

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_m+\omega_n,\omega_m,\omega_n)=\chi_{ikj}^{(2)}(\omega_m+\omega_n,\omega_n,\omega_m). \qquad (1.3.14)$$

Khi dùng hệ thức này, biểu thức của độ phân cực phi tuyến trở thành

$$P_i(\omega_3)=2\epsilon_0\sum_{jk}\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3,\omega_1,\omega_2)E_j(\omega_1)E_k(\omega_2), \qquad (1.3.15)$$

và đối với trường hợp đặc biệt trong đó cả hai trường đầu vào phân cực theo hướng *x* thì độ phân cực trở thành

$$P_i(\omega_3)=2\epsilon_0\chi_{ixx}^{(2)}(\omega_3,\omega_1,\omega_2)E_x(\omega_1)E_x(\omega_2). \qquad (1.3.16)$$

2. Sự tạo sóng hài bậc hai. Giả sử tần số của trường tới là ω_1 và tần số được tạo ra là $\omega_3=2\omega_1$. Nếu một lần nữa chúng ta thực hiện lấy tổng trên những tần số trường trong phương trình (1.3.12), chúng ta thu được

$$P_i(\omega_3)=\epsilon_0\sum_{jk}\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3,\omega_1,\omega_1)E_j(\omega_1)E_k(\omega_1). \qquad (1.3.17)$$

Chúng ta lại xét trường hợp đặc biệt là trường đầu vào (trường tới) phân cực dọc theo hướng *x*, (1.3.17) sẽ trở thành

$$P_i(\omega_3)=\epsilon_0\chi_{ixx}^{(2)}(\omega_3,\omega_1,\omega_1)E_x(\omega_1)^2. \qquad (1.3.18)$$

Chú ý rằng hệ số 2 xuất hiện trong các phương trình (1.3.15) và (1.3.16), mô tả sự tạo tần số tổng, nhưng không xuất hiện trong phương trình (1.3.17) và (1.3.18) mô tả sự tạo sóng hài bậc hai. Việc những biểu thức này vẫn khác nhau thậm chí khi ω_2 tiến đến ω_1 có lẽ đầu tiên sẽ gây ngạc nhiên nhưng thật ra nó chính là hệ quả của sự quy ước của chúng ta rằng $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3,\omega_1,\omega_2)$ phải tiến đến $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3,\omega_1,\omega_1)$ khi ω_1 tiến đến ω_2. Chú ý rằng biểu thức của $P(2\omega_2)$ và $P(\omega_1+\omega_2)$ áp dụng cho trường hợp độ cảm phi tuyến không tán sắc (phương trình 1.2.7) cũng khác nhau một hệ số 2. Hơn nữa, người ta cũng mong đợi độ phân cực phi tuyến được tạo ra bởi 2 trường khác nhau lớn hơn được tạo ra bởi một trường (cả hai biên độ giống nhau), bởi vì cường độ ánh sáng tổng cộng lớn hơn trường hợp trước.

Nói chung, việc lấy tổng trên tất cả các tần số của các trường khác nhau $\left(\sum_{(nm)}\right)$ có thể được thực hiện một cách hình thức để thu được kết quả:

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 D \sum_{jk} \chi^{(2)}_{ijk}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m), \tag{1.3.19}$$

ở đây *D* được gọi là hệ số suy biến và bằng với số hoán vị riêng biệt của các tần số của trường đặt vào ω_n và ω_m.

Biểu thức (1.3.12) định nghĩa độ cảm bậc hai có thể dễ dàng được tổng quát hóa cho các tương tác bậc cao hơn. Đặc biệt, thành phần độ cảm bậc ba được định nghĩa là những hệ số thiết lập mối quan hệ giữa những biên độ theo hệ thức

$$P_i(\omega_o + \omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 \sum_{jkl} \sum_{(mno)} \chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_0 + \omega_n + \omega_m, \omega_o, \omega_n, \omega_m) \times E_j(\omega_o) E_k(\omega_n) E_l(\omega_m). \tag{1.3.20}$$

Một lần nữa, chúng ta thực hiện lấy tổng trên *m, n* và *o* để thu được kết quả

$$P_i(\omega_o + \omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 D \sum_{jkl} \chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_0 + \omega_n + \omega_m, \omega_o, \omega_n, \omega_m) \times E_j(\omega_0) E_k(\omega_n) E_l(\omega_m), \tag{1.3.21}$$

Ở đây hệ số suy biến *D* biểu diễn số hoán vị riêng biệt của các tần số ω_m, ω_n và ω_o.

1.4 Độ cảm phi tuyến của dao động tử phi điều hoà cổ điển

Mô hình Lorentz của nguyên tử xem nguyên tử như là một dao động tử điều hòa đã mô tả rất tốt về tính chất quang học tuyến tính của hơi nguyên tử và chất rắn phi kim loại. Trong phần này, chúng ta sẽ mở rộng mô hình Lorentz bằng cách cho phép khả năng tồn tại một thành phần phi tuyến trong lực phục hồi tác dụng lên electron. Những chi tiết phân tích sẽ khác nhau phụ thuộc vào môi trường có đối xứng đảo hay không. Đầu tiên, chúng ta xét môi trường không có đối xứng xuyên tâm, và chúng ta nhận thấy rằng một môi trường như thế có thể làm nảy sinh một sự phi tuyến quang học bậc hai. Sau đó, chúng ta xét môi trường có tâm đối xứng và nhận thấy rằng sự phi tuyến bậc thấp nhất có thể xuất hiện trong trường hợp này là độ cảm phi tuyến bậc ba. Sự khảo sát của chúng ta tương tự với cách làm của Owyoung (1971).

Sự thiếu sót chủ yếu của mô hình cổ điển về sự phi tuyến quang học được đưa vào ở đây là mô hình này quy cho mỗi nguyên tử một tần số cộng hưởng ω_0. Ngược lại, lí thuyết cơ học lượng tử của độ cảm quang phi tuyến được xây dựng trong chương 3 cho phép mỗi nguyên tử có nhiều trị riêng năng lượng và do đó có nhiều hơn một tần số cộng hưởng. Bởi vì mô hình hiện tại chỉ cho phép một tần số cộng hưởng nên nó không thể mô tả một cách hoàn toàn chính xác bản chất của độ cảm phi tuyến (chẳng hạn như, khả năng cộng hưởng đồng thời một và hai photon). Tuy nhiên, nó cũng mô tả tốt về những trường hợp này khi tất cả các tần số quang học nhỏ hơn rất nhiều tần số cộng hưởng điện tử thấp nhất của hệ vật liệu.

1.4.1 Môi trường không đối xứng xuyên tâm

Đối với trường hợp môi trường không đối xứng xuyên tâm, phương trình chuyển động của electron có dạng:

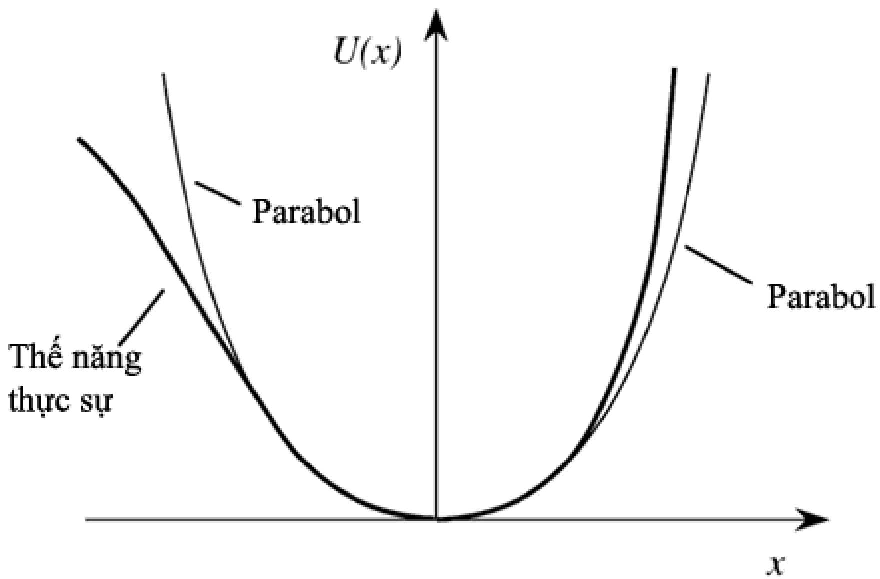
$$\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} + a\tilde{x}^2 = -e\tilde{E}(t)/m. \tag{1.4.1}$$

Trong phương trình này, chúng ta giả sử rằng trường điện tác dụng vào là $\tilde{E}(t)$, điện tích electron là $-e$, và có một lực tắt dần có dạng $-2m\gamma\dot{\tilde{x}}$, và lực phục hồi có dạng

$$\tilde{F}_{\text{phục hồi}} = -m\omega_0^2\tilde{x} - ma\tilde{x}^2, \tag{1.4.2}$$

ở đây *a* là một tham số đặc trưng cho mức độ của sự phi tuyến. Chúng ta thu được dạng này bằng cách giả sử rằng lực phụ hồi là hàm phi tuyến của độ dịch chuyển vị trí của electron khỏi vị trí cân bằng và giữ lại số hạng tuyến tính và số hạng bậc hai trong khai triển chuỗi Taylor của lực phục hồi theo độ dịch chuyển vị trí $\tilde{x}$. Chúng ta có thể hiểu được bản chất của dạng này của lực phục hồi bằng cách chú ý rằng nó tương ứng với hàm thế năng có dạng

$$U(\tilde{x}) = -\int \tilde{F}_{\text{phục hồi}}\, d\tilde{x} = \frac{1}{2} m\omega_0^2 \tilde{x}^2 + \frac{1}{3} m a \tilde{x}^3. \tag{1.4.3}$$



Hình 1.4.1| Hàm thế của môi trường không có đối xứng xuyên tâm

Ở đây số hạng thứ nhất tương ứng với thế điều hòa và số hạng thứ hai tương ứng với số hạng hiệu chỉnh phi điều hòa như được minh họa trong hình 1.4.1. Mô hình này tương ứng với trường hợp electron trong vật liệu thực. Bởi vì giếng thế thực sự mà electron rơi vào không hoàn toàn là một parabol. Mô hình hiện tại chỉ có thể mô tả môi trường không đối xứng xuyên tâm bởi vì chúng ta đã giả sử rằng hàm thế $U(\tilde{x})$ của phương trình (1.4.3) chứa cả lũy thừa bậc chẳng và bậc lẻ của $\tilde{x}$; đối với môi trường đối xứng xuyên tâm chỉ những lũy thừa bậc chẵn của $\tilde{x}$ xuất hiện, bởi vì hàm thế $U(\tilde{x})$ phải có đối xứng $U(\tilde{x}) = U(-\tilde{x})$. Để cho đơn giản, chúng ta đã viết phương trình (1.4.1) trong phép gần đúng trường vô hướng; chú ý rằng chúng ta không thể khảo sát bản chất tenxo của độ cảm phi tuyến mà không có những giả sử nào đó căn cứ vào tính chất đối xứng của vật liệu.

Chúng ta giả sử rằng trường quang học đặt vào có dạng

$$\tilde{E}(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.} \tag{1.4.4}$$

Phương trình (1.4.1) sẽ không có nghiệm tổng quát nếu trường đặt vào có dạng (1.4.4). Tuy nhiên, nếu trường đặt vào đủ yếu, số hạng phi tuyến $a\tilde{x}^2$ sẽ nhỏ hơn rất nhiều số hạng tuyến tính $\omega_0^2\tilde{x}$ đối với bất kì độ dịch chuyển vị trí $\tilde{x}$ nào có thể được cảm ứng bởi trường. Trong trường hợp này, phương trình (1.4.1) có thể được giải bằng cách khai triển nhiễu loạn. Chúng ta dùng thủ thuật tương tự như lí thuyết nhiễu loạn Rayleigh-Schrodinger trong cơ học lượng tử. Chúng ta thay $\tilde{E}(t)$ trong phương trình (1.4.1) bằng $\lambda\tilde{E}(t)$, ở đây λ là một tham số có giá trị liên tục từ 0 đến 1 và sẽ được cho bằng 1 ở cuối quá trình tính toán. Vì thế, hệ số khai triển λ đặc trưng cho mức độ nhiễu loạn. Do đó, phương trình (1.4.1) trở thành:

$$\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} + a\tilde{x}^2 = -\lambda e\tilde{E}(t)/m. \tag{1.4.5}$$

Bây giờ, chúng ta tìm nghiệm của phương trình (1.4.5) dưới dạng khai triển chuỗi lũy thừa theo λ, nghĩa là, nghiệm có dạng :

$$\tilde{x} = \lambda\tilde{x}^{(1)} + \lambda^2\tilde{x}^{(2)} + \lambda^3\tilde{x}^{(3)} + \cdots . \tag{1.4.6}$$

Để cho phương trình (1.4.6) là nghiệm của phương trình (1.4.5) đối với bất kì giá trị nào của λ, những số hạng trong phương trình (1.4.6) tỉ lệ với λ, λ^2, λ^3, v.v…phải thõa mãn những phương trình riêng biệt. Chúng ta thấy rằng, những số hạng này lần lượt dẫn đến những phương trình

$$\ddot{\tilde{x}}^{(1)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(1)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(1)} = -e\tilde{E}(t)/m, \tag{1.4.7a}$$

$$\ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(2)} + a\left[\tilde{x}^{(1)}\right]^2 = 0, \tag{1.4.7b}$$

$$\ddot{\tilde{x}}^{(3)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(3)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(3)} + 2a\tilde{x}^{(1)}\tilde{x}^{(2)} = 0, \quad \text{etc.} \tag{1.4.7c}$$

Từ (1.4.7a), chúng ta thấy rằng đóng góp bậc thấp nhất $\tilde{x}^{(1)}$ tuân theo phương trình giống như trong mô hình Lorentz thông thường (tuyến tính). Do đó, nghiệm xác lập của nó là :

$$\tilde{x}^{(1)}(t) = x^{(1)}(\omega_1)e^{-i\omega_1 t} + x^{(1)}(\omega_2)e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}, \qquad (1.4.8)$$

ở đây, biên độ $x^{(1)}(\omega_j)$ có dạng

$$x^{(1)}(\omega_j) = -\frac{e}{m}\frac{E_j}{D(\omega_j)}, \qquad (1.4.9)$$

Ở đây, chúng ta đưa vào một hàm phức ở mẫu

$$D(\omega_j) = \omega_0^2 - \omega_j^2 - 2i\omega_j\gamma. \qquad (1.4.10)$$

Bây giờ, biểu thức này của $\tilde{x}^{(1)}(t)$ được bình phương và được thế vào phương trình (1.4.7b), nó được giải để thu được số hạng hiệu chỉnh bậc thấp nhất $\tilde{x}^{(2)}$. Bình phương của $\tilde{x}^{(1)}(t)$chứa những tần số $\pm 2\omega_1$, $\pm 2\omega_2$, $\pm(\omega_1+\omega_2)$, $\pm(\omega_1-\omega_2)$ và 0. Chẳng hạn, để xác định đáp ứng tại tần số $2\omega_1$, chúng ta phải giải phương trình

$$\ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(2)} = \frac{-a(eE_1/m)^2 e^{-2i\omega_1 t}}{D^2(\omega_1)}. \qquad (1.4.11)$$

Chúng ta tìm nghiệm ở trạng thái xác lập có dạng

$$\tilde{x}^{(2)}(t) = x^{(2)}(2\omega_1)e^{-2i\omega_1 t}. \qquad (1.4.12)$$

Thế phương trình (1.4.12) vào phương trình (1.4.11) dẫn đến kết quả

$$x^{(2)}(2\omega_1) = \frac{-a(e/m)^2 E_1^2}{D(2\omega_1)D^2(\omega_1)}, \qquad (1.4.13)$$

Ở đây, chúng ta đã dùng định nghĩa (1.4.10) của hàm $D(\omega_j)$. Tương tự, chúng ta tìm được biên độ của các đáp ứng tại các tần số còn lại:

$$x^{(2)}(2\omega_2) = \frac{-a(e/m)^2 E_2^2}{D(2\omega_2)D^2(\omega_2)}, \tag{1.4.14a}$$

$$x^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \frac{-2a(e/m)^2 E_1 E_2}{D(\omega_1 + \omega_2)D(\omega_1)D(\omega_2)}, \tag{1.4.14b}$$

$$x^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \frac{-2a(e/m)^2 E_1 E_2^*}{D(\omega_1 - \omega_2)D(\omega_1)D(-\omega_2)}, \tag{1.4.14c}$$

$$x^{(2)}(0) = \frac{-2a(e/m)^2 E_1 E_1^*}{D(0)D(\omega_1)D(-\omega_1)} + \frac{-2a(e/m)^2 E_2 E_2^*}{D(0)D(\omega_2)D(-\omega_2)}. \tag{1.4.14d}$$

Tiếp theo, chúng ta biểu diễn những kết quả này theo độ cảm tuyến tính $\chi^{(1)}$ và phi tuyến $\chi^{(2)}$. Độ cảm tuyến tính được định nghĩa qua hệ thức:

$$P^{(1)}(\omega_j) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_j) E(\omega_j). \tag{1.4.15}$$

Bởi vì đóng góp tuyến tính vào độ phân cực là

$$P^{(1)}(\omega_j) = -Nex^{(1)}(\omega_j), \tag{1.4.16}$$

ở đây *N* là mật độ nguyên tử. Dùng phương trình (1.4.8) và (1.4.9), chúng ta tìm được độ cảm tuyến tính có dạng:

$$\chi^{(1)}(\omega_j) = \frac{N(e^2/m)}{\epsilon_0 D(\omega_j)}. \tag{1.4.17}$$

Độ cảm phi tuyến được tính toán theo cách tương tự. Độ cảm phi tuyến mô tả sự tạo sóng hài bậc hai được định nghĩa bởi hệ thức :

$$P^{(2)}(2\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(2\omega_1, \omega_1, \omega_1) E(\omega_1)^2, \tag{1.4.18}$$

Ở đây, $P^{(2)}(2\omega_1)$ là biên độ của thành phần phân cực phi tuyến dao động tại tần số $2\omega_1$ và được định nghĩa bởi hệ thức

$$P^{(2)}(2\omega_1) = -Nex^{(2)}(2\omega_i). \tag{1.4.19}$$

So sánh những phương trình này với phương trình (1.4.13) ta được:

$$\chi^{(2)}(2\omega_1, \omega_1, \omega_1) = \frac{N(e^3/m^2)a}{\epsilon_0 D(2\omega_1) D^2(\omega_1)}. \qquad (1.4.20)$$

Qua việc sử dụng phương trình (1.4.17), kết quả này có thể được viết theo các số hạng của tích của các độ cảm tuyến tính

$$\chi^{(2)}(2\omega_1, \omega_1, \omega_1) = \frac{\epsilon_0^2 ma}{N^2 e^3} \chi^{(1)}(2\omega_1) \left[\chi^{(1)}(\omega_1)\right]^2. \qquad (1.4.21)$$

Độ cảm phi tuyến ứng với sự tạo sóng hài bậc hai của trường ω_2 thu được từ phương trình (1.4.20) và (1.4.21) bằng cách thế $\omega_1 \to \omega_2$.

Độ cảm phi tuyến mô tả sự tạo tần số tổng thu được từ hệ thức

$$P^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = 2\epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2) \qquad (1.4.22)$$

và

$$P^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = -Nex^{(2)}(\omega_1 + \omega_2). \qquad (1.4.23)$$

Chú ý rằng trong trường hợp này hệ thức định nghĩa độ cảm phi tuyến chứa hệ số 2 bởi vì hai trường đầu vào khác nhau, như đươc thảo luận trong hệ thức của phương trình (1.3.19). Bằng cách so sánh những phương trình này với (1.4.14b), độ cảm phi tuyến tìm được là

$$\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \frac{N(e^3/m^2)a}{\epsilon_0 D(\omega_1 + \omega_2) D(\omega_1) D(\omega_2)}, \qquad (1.4.24)$$

nó có thể được biểu diễn theo các số hạng của tích của các độ cảm tuyến tính:

$$\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \frac{\epsilon_0^2 ma}{N^2 e^3} \chi^{(1)}(\omega_1 + \omega_2) \chi^{(1)}(\omega_1) \chi^{(1)}(\omega_2). \qquad (1.4.25)$$

Bằng cách so sánh phương trình (1.4.20) và (1.4.24), chúng ta thấy rằng khi ω_2 tiến tới ω_1, $\chi^{(2)}(\omega_1+\omega_2, \omega_1, \omega_2)$ tiến tới $\chi^{(2)}(2\omega_1, \omega_1, \omega_1)$.

Độ cảm phi tuyến mô tả những quá trình bậc hai còn lại thu được theo cách tương tự. Đối với sự tạo tần số phách, chúng ta tìm được:

$$\begin{aligned}\chi^{(2)}(\omega_1-\omega_2,\omega_1,-\omega_2) &= \frac{N(e^3/\epsilon_0 m^2)a}{D(\omega_1-\omega_2)D(\omega_1)D(-\omega_2)} \\ &= \frac{\epsilon_0^2 ma}{N^2e^3}\chi^{(1)}(\omega_1-\omega_2)\chi^{(1)}(\omega_1)\chi^{(1)}(-\omega_2),\end{aligned} \tag{1.4.26}$$

Và đối với sự chỉnh lưu quang học, chúng ta tìm được

$$\begin{aligned}\chi^{(2)}(0,\omega_1,-\omega_1) &= \frac{N(e^3/m^2)a}{\epsilon_0 D(0)D(\omega_1)D(-\omega_1)} \\ &= \frac{\epsilon_0^2 ma}{N^2e^3}\chi^{(1)}(0)\chi^{(1)}(\omega_1)\chi^{(1)}(-\omega_1).\end{aligned} \tag{1.4.27}$$

Những phân tích vừa được đưa vào chứng tỏ rằng đóng góp phi tuyến bậc thấp nhất vào độ phân cực của vật liệu không có đối xứng xuyên tâm là bậc hai trong cường độ trường đặt vào. Sự phân tích này có thể dễ dàng được mở rộng để tính đến ảnh hưởng của các bậc cao hơn. Chẳng hạn, nghiệm của phương trình (1.4.7c) dẫn đến độ cảm bậc 3 hoặc $\chi^{(3)}$, và những số hạng tổng quát hơn tỉ lệ với λ^n trong khai triển được mô tả bởi phương trình (1.4.6) dẫn đến các độ cảm $\chi^{(n)}$.

1.4.2 Nguyên lí Miller

Nguyên lí kinh nghiệm do Miller (Miller, 1964; hoặc xem Garrett và Robinson, 1966) có thể hiểu được dựa vào sự tính toán mới được đưa vào ở trên. Miller thấy rằng đại lượng

$$\frac{\chi^{(2)}(\omega_1+\omega_2,\ \omega_1,\ \omega_2)}{\chi^{(1)}(\omega_1+\omega_2)\chi^{(1)}(\omega_1)\chi^{(1)}(\omega_2)} \tag{1.4.28}$$

gần như bằng hằng số đối với tất cả các tinh thể không có đối xứng xuyên tâm. Bằng cách so sánh với phương trình (1.4.25), chúng ta thấy đại lượng này sẽ là hằng số chỉ nếu tổ hợp

$$\frac{ma\epsilon_0^2}{N^2e^3} \tag{1.4.29}$$

gần bằng hằng số. Quả thực, mật độ nguyên tử N gần bằng nhau đối với tất cả các nguyên tử của vật chất ở trạng thái cô đặc $(\approx 10^{22}\,cm^{-3})$, và các tham số m và e là những hằng số cơ bản. Chúng ta có thể ước lượng được độ lớn của hệ số phi tuyến a bằng cách chú ý đến sự đóng góp tuyến tính và phi tuyến vào lực phục hồi [phương trình (1.4.2)] sẽ bằng nhau khi độ dịch chuyển vị trí $\tilde{x}$ của electron khỏi vị trí cân bằng gần bằng kích thướt nguyên tử. Khoảng cách này vào cỡ khoảng cách giữa các nguyên tử, nghĩa là hằng số mạng d. Nguyên nhân này dẫn đến bậc độ lớn ước tính khoảng $m\omega_0^2 d = mad^2$ hoặc bằng

$$a = \frac{\omega_0^2}{d}. \tag{1.4.30}$$

Bởi vì ω_0 và d gần như bằng nhau đối với tất cả các chất rắn, đại lượng a cũng sẽ gần như bằng nhau đối với tất cả các vật liệu trong đó nó không biến mất vì lí do đối xứng.

Chúng ta cũng có thể dùng ước tính về hệ số phi tuyến a để ước tính độ lớn của độ cảm bậc hai trong điều kiện không cộng hưởng cao. Nếu chúng ta thay thế $D(\omega)$ bằng ω_0^2 ở mẫu số trong phương trình (1.4.24), đặt N bằng $1/d^3$, và đặt a bằng ω_0^2/d, chúng ta tìm được $\chi^{(2)}$ vào cỡ

$$\chi^{(2)} = \frac{e^3}{\epsilon_0 m^2 \omega_0^4 d^4}. \tag{1.4.31}$$

Dùng giá trị $\omega_0 = 1\times 10^{16}\,rad/s$, $d = 3\overset{o}{A}$, $e = 1.6\times 10^{-19}\,C$, $m = 9.1\times 10^{-31}\,kg$, chúng ta tính ra được:

$$\chi^{(2)} \simeq 6.9\times 10^{-12}\ \mathrm{m/V}, \tag{1.4.32}$$

kết quả này phù hợp với những giá trị đươc đo bằng thực nghiện trong bảng 1.5.3 (xem trang 50).

1.4.3 Môi trường đối xứng xuyên tâm

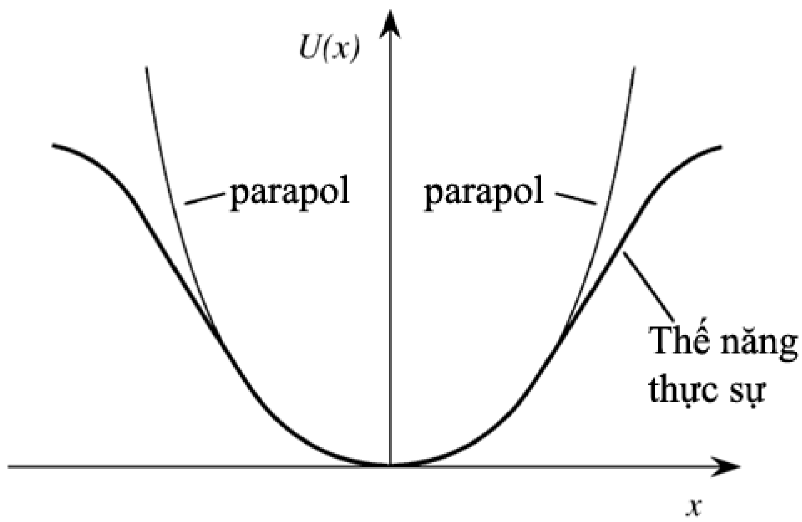
Đối với trường hợp của môi trường đối xứng xuyên tâm, chúng ta giả sử rằng lực phục hồi điện không có dạng giống như phương trình (1.4.2) mà phải là

$$\tilde{F}_{\text{phục hồi}} = -m\omega_0^2\tilde{x} + mb\tilde{x}^3, \tag{1.4.33}$$

ở đây *b* là thông số đặc trưng cho mức độ của sự phi tuyến. Lực phục hồi này tương ứng với hàm thế năng có dạng

$$U(\tilde{x}) = -\int \tilde{F}_{\text{phục hồi}}\, d\tilde{x} = \frac{1}{2}m\omega_0^2\tilde{x}^2 - \frac{1}{4}mb\tilde{x}^4. \tag{1.4.34}$$

Hàm thế được minh họa trong hình 1.4.2 (đối với trường hợp thông thường trong đó *b* dương) và đối xứng khi thực hiện phép toán $\tilde{x} \to -\tilde{x}$, điều mà phải có đối với một môi trường có tâm đối xứng đảo. Chú ý rằng $-mb\tilde{x}^4/4$ là số hạng hiệu chỉnh bậc thấp nhất của giếng thế parabol được mô tả bởi số hạng $\frac{1}{2}m\omega_0^2\tilde{x}^2$. Chúng ta giả sử rằng sự dịch chuyển điện $\tilde{x}$ không bao giờ quá lớn đến nổi cần phải bao gồm những số hạng bậc cao hơn trong hàm thế.



Hình 1.4.2| Hàm thế năng của môi trường đối xứng xuyên tâm

Chúng ta sẽ thấy bên dưới rằng đáp ứng phi tuyến bậc thấp nhất do lực phục hồi (phương trình 1.4.33) là đóng góp bậc ba vào độ phân cực, nó có thể được mô tả bởi độ cảm $\chi^{(3)}$. Cũng giống như trong trường hợp của môi trường đối xứng không xuyên tâm, tính chất tenxo của độ cảm này có thể không được chỉ rõ nếu không biết hoàn toàn đối xứng bên trong của môi trường. Một trong những trường hợp quan trọng là môi trường đẳng hướng (cũng như đối xứng xuyên tâm). Ví dụ về những vật liệu như thế là thủy tinh và chất lỏng. Trong trường hợp như thế, biểu thức của lực phục hồi có dạng

$$\tilde{\mathbf{F}}_{\text{phục hồi}} = -m\omega_0^2\tilde{\mathbf{r}} + mb(\tilde{\mathbf{r}}\cdot\tilde{\mathbf{r}})\tilde{\mathbf{r}}. \tag{1.4.35}$$

Số hạng thứ hai trong biểu thức của lực phục hồi phải có dạng như được biểu diễn bởi vì nó chỉ là dạng bậc ba trong độ lệch $\tilde{\boldsymbol{r}}$ và hướng theo hướng $\tilde{\boldsymbol{r}}$, đây chỉ là hướng khả dĩ nào đó của môi trường đẳng hướng.

Do đó, phương trình chuyển động của một electron lệch khỏi vị trí cân bằng là:

$$\ddot{\tilde{\mathbf{r}}} + 2\gamma\dot{\tilde{\mathbf{r}}} + \omega_0^2\tilde{\mathbf{r}} - b(\tilde{\mathbf{r}}\cdot\tilde{\mathbf{r}})\tilde{\mathbf{r}} = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m. \tag{1.4.36}$$

Chúng ta giả sử rằng trường đặt vào có dạng

$$\tilde{\mathbf{E}}(t) = \mathbf{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \mathbf{E}_3 e^{-i\omega_3 t} + \text{c.c.}; \qquad (1.4.37)$$

Chúng ta cho phép trường có ba thành phần tần số khác nhau bởi vì đây là khả năng tổng quát nhất đối với tương tác bậc ba. Tuy nhiên, phép tính toán sẽ trở nên rất dài dòng nếu tất cả ba thành phần được viết tường minh, và do đó chúng ta biểu diễn trường đặt vào là:

$$\tilde{\mathbf{E}}(t) = \sum_n \mathbf{E}(\omega_n) e^{-i\omega_n t}. \qquad (1.4.38)$$

Phương pháp giải tương tự như được dùng trong môi trường đối xứng không xuyên tâm. Chúng ta thay $\tilde{\boldsymbol{E}}$ (t) trong phương trình (1.4.36) bằng $\lambda\tilde{\boldsymbol{E}}$, ở đây λ là một tham số đặc trưng cho mức độ nhiễu loạn và được cho bằng 1 ở cuối quá trình tính toán. Chúng ta tìm nghiệm của phương trình (1.4.36) dưới dạng chuỗi lũy thừa theo tham số λ :

$$\tilde{\mathbf{r}}(t) = \lambda \tilde{\mathbf{r}}^{(1)}(t) + \lambda^2 \tilde{\mathbf{r}}^{(2)}(t) + \lambda^3 \tilde{\mathbf{r}}^{(3)}(t) + \cdots . \qquad (1.4.39)$$

Chúng ta thế phương trình (1.4.39) vào phương trình (1.4.36) và đòi hỏi rằng những số hạng tỉ lệ với λ^n biến mất một cách tách biệt đối với mỗi giá trị của n. Do đó, chúng ta tìm được

$$\ddot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(1)} + 2\gamma \dot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(1)} + \omega_0^2 \tilde{\mathbf{r}}^{(1)} = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m, \qquad (1.4.40a)$$

$$\ddot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(2)} + 2\gamma \dot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(2)} + \omega_0^2 \tilde{\mathbf{r}}^{(2)} = 0, \qquad (1.4.40b)$$

$$\ddot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(3)} + 2\gamma \dot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(3)} + \omega_0^2 \tilde{\mathbf{r}}^{(3)} - b\big(\tilde{\mathbf{r}}^{(1)} \cdot \tilde{\mathbf{r}}^{(1)}\big)\tilde{\mathbf{r}}^{(1)} = 0 \qquad (1.4.40c)$$

Tương ứng với *n=1,2* và *3*. Phương trình (1.4.40a) đơn giản là phiên bản vecto của phương trình (1.4.7a) mà chúng ta đã gặp ở trên. Nghiệm dừng của nó là

$$\tilde{\mathbf{r}}^{(1)}(t) = \sum_n \mathbf{r}^{(1)}(\omega_n) e^{-i\omega_n t}, \qquad (1.4.41a)$$

Ở đây

$$\mathbf{r}^{(1)}(\omega_n) = \frac{-e\mathbf{E}(\omega_n)/m}{D(\omega_n)} \qquad (1.4.41b)$$

với

$$D(\omega_n) = \omega_0^2 - \omega_n^2 - 2i\omega_n\gamma$$

bởi vì sự phân cực tại tần số ω_n là

$$\mathbf{P}^{(1)}(\omega_n) = -Ne\mathbf{r}^{(1)}(\omega_n), \qquad (1.4.42)$$

Chúng ta có thể mô tả các thành phần Đề Các của độ phân cực qua hệ thức

$$P_i^{(1)}(\omega_n) = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) E_j(\omega_n). \qquad (1.4.43a)$$

Ở đây độ cảm tuyến tính là

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) = \chi^{(1)}(\omega_n)\delta_{ij} \qquad (1.4.43b)$$

Với $\chi^{(1)}(\omega_n)$ được cho trong phương trình (1.4.17) là

$$\chi^{(1)}(\omega_n) = \frac{Ne^2/m}{\epsilon_0 D(\omega_n)} \qquad (1.4.43c)$$

và ở đây δ_{ij} là kí hiệu Kronecker, nó được định nghĩa là $\delta_{ij} = 1$ khi i=j và $\delta_{ij} = 0$ khi $i \neq j$.

Đáp ứng bậc hai của hệ thống được mô tả bởi phương trình (1.4.40b). Bởi vì phương trình này tắt dần mà không được điều khiển, nghiệm xác lập của nó biến mất, nghĩa là

$$\tilde{\mathbf{r}}^{(2)} = 0. \qquad (1.4.44)$$

Để tính toán đáp ứng bậc ba, chúng ta thế biểu thức của $\tilde{\boldsymbol{r}}^{(1)}(t)$ trong phương trình (1.4.41a) vào trong phương trình (1.4.40c), nó trở thành

$$\ddot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(3)} + 2\gamma\dot{\tilde{\mathbf{r}}}^{(3)} + \omega_0^2\tilde{\mathbf{r}}^{(3)} = -\sum_{mnp} \frac{be^3[\mathbf{E}(\omega_m)\cdot\mathbf{E}(\omega_n)]\mathbf{E}(\omega_p)}{m^3D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)} \times e^{-i(\omega_m+\omega_n+\omega_p)t}. \tag{1.4.45}$$

Bởi vì tổng được lấy trên *m*, *n* và *p*, vế phải của phương trình này chứa nhiều tần số khác nhau. Chúng ta kí hiệu một trong những tần số này là $\omega_q = \omega_m + \omega_n + \omega_p$. Do đó, nghiệm của phương trình (1.4.45) có thể được viết dưới dạng:

$$\tilde{\mathbf{r}}^{(3)}(t) = \sum_q \mathbf{r}^{(3)}(\omega_q)e^{-i\omega_q t}. \tag{1.4.46}$$

Chúng ta thế phương trình (1.4.46) vào trong phương trình (1.4.45) và tìm $\tilde{\boldsymbol{r}}^{(3)}(\omega_q)$

$$\left(-\omega_q^2 - i\omega_q 2\gamma + \omega_0^2\right)\mathbf{r}^{(3)}(\omega_q) = -\sum_{(mnp)} \frac{be^3[\mathbf{E}(\omega_m)\cdot\mathbf{E}(\omega_n)]\mathbf{E}(\omega_p)}{m^3D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)}, \tag{1.4.47}$$

ở đây tổng được lấy trên những tần số ω_m, ω_n, và ω_p với điều kiện là $\omega_m + \omega_n + \omega_p$ phải bằng ω_q. Bởi vì hệ số ở vế trái trước $\tilde{\boldsymbol{r}}^{(3)}(\omega_q)$ chính là $D(\omega_q)$, chúng ta thu được

$$\mathbf{r}^{(3)}(\omega_q) = -\sum_{(mnp)} \frac{be^3[\mathbf{E}(\omega_m)\cdot\mathbf{E}(\omega_n)]\mathbf{E}(\omega_p)}{m^3D(\omega_q)D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)}. \tag{1.4.48}$$

Do đó, biên độ của thành phần phân cực dao động tại tần số ω_q được tính theo biên độ này là

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega_q) = -Ne\mathbf{r}^{(3)}(\omega_q). \tag{1.4.49}$$

Tiếp theo, chúng ta sử dụng lại định nghĩa về độ cảm phi tuyến bậc ba trong phương trình (1.3.20),

$$P_i^{(3)}(\omega_q) = \epsilon_0 \sum_{jkl} \sum_{(mnp)} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q, \omega_m, \omega_n, \omega_p) E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) E_l(\omega_p). \tag{1.4.50}$$

Bởi vì phương trình này chứa tổng lấy trên những biến số giả *m*, *n*, và *p*, có nhiều cách chọn biểu thức của độ cảm phi tuyến. Một sự lựa chọn hiển nhiên cho biểu thức của độ cảm dựa trên cách viết phương trình (1.4.48) và (1.4.49) là

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q, \omega_m, \omega_n, \omega_p) = \frac{Nbe^4 \delta_{jk} \delta_{il}}{\epsilon_0 m^3 D(\omega_q) D(\omega_m) D(\omega_n) D(\omega_p)}. \tag{1.4.51}$$

Trong khi phương trình (1.4.51) là một biểu thức hoàn toàn thích hợp cho độ cảm phi tính, nó không biểu diễn rõ ràng và đầy đủ tính chất đối xứng của tương tác theo sự tùy ý của trường nào mà chúng ta gọi là $E_j(\omega_m)$, cái nào chúng ta gọi là $E_k(\omega_n)$ và cái nào mà chúng ta gọi là $E_l(\omega_p)$. Việc định nghĩa độ cảm phi tuyến để thể hiện sự đối xứng này là điều thông thường. Sự đối xứng này được gọi là đối xứng hoán vị nội tại. Bởi vì có 6 hoán vị thứ tự trong đó $E_j(\omega_m)$, $E_k(\omega_n)$ và $E_l(\omega_p)$ có thể được chọn, chúng ta định nghĩa độ cảm bậc 3 là một phần sáu của tổng của 6 biểu thức tương tự phương trình (1.4.51) với trường đầu vào được lấy trong tất cả những vị trí khả dĩ. Khi chúng ta thực hiện quy luật này, chúng ta nhận thấy rằng chỉ ba đóng góp riêng biệt xuất hiện và dạng cuối cùng của độ cảm phi tuyến là

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q, \omega_m, \omega_n, \omega_p) = \frac{Nbe^4[\delta_{ij}\delta_{kl} + \delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}]}{3\epsilon_0 m^3 D(\omega_q) D(\omega_m) D(\omega_n) D(\omega_p)}. \tag{1.4.52}$$

Biểu thức này có thể được viết lại theo độ cảm tuyến tính tại bốn tần số khác nhau ω_q, ω_m, ω_n, và ω_p bằng cách dùng phương trình (1.4.43c) để khử hệ số cộng hưởng ở mẫu số $D(\omega)$. Do đó, chúng ta thu được:

$$\begin{aligned}\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q, \omega_m, \omega_n, \omega_p) &= \frac{bm\epsilon_0^3}{3N^3e^4}\left[\chi^{(1)}(\omega_q)\chi^{(1)}(\omega_m)\chi^{(1)}(\omega_n)\chi^{(1)}(\omega_p)\right] \\ &\quad \times [\delta_{ij}\delta_{kl} + \delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}]. \end{aligned} \tag{1.4.53}$$

Chúng ta có thể ước tính giá trị của hằng số hiện tượng luận *b* xuất hiện trong kết quả này bằng cách sử dụng một đối số tương tự như được dùng ở trên (xem phương trình 1.4.30) để ước tính giá trị của hằng số *a* xuất hiện trong biểu thức của $\chi^{(2)}$. Chúng ta giả sử rằng sự đóng góp tuyến tính và phi tuyến vào lực phục hồi (phương trình 1.4.33) sẽ bằng nhau về độ lớn khi độ dịch chuyển vị trí $\tilde{x}$ bằng với kích thướt nguyên tử *d*, nghĩa là khi $m\omega_0^2 d = mbd^3$, suy ra:

$$b = \frac{\omega_0^2}{d^2}. \qquad (1.4.54)$$

Dùng biểu thức này của *b*, bây giờ chúng ta có thể ước tính giá trị của độ cảm phi tuyến. Đối với trường hợp kích thích không cộng hưởng, $D(\omega)$ gần bằng với ω_0^2, và vì thế từ phương trình (1.4.52) chúng ta thu được:

$$\chi^{(3)} \simeq \frac{Nbe^4}{\epsilon_0 m^3 \omega_0^8} = \frac{e^4}{\epsilon_0 m^3 \omega_0^6 d^5}. \qquad (1.4.55)$$

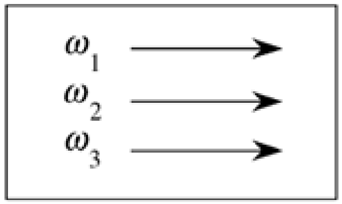
Cho $d = 3\mathring{A}$ và $\omega_0 = 7\times 10^{15} rad/\text{sec}$, chúng ta thu được

$$\chi^{(3)} \simeq 344\ \text{pm}^2/\text{V}^2 \qquad (1.4.56)$$

Trong chương 4, chúng ta sẽ thấy rằng giá trị này là điển hình cho độ cảm phi tuyến của nhiều loại vật liệu.

1.5. Tính chất của độ cảm phi tuyến

Trong phần này, chúng ta sẽ nghiên cứu một số tính chất đối xứng hình thức của độ cảm phi tuyến. Đầu tiên, chúng ta hãy tìm hiểu xem tại sao việc hiểu những tính chất đối xứng này rất quan trọng. Chúng ta hãy xét tương tác lẫn nhau của 3 sóng có tần số ω_1, ω_2, và $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, như được minh họa trong hình 1.5.1



Hình 1.5.1| Các sóng quang học tần số ω_1, ω_2 và $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ tương tác trong môi trường quang học phi tuyến bậc hai mất mát.

Một sự mô tả hoàn chỉnh về những sóng này đòi hỏi chúng ta phải biết độ phân cực phi tuyến $\boldsymbol{P}(\omega_i)$ ảnh hưởng lẫn nhau. Nói chung, bởi vì những đại lượng này được cho (xem phương trình 1.3.12) bởi biểu thức:

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(nm)} \chi^{(2)}_{ijk}(\omega_n + \omega_m, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) E_k(\omega_m), \quad (1.5.1)$$

Do đó chúng ta cần xác định 6 tenxo

$$\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_1, \omega_3, -\omega_2), \qquad \chi^{(2)}_{ijk}(\omega_1, -\omega_2, \omega_3), \qquad \chi^{(2)}_{ijk}(\omega_2, \omega_3, -\omega_1),$$

$$\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_2, -\omega_1, \omega_3), \qquad \chi^{(2)}_{ijk}(\omega_3, \omega_1, \omega_2), \quad \textbf{và} \quad \chi^{(2)}_{ijk}(\omega_3, \omega_2, \omega_1)$$

Và thêm 6 tenxo nữa trong đó mỗi tần số được thay bằng giá trị âm của nó. Trong những biểu thức này, chỉ số *i*, *j* và *k* có thể không phụ thuộc vào việc lấy những giá trị *x*, *y* và *z*. Vì mỗi thành phần trong 12 tenxo này chứa 27 thành phần Đề Các, vì thế cần phải có 324 số phức khác nhau cần được chỉ ra để mô tả tương tác.

May thay, có một số hạn chế bắt nguồn từ tính đối xứng thiết lập mối quan hệ giữa những thành phần khác nhau của $\chi^{(2)}$, và do đó cần ít hơn nhiều 324 số để mô tả sự kết hợp phi tuyến. Trong phần này, chúng ta nghiên cứu một số tính chất hình thức này của độ cảm phi tuyến. Chúng ta sẽ nghiên cứu độ cảm bậc hai $\chi^{(2)}$ nhưng có thể dễ dàng mở rộng cho $\chi^{(3)}$ và các bậc phi tuyến cao hơn.

1.5.1 Tính thực của trường

Chúng ta đã biết độ phân cực phi tuyến mô tả đáp ứng tần số tổng với trường đầu vào tại tần số ω_m và ω_n là

$$\tilde{P}_i(\mathbf{r},t) = P_i(\omega_n+\omega_m)e^{-i(\omega_n+\omega_m)t} + P_i(-\omega_n-\omega_m)e^{i(\omega_n+\omega_m)t}. \qquad (1.5.2)$$

Bởi vì $\tilde{P}_i(\boldsymbol{r}, t)$ là đại lượng vật lí có thể đo được, nó phải là số thực, và vì thế mối quan hệ giữa những thành phần tần số âm và dương của nó phải là

$$P_i(-\omega_n-\omega_m) = P_i(\omega_n+\omega_m)^*. \qquad (1.5.3)$$

Trường điện cũng phải là đại lượngng thực, và những thành phần tần số phức của nó cũng phải tuân theo điều kiện tương tự:

$$E_j(-\omega_n) = E_j(\omega_n)^*, \qquad (1.5.4a)$$

$$E_k(-\omega_m) = E_k(\omega_m)^*. \qquad (1.5.4b)$$

Bởi vì trường và độ phân cực liên hệ với nhau qua độ cảm bậc hai (phương trình 1.5.1), chúng ta suy ra rằng những thành phần tần số âm và dương của độ cảm phải liên hệ với nhau theo hệ thức

$$\chi^{(2)}_{ijk}(-\omega_n-\omega_m, -\omega_n, -\omega_m) = \chi^{(2)}_{ijk}(\omega_n+\omega_m, \omega_n, \omega_m)^*. \qquad (1.5.5)$$

1.5.2 Đối xứng hóan vị nội tại

Từ trước, chúng ta đã đưa vào đối xứng hoán vị nội tại khi chúng ta viết lại biểu thức (1.4.51) cho độ cảm phi tuyến của dao động tử phi điều hòa cổ điển dưới dạng thông thường trong phương trình (1.4.52). Trong phần này, chúng ta sẽ nghiên cứu đối xứng hoán vị nội tại theo một quan điểm tổng quát hơn.

Theo phương trình (1.5.1), một trong những đóng góp vào độ phân cực phi tuyến $\boldsymbol{P_i}(\omega_m+\omega_n)$ là tích

$$\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_n+\omega_m, \omega_n, \omega_m)E_j(\omega_n)E_k(\omega_m)$$

Tuy nhiên, bởi vì *j*, *k*, *n* và *m* là những chỉ số giả, do đó chúng ta có thể viết đóng góp này bằng cách thay *n* bằng *m* và *j* bằng *k*, nghĩa là

$$\chi_{ikj}^{(2)}(\omega_n+\omega_m,\omega_m,\omega_n)E_k(\omega_m)E_j(\omega_n)$$

Hai biểu thức này bằng nhau nếu độ cảm phi tuyến không thay đổi khi hoán vị đồng thời 2 đối số tần số cuối cùng của nó và 2 chỉ số Đề Các cuối cùng của nó:

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n+\omega_m,\omega_n,\omega_m)=\chi_{ikj}^{(2)}(\omega_n+\omega_m,\omega_m,\omega_n). \tag{1.5.6}$$

Tính chất này được gọi là đối xứng hoán vị nội tại. Nói một cách vật lí hơn, điều kiện này đơn giản chỉ là một phát biểu nói lên rằng trường nào là trường thứ nhất và trường nào là trường thứ hai trong tích $\boldsymbol{E}_j(\omega_n)\boldsymbol{E}_j(\omega_m)$ không quan trọng.

Chú ý rằng điều kiện đối xứng này được đưa vào một cách thuần túy để cho thuận tiện trong việc tính toán. Chẳng hạn, chúng ta có thể đặt một số hạng trong cặp nguyên tố được biểu diễn trong phương trình (1.5.6) bằng 0 và nhân đôi trị số của số hạng còn lại. Sau đó, khi phép nhân đôi tổng trong phương trình (1.5.1) được thực hiện, kết quả đối với đại lượng có ý nghĩa vật lí $\boldsymbol{P}_j(\omega_n+\omega_m)$ sẽ giữ không đổi.

Điều kiện đối xứng này cũng có thể được rút ra từ quan điểm tổng quát hơn dùng khái niệm hàm đáp ứng phi tuyến (Butcher, 1965; Flytzanis, 1975).

1.5.3 Đối xứng trong môi trường không mất mát

Hai đối xứng nữa của tenxơ độ cảm phi tuyến cần được thêm vào trong trường hợp môi trường phi tuyến không mất mát.

Điều đầu tiên trong số những điều kiện này phát biểu rằng đối với một môi trường không mất mát tất cả những thành phần của $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_n+\omega_m,\omega_n,\omega_m)$ là thực. Kết quả này cũng đúng cho dao động tử phi điều hòa cổ điển được thảo luận trong phần 1.4, và có thể được kiểm lại bằng cách đánh giá biểu thức của $\chi^{(2)}$ trong giới hạn mà ở đó tất cả những tần số đặt vào và tổng và hiệu của chúng khác đáng kể với tần số cộng hưởng. Sự chứng minh tổng quát rằng $\chi^{(2)}$ là thực đối với môi trường không mất mát thu được bằng cách chỉ ra rằng biểu thức cơ học lượng tử của $\chi^{(2)}$ cũng hòan tòan là thực trong giới hạn này (được thực hiện trong chương 3).

Cái thứ hai trong những đối xứng mới này là đối xứng hóan vị đầy đủ. Điều kiện này phát biểu rằng tất cả những đối số tần số của độ cảm phi tuyến có thể đổi chỗ tự do, với điều kiện là các chỉ số của hệ tọa độ Đề các phải thay đổi đồng thời. Trong việc hóan vị đối số tần số cần nhớ lại rằng đối số đầu tiên luôn là tổng của hai cái sau, và do đó tần số phải đổi dấu khi tần số đầu tiên hóan vị với một trong 2 tần số sau. Chẳng hạn như, đối xứng hóan vị đầy đủ ám chỉ rằng

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(-\omega_1 = \omega_2 - \omega_3). \qquad (1.57)$$

Tuy nhiên, theo phương trình (1.55), vế phải của phương trình này bằng $\chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2)^*$, bởi vì tính thực của $\chi^{(2)}$ đối với môi trường không mất mát, bằng $\chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2)$. Vì thế chúng ta kết luận rằng

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3). \qquad (1.58)$$

Bằng một quy trình tương tự, người ta chứng tỏ rằng

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jki}^{(2)}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1). \qquad (1.59)$$

Chứng minh trong trường hợp tổng quát về điều kiện của đối xứng hóan vị đầy đủ đòi hỏi phải xác nhận rằng biểu thức cơ học lượng tử của $\chi^{(2)}$ (sẽ được thực hiện trong chương 3) tuân theo điều kiện này khi tất cả các tần số quang bị mất điều hướng nhiều độ rộng phổ so với tần số cộng hưởng của môi trường quang học. Đối xứng hóan vị đầy đủ cũng có thể được suy ra từ sự xem xét mật độ năng lượng trường, như được chỉ ra bên dưới.

1.5.4 Mật độ năng lượng trường của môi trường phi tuyến

Điều kiện để cho độ cảm phi tuyến phải có hóan vị đầy đủ trong môi trường không mất mát cóthể được suy ra từ việc xem xét dạng của năng lượng trường điện từ trong môi trường phi tuyến. Đối với trường hợp của môi trường tuyến tính, mối liên hệ giữa mật độ năng lượng và cường độ trường điện

$$\tilde{E}_i(t) = \sum_n E_i(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \qquad (1.5.10)$$

được tính theo định lí Poynting

$$U = \frac{1}{2}\langle \tilde{\mathbf{D}} \cdot \tilde{\mathbf{E}} \rangle = \frac{1}{2}\sum_i \langle \tilde{D}_i \tilde{E}_i \rangle, \qquad (1.5.11)$$

ở đây dấu ngoặc nhọn biểu thị lấy trung bình theo thời gian. Bởi vì vectơ cảm ứng điện là

$$\tilde{D}_i(t) = \epsilon_0 \sum_j \epsilon_{ij} \tilde{E}_j(t) = \epsilon_0 \sum_j \sum_n \epsilon_{ij}(\omega_n) E_j(\omega_n) e^{-i\omega_n t}, \qquad (1.5.12)$$

ở đây tenxơ điện môi được cho bởi

$$\varepsilon_{ij}(\omega_n) = \delta_{ij} + \chi_{ij}^{(1)}(\omega_n), \qquad (1.5.13)$$

Chúng ta có thể viết mật độ năng lượng là

$$U = \frac{\epsilon_0}{2} \sum_i \sum_n E_i^*(\omega_n) E_i(\omega_n) + \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{ij} \sum_n E_i^*(\omega_n) \chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) E_j(\omega_n). \qquad (1.5.14)$$

Ở đây số hạng đầu tiên biểu diễn mật độ năng lượng liên quan đến trường điện trong chân không và số hạng thứ hai biểu diễn năng lượng được dự trữ do độ phân cực điện môi của môi trường.

Đối với môi trường phi tuyến, biểu thức của mật độ năng lượng trường điện (Kleiman, 1962; Armstrong và các cộng sự., 1962; Pershan, 1963) liên hệ với độ phân cực của môi trường có dạng tổng quát hơn

$$\begin{aligned} U = {} & \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{ij} \sum_n \chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) E_i^*(\omega_n) E_j(\omega_n) \\ & + \frac{\epsilon_0}{3} \sum_{ijk} \sum_{mn} \chi_{ijk}^{(2)\prime}(-\omega_n - \omega_m, \omega_m, \omega_n) E_i^*(\omega_m + \omega_n) E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) \\ & + \frac{\epsilon_0}{4} \sum_{ijkl} \sum_{mno} \chi_{ijkl}^{(3)\prime}(-\omega_o - \omega_n - \omega_m, \omega_m, \omega_n, \omega_o) \qquad (1.5.15) \\ & \times E_i^*(\omega_m + \omega_n + \omega_o) E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) E_l(\omega_o) + \cdots . \end{aligned}$$

Hiện tại, những đại lượng $\chi^{(2)'}$, $\chi^{(3)'}$, ….được xem là những hệ số trong khai triển chuỗi lũy thừa của U trong độ lớn của trường đặt vào; sau này, những đại lượng này có liên quan đến độ cảm phi tuyến. Bởi vì vị trí mà ở đó trường được nhân với nhau trong việc xác định U không quan trọng, những đại lượng $\chi^{(n)'}$ rõ ràng có đối xứng hóan vị đầy đủ, nghĩa là, những đối số tần số có thể được hóan vị tự do miễn là những chỉ số tương ứng cũng được hóan vị.

Để thiết lập mối quan hệ giữa biểu thức (1.5.15) của mật độ năng lượng với độ phân cực tuyến tính, rồi sau đó đến độ cảm phi tuyến, chúng ta dùng kết quả mà độ phân cực của môi trường được cho (Pershan, 1963; Landaw và Lifshtz,1960) bởi biểu thức

$$P_i(\omega_n) = \frac{\partial U}{\partial E_i^*(\omega_n)}. \tag{1.5.16}$$

Do đó, bằng cách lấy đạo hàm phương trình (1.5.15), chúng ta thu được một biểu thức cho độ phân cực tuyến tính

$$P_i^{(1)}(\omega_m) = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega_m) E_j(\omega_m), \tag{1.5.17a}$$

Và cho độ phân cực phi tuyến

$$P_i^{(2)}(\omega_m + \omega_n) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(mn)} \chi_{ijk}^{(2)'}(-\omega_m - \omega_n, \omega_m, \omega_n) E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) \tag{1.5.17b}$$

$$P_i^{(3)}(\omega_m + \omega_n + \omega_o) = \epsilon_0 \sum_{jkl} \sum_{(mno)} \chi_{ijkl}^{(3)'}(-\omega_m - \omega_n - \omega_o, \omega_m, \omega_n, \omega_o) \times E_j(\omega_m) E_k(\omega_n) E_l(\omega_o). \tag{1.5.17c}$$

Chúng ta chú ý rằng 2 biểu thức cuối cùng này giống với phương trình (1.3.12) và (1.3.20), nó xác định độ phân cực phi tuyến (ngọai trừ sự kiện không quan trọng là những đại lượng χ^n và $\chi^{n'}$ dùng những kí hiệu trái ngược đối với dấu của đối số tần số đầu tiên). Bởi vì $\chi^{n'}$ có đối xứng hóan vị đầy đủ , chúng ta suy ra rằng độ cảm χ^ncũng vậy. Chú ý rằng sự chứng minh này chỉ có giá trị cho môi trường không mất mát bởi vì chỉ trong trường hợp này nội năng mới là hàm trạng thái.

1.5.5.Đối xứng Kleinman

Thường thì tương tác quang phi tuyến bao gồm những sóng quang mà tần số ω_i của nó nhỏ hơn rất nhiều tần số cộng hưởng thấp nhất của hệ vật liệu. Trong những điều kiện này, về cơ bản độ cảm phi tuyến không phụ thuộc vào tần số. Chẳng hạn, biểu thức (1.4.24) đối với độ cảm bậc 2 của dao động tử phi điều hòa tiên đóan rằng giá trị của độ cảm không phụ thuộc vào tần số của sóng đặt vào bất cứ khi nào những tần số này nhỏ hơn nhiều so với tần số cộng hưởng ω_0. Hơn nữa, trong điều kiện kích thích tần số thấp hệ thống đáp ứng một cách tức thời với trường đặt vào, và chúng ta đã thấy trong phần 1.2 rằng trong những điều kiện như thế, độ phân cực phi tuyến có thể được mô tả trong miền thời gian theo biểu thức

$$\tilde{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \tilde{E}^2(t), \tag{1.5.18}$$

Ở đây $\chi^{(2)}$ có thể được chọn là một hằng số.

Bởi vì môi trường tất yếu sẽ không tổn hao bất cứ lúc nào những tần số ω_i lớn hơn nhiều so với tần số cộng hưởng ω_0, điều kiện đối xứng hóan vị đầy đủ (1.5.7) phải đúng trong trường hợp này. Điều kiện này phát biểu rằng những chỉ số có thể được hóan vị miễn là tần số được hóan vị một cách đồng thời và nó dẫn đến kết luận rằng

$$\begin{aligned}\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) &= \chi^{(2)}_{jki}(\omega_1 = -\omega_2 + \omega_3) = \chi^{(2)}_{kij}(\omega_2 = \omega_3 - \omega_1)\\ &= \chi^{(2)}_{ikj}(\omega_3 = \omega_2 + \omega_1) = \chi^{(2)}_{kji}(\omega_2 = -\omega_1 + \omega_3)\\ &= \chi^{(2)}_{jik}(\omega_1 = \omega_3 - \omega_2).\end{aligned}$$

Tuy nhiên, trong trường hợp đang xét $\chi^{(2)}$ không thật sự phụ thuộc vào tần số, và do đó chúng ta có thể hóan vị những chỉ số mà không hóan vị tần số, dẫn đến kết quả

$$
\begin{aligned}
\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) &= \chi_{jki}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{kij}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \\
&= \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) = \chi_{jik}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \\
&= \chi_{kji}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2). \qquad (1.5.19)
\end{aligned}
$$

Kết quả này được gọi là *điều kiện đối xứng Kleinman*. Nó đúng bất cứ khi nào sự tán sắc của độ cảm có thể được bỏ qua.

1.5.6 Kí hiệu quy ước

Bây giờ chúng ta đưa vào những kí hiệu quy ước thường được dùng khi điều kiện đối xứng Kleinman có giá trị. Chúng ta đưa vào tenxơ

$$d_{ijk} = \frac{1}{2}\chi_{ijk}^{(2)} \qquad (1.5.20)$$

nhằm mục đích triệt tiêu những đối số tần số. Do đó độ phân cực phi tuyến có thể được viết là

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(nm)} 2d_{ijk} E_j(\omega_n) E_k(\omega_m). \qquad (1.5.21)$$

Bây giờ chúng ta giả sử rằng d_{ijk} đối xứng ở hai chỉ số cuối của nó. Giả thuyết này đúng bất cứ khi nào điều kiện đối xứng Kleinman đúng và cũng đúng cho trường hợp tổng quát là sự tạo sóng hài bậc hai, bởi vì trong trường hợp này ω_n và ω_m bằng nhau. Do đó chúng ta đơn giản hóa kí hiệu bằng cách đưa vào ma trận quy ước d_{il} theo quy luật

$$
\begin{array}{lcccccc}
jk: & 11 & 22 & 33 & 23,32 & 31,13 & 12,21 \\
l: & 1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6
\end{array} \qquad (1.5.22)
$$

Do đó tenxơ độ cảm phi tuyến có thể được biểu diễn như một ma trận 3×6

$$d_{il} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix}. \qquad (1.5.23)$$

Bây giờ nếu chúng ta đưa vào một cách rõ ràng điều kiện đối xứng Kleiman, nghĩa là chúng ta khẳng định những chỉ số d_{ijk} có thể được hóan vị tự do, chúng ta nhận thấy rằng không phải tất cả 18 thành phần của d_{il} đều độc lập. Chẳng hạn, chúng ta thấy rằng

$$d_{12} \equiv d_{122} = d_{212} \equiv d_{26} \qquad (1.5.24a)$$

Và

$$d_{14} \equiv d_{123} = d_{213} \equiv d_{25}. \qquad (1.5.24b)$$

Bằng cách áp dụng những đối số lọai này một cách hệ thống, chúng ta nhận thấy rằng d_{il} chỉ có 10 thành phần độc lập khi điều kiện đối xứng Kleiman nghiệm đúng; dạng của d_{il} trong những điều kiện này là

$$d_{il} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{16} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{14} & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & d_{33} & d_{23} & d_{13} & d_{14} \end{bmatrix}. \qquad (1.5.25)$$

Chúng ta có thể mô tả độ phân cực phi tuyến dẫn đến sự tạo sóng hài bậc 2 theo d_{il} bằng phương trình ma trận

$$\begin{bmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{bmatrix} = 2 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x(\omega)^2 \\ E_y(\omega)^2 \\ E_z(\omega)^2 \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{bmatrix}. \qquad (1.5.26)$$

Khi điều kiện đối xứng Kleinman nghiệm đúng, chúng ta có thể mô tả độ phân cực phi tuyến dẫn đến sự tạo dao động tần số tổng (với $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$) bằng phương trình

$$\begin{bmatrix} P_x(\omega_3) \\ P_y(\omega_3) \\ P_z(\omega_3) \end{bmatrix} = 4\varepsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix}$$

$$\times \begin{bmatrix} E_x(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_z(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_y(\omega_1)E_x(\omega_2) \end{bmatrix}. \qquad (1.5.27)$$

Như được mô tả ở trên, trong mối quan hệ với phương trình 1.3.16, hệ số bổ sung 2 xuất hiện do việc lấy tổng trên n và m trong phương trình (1.5.21).

1.5.7 Giá trị hiệu dụng của d (d_{eff})

Đối với hình học cố định (nghĩa là , đối với sự truyền và hướng phân cực cố định) có thể biểu diễn độ phân cực phi tuyến làm phát sinh sự tạo tần số tổng qua biểu thức vô hướng

$$P(\omega_3) = 4\epsilon_0 d_{\text{eff}} E(\omega_1) E(\omega_2), \qquad (1.5.28)$$

Và tương tự cho sự tạo sóng hài bậc 2

$$P(2\omega) = 2\epsilon_0 d_{\text{eff}} E(\omega)^2, \qquad (1.5.29)$$

Ở đây

$$E(\omega) = |\mathbf{E}(\omega)| \quad \textbf{và} \quad P(\omega) = |\mathbf{P}(\omega)|.$$

Trong mỗi trường hợp, d_{eff} thu được bằng cách đầu tiên xác định $\boldsymbol{P}$ một cách tường minh qua việc dùng các phương trình (1.5.26) hoặc (1.5.27).

Cách thức tính tóan tổng quát d_{eff} cho mỗi lớp tinh thể đã được đưa ra bởi Midwinter và Warner (1965); xem bảng 3.1 của Zernike và Midwinter(1973). Chẳng hạn, họ chứng minh rằng đối với những tinh thể một trục âm thuộc lớp tinh thể *3m*, giá trị hiệu dụng của *d* được cho bởi biểu thức

$$d_{eff} = d_{31} \sin\theta - d_{22} \cos\theta \sin 3\phi \qquad (1.5.30a)$$

Trong những điều kiện (được gọi là điều kiện lọai I) mà 2 sóng tần số thấp hơn có cùng độ phân cực, thì

$$d_{eff} = d_{22} \cos^2\theta \cos 3\phi \qquad (1.5.30b)$$

Trong những điều kiện (được gọi là điều kiện lọai II) trong đó các độ phân cực vuông góc. Trong những phương trình này, θ là góc giữa vectơ truyền sóng và trục tinh thể z (trục quang học) và ϕ là góc phương vị giữa vectơ truyền và mặt phẳng tinh thể xz.

1.5.8 Đối xứng không gian của môi trường phi tuyến

Dạng của tenxơ độ cảm phi tuyến và tuyến tính phụ thuộc vào tính chất đối xứng của môi trường quang học. Để hiểu được tại sao như thế, chúng ta hãy xem xét một tinh thể có hướng x và y tương đương nhưng hướng z thì khác. Hướng x và y tương đương có nghĩa là nếu tinh thể được quay một góc 90^0 xung quanh trục z, cấu trúc tinh thể không thay đổi. Do đó, trục z được gọi là trục đối xứng bậc 4 của tinh thể. Đối với một tinh thể như thế, chúng ta tiên đoán rằng đáp ứng quang học sẽ tương tự nhau khi trường quang học được đặt vào theo hướng x hoặc y, và do đó, chẳng hạn, thành phần độ cảm bậc 2 $\chi^{(2)}_{zxx}$ và $\chi^{(2)}_{zyy}$ sẽ bằng nhau.

Đối với bất cứ một tinh thể nào, dạng của độ cảm quang học phi tuyến và tuyến tính được xác định bằng cách xem xét hệ quả của tất cả những tính chất đối xứng đối với tinh thể đó. Vì lí do này, cần thiết phải xác định những lọai tính chất đối xứng có thể xuất hiện trong môi trường tinh thể. Bằng cách dùng lí thuyết nhóm, những nhà nghiên cứu tinh thể học đã nhận thấy rằng tất cả các tinh thể có thể được chia thành 32 lớp tinh thể phụ thuộc vào đối xứng nhóm điểm của tinh thể. Chi tiết về cách phân lọai này nằm ngòai phạm vi nghiên cứu của cuốn sách này.

Tuy nhiên , có thể lấy ví dụ là, một tinh thể được gọi là thuộc nhóm điểm 4 nếu nó chỉ có trục đối xứng bậc 4, nhóm điểm 3 nếu nó chỉ có một trục đối xứng bậc 3, và thuộc nhóm điểm *3m* nếu nó có trục đối xứng bậc 3 và thêm một mặt phẳng đối xứng gương vuông góc với trục này.

1.5.9 Ảnh hưởng của đối xứng không gian đến tính chất quang học tuyến tính của môi trường vật chất

Để minh họa về hệ quả của đối xứng không gian ảnh hưởng đến tính chất quang học của hệ vật liệu, đầu tiên chúng ta hãy xem xét trường hợp hạn chế, đó là những đối xứng này quyết định dạng của tenxơ độ cảm tuyến tính $\chi^{(1)}$. Kết quả của việc phân tích lí thuyết nhóm chứng tỏ rằng 5 trường hợp khác nhau có thể xảy ra phụ thuộc vào tính chất đối xứng của hệ vật chất. Những tính chất này được tóm tắt trong bảng 1.5.1. Mỗi mục được đặt tên theo hệ tinh thể của vật liệu. Theo lệ thường, tinh thể được xếp theo 7 hệ tinh thể dựa trên dạng của mạng tinh thể. (Bảng1.5.2 bên dưới cho sự tương ứng giữa một hệ tinh thể với một trong 32 nhóm điểm). Để cho hòan chỉnh, những vật liệu đẳng hướng (chẳng hạn như chất lỏng và cất khí) cũng được đưa vào trong bảng 1.5.1. Từ bảng này chúng ta thấy rằng những vật liệu đảng hướng và lập phương là đẳng hướng trong tính chất quang học tuyến tính của chúng, bởi vì $\chi^{(1)}$ là chéo với những thành phần trên đường chéo bằng nhau.

Bảng 1.5.1| Dạng của tenxo độ cảm tuyến tính $\chi^{()}$ được xác định qua tính chất đối xứng của môi trường quang học, đối với 6 lớp tinh thể và đối với vật liệu đẳng hướng. Mỗi yếu tố không biến mất được kí hiệu bởi chỉ số Đề các của nó.

Tam tà	$\begin{bmatrix} xx & xy & xz \\ yx & yy & yz \\ zx & zy & zz \end{bmatrix}$
Đơn tà	$\begin{bmatrix} xx & 0 & xz \\ 0 & yy & 0 \\ zx & 0 & zz \end{bmatrix}$
Hệ hình thoi	$\begin{bmatrix} xx & 0 & 0 \\ 0 & yy & 0 \\ 0 & 0 & zz \end{bmatrix}$
Tứ giác Tam giác Lục giác	$\begin{bmatrix} xx & 0 & 0 \\ 0 & xx & 0 \\ 0 & 0 & zz \end{bmatrix}$
Lập phương Đẳng hướng	$\begin{bmatrix} xx & 0 & 0 \\ 0 & xx & 0 \\ 0 & 0 & xx \end{bmatrix}$

Bảng 1.5.2|| Dạng của tenxo độ cảm bậc hai của 32 lớp tinh thể. Mỗi yếu tố được kí hiệu bằng chỉ số Đề các của nó.

Hệ tinh thể	Lớp tinh thể	Những yếu tố tenxo không biến mất
Tam tà	$1 = C_1$	Tất cả các yếu tố không phụ thuộc và khác không
	$\bar{1} = S_2$	Mỗi yếu tố biến mất
Đơn tà	$2 = C_2$	$xyz, xzy, xxy, xyx, yxx, yyy, yzz, yzx, yxz, zyz,$ zzy, zxy, zyx (trục bậc hai song song với $\hat{y}$)
	$m = C_{1h}$	$xxx, xyy, xzz, xzx, xxz, yyz, yzy, yxy, yyx, zxx,$ zyy, zzz, zzx, zxz (mặt phẳng gương vuông góc với $\hat{y}$)
	$2/m = C_{2h}$	Mỗi yếu tố biến mất
Hệ hình thoi	$222 = D_2$	$xyz, xzy, yzx, yxz, zxy, zyx$
	$mm2 = C_{2v}$	$xzx, xxz, yyz, yzy, zxx, zyy, zzz$
	$mmm = D_{2h}$	Mỗi yếu tố biến mất
Tứ giác	$4 = C_4$	$xyz = -yxz, xzy = -yzx, xzx = yzy, xxz = yyz,$ $zxx = zyy, zzz, zxy = -zyx$
	$\bar{4} = S_4$	$xyz = yxz, xzy = yzx, xzx = -yzy, xxz = -yyz,$ $zxx = -zyy, zxy = zyx$
	$422 = D_4$	$xyz = -yxz, xzy = -yzx, zxy = -zyx$
	$4mm = C_{4v}$	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz$
	$\bar{4}2m = D_{2d}$	$xyz = yxz, xzy = yzx, zxy = zyx$
	$4/m = C_{4h}$	Mỗi yếu tố biến mất
	$4/mmm = D_{4h}$	Mỗi yếu tố biến mất
Lập phương	$432 = O$	$xyz = -xzy = yzx = -yxz = zxy = -zyx$
	$\bar{4}3m = T_d$	$xyz = xzy = yzx = yxz = zxy = zyx$
	$23 = T$	$xyz = yzx = zxy, xzy = yxz = zyx$
	$m3 = T_h, m3m = O_h$	Mỗi yếu tố biến mất
Tam giác	$3 = C_3$	$xxx = -xyy = -yyz = -yxy, xyz = -yxz, xzy = -yzx,$ $xzx = yzy, xxz = yyz, yyy = -yxx = -xxy = -xyx,$ $zxx = zyy, zzz, zxy = -zyx$
	$32 = D_3$	$xxx = -xyy = -yyx = -yxy, xyz = -yxz,$ $xzy = -yzx, zxy = -zyx$
	$3m = C_{3v}$	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz, yyy = -yxx =$ $-xxy = -xyx$ (mặt phẳng gương vuông góc với $\hat{x}$)
	$\bar{3} = S_6, \bar{3}m = D_{3d}$	Mỗi yếu tố biến mất
Lục giác	$6 = C_6$	$xyz = -yxz, xzy = -yzx, xzx = yzy, xxz = yyz,$ $zxx = zyy, zzz, zxy = -zyx$
	$\bar{6} = C_{3h}$	$xxx = -xyy = -yxy = -yyx,$ $yyy = -yxx = -xyx = -xxy$
	$622 = D_6$	$xyz = -yxz, xzy = -yxz, zxy = -zyx$
	$6mm = C_{6v}$	$xzx = yzy, xxz = yyz, zxx = zyy, zzz$
	$\bar{6}m2 = D_{3h}$	$yyy = -yxx = -xxy = -xyx$
	$6/m = C_{6h}$	Mỗi yếu tố biến mất
	$6/mmm = D_{6h}$	Mỗi yếu tố biến mất

Tất cả những hệ tinh thể còn lại là dị hướng trong tính chất quang học tuyến tính của chúng (với ý nghĩa là độ phân cực *P* không cần song song với trường điện *E* đặt vào) và do đó biểu thị tính chất lưỡng chiết quang. Những hệ tinh thể tứ giác, tam giác và lục giác được gọi là những tinh thể đơn trục bởi vì chỉ có một hướng đặc biệt (trục z) mà ở đó tính chất quang học tuyến tính thể hiện đối xứng quay. Những hệ tinh thể tam tà, đơn tà, và trực thoi được gọi là lưỡng trục.

1.5.10 Ảnh hưởng của đối xứng đảo đến đáp ứng phi tuyến bậc II

Một trong những tính chất đối xứng mà một số chứ không phải tất cả tinh thể có là đối xứng xuyên tâm hay còn gọi là đối xứng đảo. Đối với những hệ vật liệu đối xứng xuyên tâm (nghĩa là, có một tâm nghịch đảo) độ cảm phi tuyến $\chi^{(2)}$ phải biến mất đồng thời. Bởi vì 11 trong số 32 lớp tinh thể có đối xứng đảo, quy luật này rất có hiệu quả, vì nó sẽ ngay lập tức cho ta biết tinh thể thuộc lớp nào từ việc xem xét tương tác quang phi tuyến bậc 2.

Mặc dù kết quả $\chi^{(2)}$ biến mất đối với môi trường đối xứng xuyên tâm là tổng quát về mặt bản chất, chúng ta sẽ chứng minh rằng điều này chỉ đúng cho trường hợp đặc biệt là sự tạo sóng hài bậc 2 trong môi trường đáp ứng một cách tức thời với trường quang học đặt vào. Chúng ta giả sử rằng độ phân cực phi tuyến được cho bởi

$$\tilde{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \tilde{E}^2(t), \tag{1.5.31}$$

Ở đây, trường đặt vào là

$$\tilde{E}(t) = \varepsilon \cos\omega(t) \tag{1.5.32}$$

Nếu bây giờ chúng ta thay đổi dấu của trường đặt vào $\tilde{E}(t)$, dấu của độ phân cực cảm ứng $\tilde{P}(t)$ cũng phải thay đổi bởi vì chúng ta đã giả sử rằng môi trường có đối xứng đảo. Vì thế biểu thức(1.5.31) phải được thay thế bằng

$$-\tilde{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[-\tilde{E}(t)\right]^2, \tag{1.5.33}$$

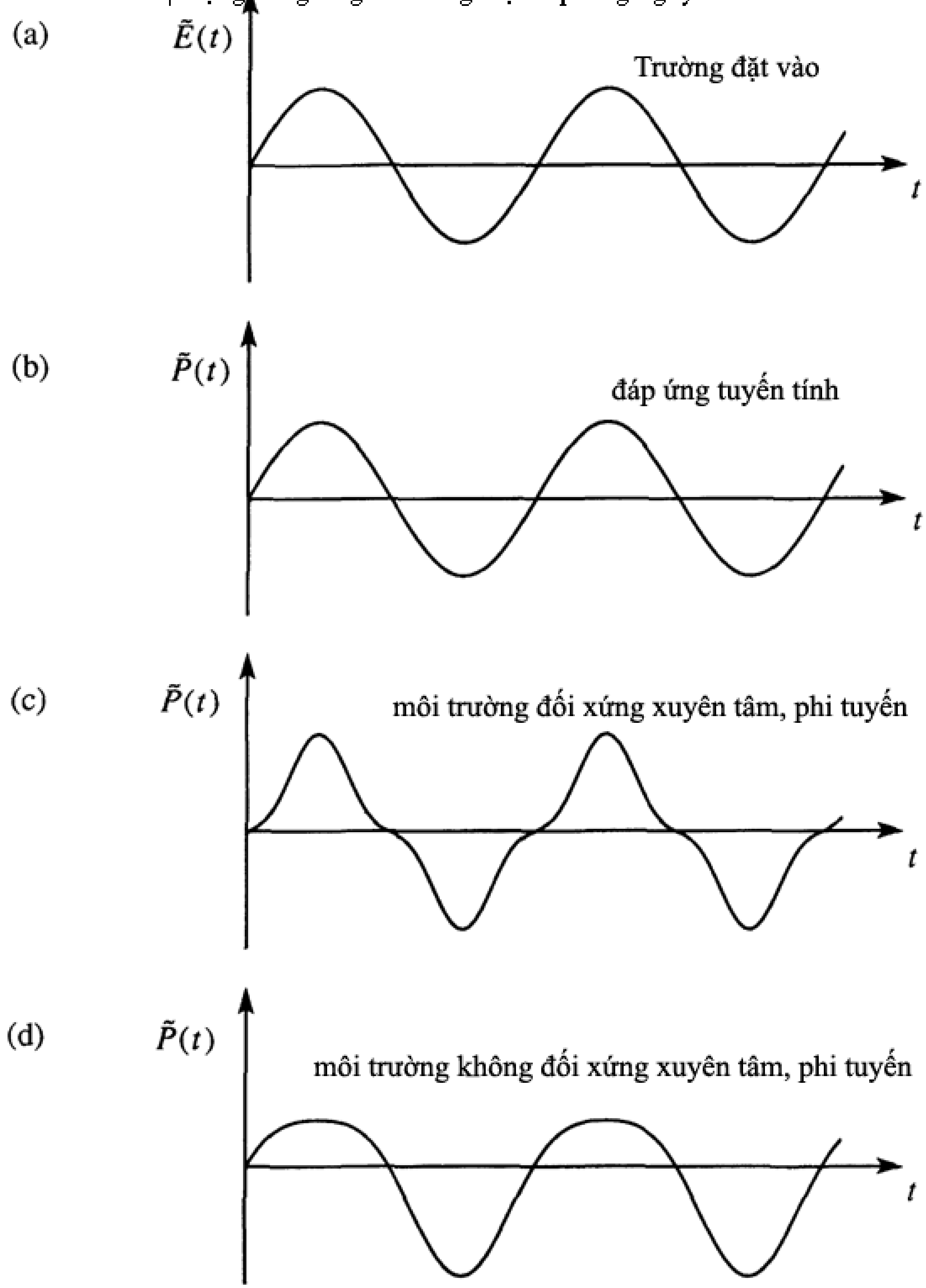
nó chứng tỏ rằng

$$-\tilde{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \tilde{E}^2(t). \quad (1.5.34)$$

Bằng cách so sánh kết quả này với phương trình (1.5.31) , chúng ta sẽ thấy rằng $\tilde{P}(t)$ sẽ bằng $-\tilde{P}(t)$, điều này chỉ có thể xuất hiện nếu $\tilde{P}(t)$ biến mất đồng thời. Kết quả này chứng tỏ rằng

$$\chi^{(2)} = 0 \quad (1.5.35)$$

Hình 1.5.2| Dạng sóng ứng với từng loại đáp ứng nguyên tử



Kết quả này có thể hiểu được một cách trực giác bằng cách xét chuyển động của một electron trong một giếng thế phi parabol. Bởi vì sự phi tuyến của lực phục hồi tương ứng, đáp ứng nguyên tử sẽ thể hiện sự biến dạng sóng hài đáng kể. Phần a của hình (1.5.2) biểu diễn dạng sóng của sóng điện từ đơn sắc tới có tần số ω. Đối với môi trường đáp ứng tuyến tính (phần b), không có sự méo dạng sóng gắn với sự phân cực của môi trường. Phần c biễu diễn độ phân cực cảm ứng cho trường hợp môi trường phi tuyến có tâm đối xứng và hàm thế năng của chúng có dạng như trong phương trình 1.4.2. Mặc dù sự méo dạng sóng đáng kể là hiển nhiên, chỉ những hài bậc lẻ của tần số cơ bản là có mặt. Đối với trường hợp của môi trường phi tuyến (phần d), không đối xứng xuyên tâm có hàm thế năng như dạng được chỉ ra trong hình. 1.4.1, cả hài bậc chẵn và bậc lẻ đều có mặt trong dạng sóng ứng với đáp ứng nguyên tử. Cũng cần chú ý sự khác nhau định lượng giữa dạng sóng trong phần (c) và (d). Đối với môi trường đối xứng xuyên tâm (phần c), đáp ứng trung bình theo thời gian bằng 0, trong khi đối với môi trường không đối xứng xuyên tâm (phần d) đáp ứng trung bình theo thời gian khác không, bởi vì môi trường sẽ đáp ứng khác nhau đối với sự định hướng của trường điện, có thể là theo hướng lên trên hơn là định hướng xuống phía dưới.

1.5.11 Ảnh hưởng của đối xứng không gian đến độ cảm bậc II

Chúng ta vừa thấy rằng khi một môi trường có đối xứng đảo hiện diện thì bậc hai phải đồng nhất bằng 0. Đối với môi trường quang học phi tuyến, khi có thêm những tính chất đối xứng cũng có nghĩ là có thêm những hạn chế được áp đặt trên dạng của tenxơ độ cảm phi tuyến. Bằng sự xem xét rõ ràng những đối xứng trong mỗi lớp trong số 32 lớp tinh thể, người ta có thể xác định những dạng được phép của tenxơ độ cảm của tinh thể của lớp đó. Kết quả của những tính tóan đó đối với đáp ứng quang học phi tuyến bậc II, được thực hiện đầu tiên bởi Butcher (1965), được đưa vào trong bảng 1.5.2. Trong những điều kiện này (được mô tả trong phương trình. 1.5.21 bên dưới) ở đây độ cảm bậc 2 có thể được mô tả dùng những kí hiệu quy ước, kết quả được cho trong bảng 1.5.2 có thể hữu dụng nếu được biễu diễn dưới dạng đồ thị. Những kết quả này, khi được hiệu chỉnh bởi Zernike và Midwinter (1973), được đưa vào trong hình.1.5.3. Chú ý rằng ảng hưởng của đối xứng Kleinman cũng được mô tả trong hình. Như là một ví dụ về cách dùng bảng, biểu đồ cho tinh thể thuộc lớp *3m* muốn ám chỉ rằng dạng của ma trận d_{il} là

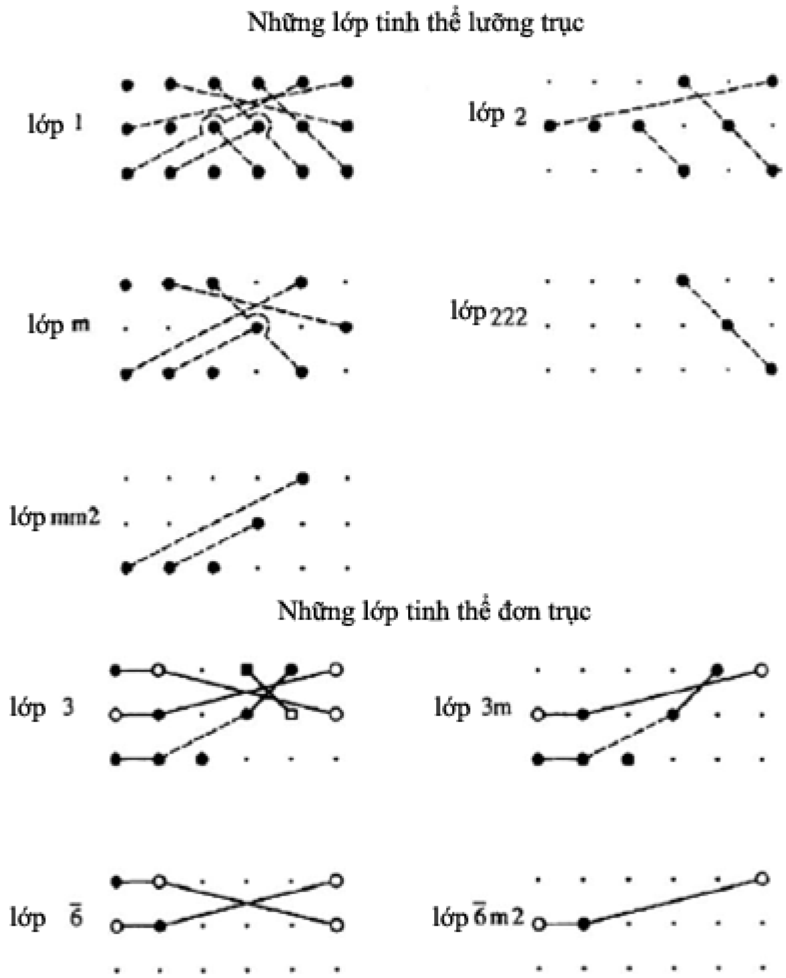
$$d_{il} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Độ cảm quang học phi tuyến bậc 2 của một số tinh thể được tóm tắt trong bảng 1.5.3. Bảng này nên được dùng thận trọng. Không có sự mở rộng đáng kể giá trị của hệ số phi tuyến được dẫn ra trong tài liệu do bước sóng phụ thuộc vào độ cảm phi tuyến và cả do việc đo không chính xác. Sự phân tích chi tiết về sự đo các hệ số phi tuyến đã được nêu ra bởi Shoji và các cộng sự (1997). Các tài liệu tham khảo được dẫn ra trong lời chú ở cuối bảng cung cấp cách phân loại chi tiết hơn về hệ số phi tuyến.

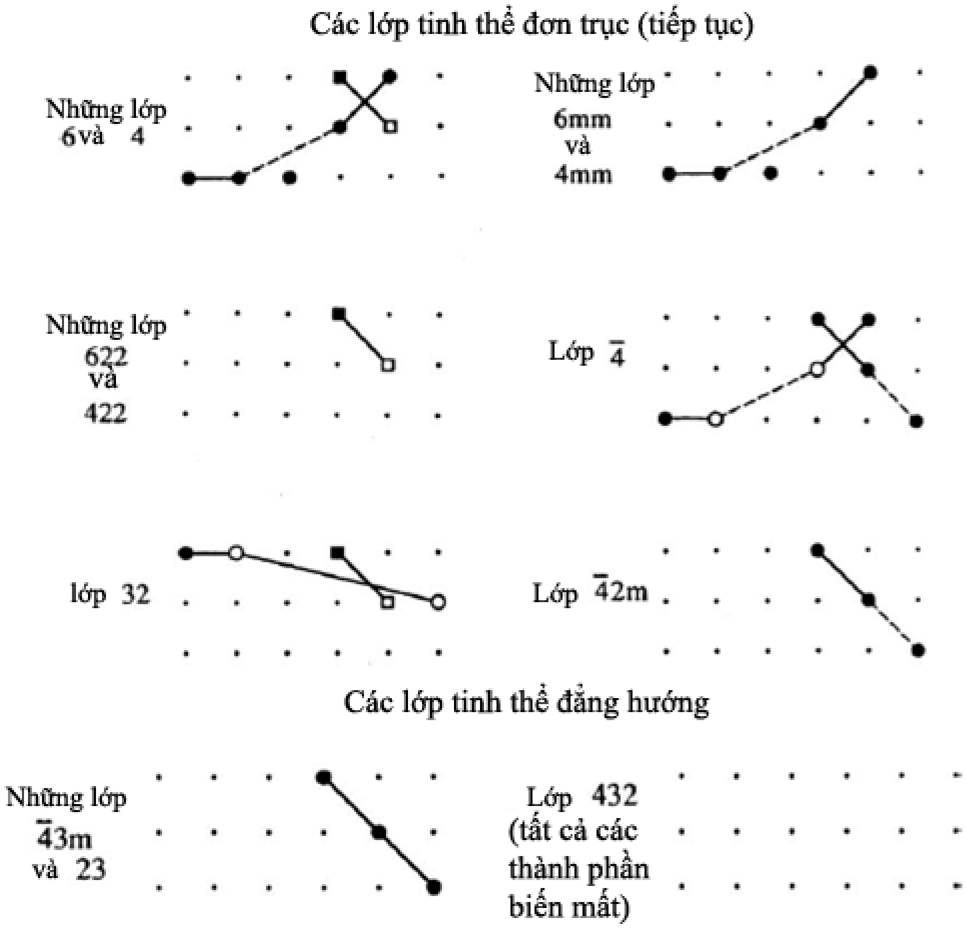
1.5.12. Số yếu tố độc lập của $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{3,}\omega_{2,}\omega_1)$

Từ hệ thức (1.5.1), chúng ta nhận thấy rằng cần phải có 324 số phức được chỉ ra để mô tả tương tác tổng quát của 3 sóng quang học. Trong thực tế, số lượng này thường được rút ngắn hơn rất nhiều.

Bởi vì tính thực của trường vật lí, một nửa của số này là độc lập (xem phuưuowng trình 1.5.5). Hơn nữa, đối xứng hoán vị nội tại của $\chi^{(2)}$ (phương trình 1.5.6) chứng tỏ rằng chỉ có 81 tham số độc lập.



Hình 1.5.3| Dạng của ma trận d_{il} của 21 lớp tinh thể không có đối xứng đảo. Chấm nhỏ: hệ số bằng 0; chấm lớn: hệ số khác 0; ô vuông : hệ số bằng 0 khi đối xứng Kleinman thõa mãn; Các kí hiệu kết nối: hệ số bằng số, nhưng hệ số kí hiệu mở ngược dấu với kí hiệu đóng mà nó được nối. Những nối gạch gạch chỉ đúng trong điều kiện đối xứng Kleinman. (Theo Zernike và Midwinter, 1973)



Hình 1.5.3

Đối với môi trường mất mát, tất cả các thành phần của $\chi^{(2)}$ là thực và điều kiện đối xứng hoán vị đầy đủ sẽ đúng, có nghĩa là chỉ 27 trong số các số này là độc lập. Đối với sự tạo sóng hài bậc 2, kí hiệu quy ước có thể được dùng, và chỉ 18 thành phần độc lập tồn tại. Khi đối xứng Kleinman có giá trị, chỉ 10 trong số những thành phần này có giá trị. Hơn nữa, bất kì đối xứng tinh thể của vật liệu phi tuyến có thể giảm bớt số này nữa.

1.5.13 Phân biệt giữa lớp tinh thể đối xứng không xuyên tâm và đối xứng lập phương

Cần biết rằng một vật liệu có thể có đối xứng lập phương và cả đối xứng không xuyên tâm. Thật vậy, GaAs là một điễn hình về những vật liệu có tính chất này. Tinh thể GaAS có cấu trúc tinh thể thuộc loại ZnS (được đặt tên theo một dạng khóang vật phổ biến của kẽm sunfua), có nhóm điểm tinh thể là 42m. Có thể thấy từ bảng 1.5.2 hoặc từ hình. 1.5.3, những vật liệu thuộc lớp tinh thể 42m có đáp ứng quang học phi tuyến bậc II không biến mất. Quả thực, như có thể thấy từ bảng 1.5.3, GaAs có một độ cảm phi tuyến bậc 2 lớn khác thường.Tuy nhiên, vì cấu trúc tinh thể ZnS có một mạng lập phương, GaAs không thể hiện tính lưỡng chiết. Trong chương 2 chúng ta sẽ thấy rằng để điều kiện đáp ứng pha của quang học phi tuyến được thõa mãn thì vật liệu phải có tính lưỡng chiết thích hợp. Bởi vì GaAs không có tính lưỡng chiết, nó không thể tham gia vào tương tác bậc 2 kết hợp pha.

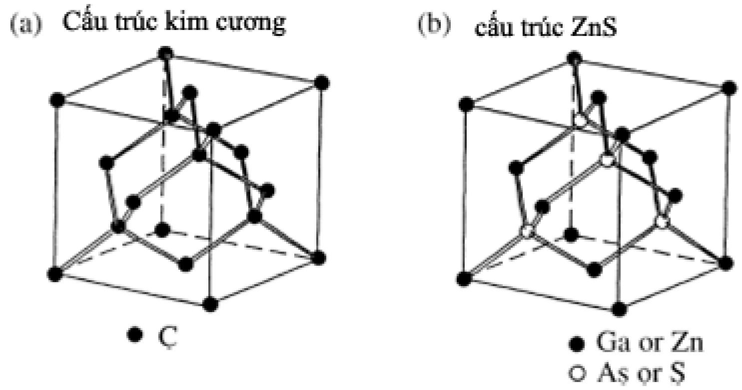
BẢNG 1.5.3 Độ cảm quang học phi tuyến bậc hai của vài tinh thể

Vật liệu	Nhóm điểm	d_{il} (pm/V)
Ag_3AsS_3 (proustite)	$3m = C_{3v}$	$d_{22} = 18$ $d_{15} = 11$
$AgGaSe_2$	$\bar{4}2m = D_{2d}$	$d_{36} = 33$
$AgSbS_3$ (pyrargyrite)	$3m = C_{3v}$	$d_{15} = 8$ $d_{22} = 9$
beta-BaB_2O_4 (BBO) (beta barium borate)	$3m = C_{3v}$	$d_{22} = 2.2$
$CdGeAs_2$	$\bar{4}2m = D_{2d}$	$d_{36} = 235$
CdS	$6mm = C_{6v}$	$d_{33} = 78$ $d_{31} = -40$
GaAs	$\bar{4}3m$	$d_{36} = 370$
KH_2PO_4 (KDP)	$2m$	$d_{36} = 0.43$
KD_2PO_4 (KD*P)	$2m$	$d_{36} = 0.42$
$LiIO_3$	$6 = C_6$	$d_{15} = -5.5$ $d_{31} = -7$
$LiNbO_3$	$3m = C_{3v}$	$d_{32} = -30$ $d_{31} = -5.9$
Quartz	$32 = D_3$	$d_{11} = 0.3$ $d_{14} = 0.008$

Notes: Values are obtained from a variety of sources. Some of the more complete tabulations are those of R.L. Sutherland (1996), that of A.V. Smith, and the data sheets of Cleveland Crystals, Inc.

To convert to the gaussian system, multiply each entry by $(3 \times 10^{-8})/4\pi = 2.386 \times 10^{-9}$ to obtain d in esu units of cm/statvolt.

In any system of units, $\chi^{(2)} = 2d$ by convention.



Hình 1.5.4| Minh họa (a) cấu trúc kim cương và (b) cấu trúc ZnS. Cả hai đều có mạng lập phương và do đó không thể thể hiện tính lưỡng chiết, nhưng cấu trúc cacbon là đối xứng xuyên tâm, ngược lại cấu trúc ZnS không có đối xứng không xuyên tâm.

Có lẽ khá ngạc nhiên vì một vật liệu có sự sắp xếp tuần hòan cao của những nguyên tử tiêu biểu là mạng lập phương và lại là đối xứng không xuyên tâm. Sự phân biệt này có thể được hiểu bằng cách xem xét hình 1.5.3, nó chỉ ra cả cấu trúc kim cương (nhóm điểm m3m) và cấu trúc ZnS (nhóm điểm $\bar{4}3m$). Người ta thấy rằng mạng tinh thể là tương tự nhau trong hai trường hợp, nhưng sự sắp xếp của những nguyên tử trong mạng cho phép Cacbon chứ không phải ZnS có tâm đối xứng đảo. Đi vào chi tiết, điểm đối xứng đảo đối với cấu trúc kim cương được đặt ở giữa bất cứ 2 nguyên tử cacbon lân cận gần nhất. Đối xứng này không xuất hiện trong cấu trúc ZnS bởi vì những nguyên tử lân cận gần nhất khác loại.

1.5.14 Phân biệt giữa lớp tinh thể có đối xứng không xuyên tâm và lớp tinh thể có cực

Như đã thấy ở trên, trong số 32 nhóm điểm tinh thể, chỉ có 21 là đối xứng không xuyên tâm và do đó có thể có độ cảm bậc 2 $\chi^{(2)}$ khác không. Một điều kiện giới hạn nữa là tinh thể như thế có một momen lưỡng cực cố định. Những tinh thể thuộc loại này được gọi là tinh thể có cực, hoặc tinh thể sắt điện. Tính chất này có hệ quả công nghệ quan trọng, bởi vì những tinh thể thuộc loại này có thể trưng bày hiệu ứng hỏa điện (sự thay đổi của momen phân cực cố định theo nhiệt độ, nó có thể được dùng để tạo ra các detectơ quang học)* hoặc hiệu ứng chiết quang, được mô tả chi tiết hơn trong chương 11. Lí thuyết nhóm (chẳng hạn, xem, Nye, 1985) chứng tỏ rằng lớp tinh thể có cực là

1	2	3	4	6
m	*mm*2	3*m*	4*mm*	6*mm*

Rõ ràng, tất cả những lọai tinh thể có cực là đối xứng không xuyên tâm, chứ không phải tất cả tinh thể đối xứng không xuyên tâm là có cực. Sự phân biệt này có thể dễ thấy khi xem xét ví dụ từ vật lí phân tử. Xem xét phân tử với đối xứng tứ diện chẳng hạn như CCl_4. Trong phân cử này 4 Ion Clo được đặt ở các đỉnh của một tứ diện đều, tâm là một ion cacbon. Rõ ràng, sự sắp xếp này không thể có momen lưỡng cực cố định, tuy nhiên cấu trúc này là đối xứng không xuyên tâm.

1.5.13 Ảnh hưởng của đối xứng không gian đến đáp ứng phi tuyến bậc 3

Đối xứng không gian của môi trường quang học phi tuyến cũng ảnh hưởng đến dạng của độ cảm quang học phi tuyến bậc 3. Dạng được phép của độ cảm đã được tính tóan bởi Butcher (1965)và đã được tóm tắt bởi Hellwarth (1977); sau đó một sự hiệu chỉnh nhỏ đã được thực hiện bởi Shang và Hsu (1987). Những kết quả này được đưa vào trong bảng 1.5.4. Chú ý rằng đối với rường hợp đặc biệt quan trọng của vật liệu quang học đẳng hướng, kết quả được đưa vào trong bảng 1.5.4 phù hợp với kết quả được rút ra trực tiếp từ sự thảo luận chiết suất phi tuyến trong phần 4.2.

Bảng 1.5.4 Dạng của tenxo độ cảm bậc ba đối với từng lớp tinh thể và đối với vật liệu đẳng hướng. Mỗi thành phần được kí hiệu bằng chỉ số Đề Các

Đẳng hướng

Có 21 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 3 yếu tố độc lập. Chúng là

$$yyzz = zzyy = zzxx = xxzz = xxyy = yyxx,$$
$$yzyz = zyzy = zxzx = xzxz = xyxy = yxyx,$$
$$yzzy = zyyz = zxxz = xzzx = xyyx = yxxy;$$

và

$$xxxx = yyyy = zzzz = xxyy + xyxy + xyyx.$$

Lập phương

Đối với 2 lớp 23 và $m3$, có 21 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 7 yếu tố độc lập. Chúng là:

$$xxxx = yyyy = zzzz,$$
$$yyzz = zzxx = xxyy,$$
$$zzyy = xxzz = yyxx,$$
$$yzyz = zxzx = xyxy,$$
$$zyzy = xzxz = yxyx,$$
$$yzzy = zxxz = xyyx,$$
$$zyyz = xzzx = yxxy.$$

Đối với 3 lớp 432, $\bar{4}3m$, và $m3m$, có 21 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 4 yếu tố độc lập. Chúng là

$$xxxx = yyyy = zzzz,$$
$$yyzz = zzyy = zzxx = xxzz = xxyy = yyxx,$$
$$yzyz = zyzy = zxzx = xzxz = xyxy = yxyx,$$
$$yzzy = zyyz = zxxz = xzzx = xyyx = yxxy.$$

Lục giác

Đối với 3 lớp 6, $\bar{6}$, và $6/m$, có 41 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 19 yếu tố độc lập. Chúng là:

$$\begin{matrix} zzzz, \\ xxxx = yyyy = xxyy + xyyx + xyxy, \end{matrix} \quad \begin{cases} xxyy = yyxx, \\ xyyx = yxxy, \\ xyxy = yxyx, \end{cases}$$

$$\begin{aligned} yyzz &= xxzz, & xyzz &= -yxzz, \\ zzyy &= zzxx, & zzxy &= -zzyx, \\ zyyz &= zxxz, & zxyz &= -zyxz, \\ yzzy &= xzzx, & xzzy &= -yzzx, \\ yzyz &= xzxz, & xzyz &= -yzxz, \\ zyzy &= zxzx, & zxzy &= -zyzx, \end{aligned}$$

$$xxxy = -yyyx = yyxy + yxyy + xyyy, \quad \begin{cases} yyxy = -xxyx, \\ yxyy = -xyxx, \\ xyyy = -yxxx. \end{cases}$$

(continued)

Bảng 1.5.4 (tiếp theo)

Đối với 4 lớp 622, $6mm$, $6/mmm$, và $\bar{6}m2$, có 21 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 10 yếu tố độc lập. Chúng là

$$zzzz,\quad xxxx = yyyy = xxyy + xyyx + xyxy, \quad \begin{cases} xxyy = yyxx, \\ xyyx = yxxy, \\ xyxy = yxyx, \end{cases}$$

$$\begin{aligned} yyzz &= xxzz, \\ zzyy &= zzxx, \\ zyyz &= zxxz, \\ yzzy &= xzzx, \\ yzyz &= xzxz, \\ zyzy &= zxzx. \end{aligned}$$

Tam giác

Đối với 2 lớp 3 và $\bar{3}$, có 73 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 27 yếu tố độc lập. Chúng là:

$$zzzz,\quad xxxx = yyyy = xxyy + xyyx + xyxy, \quad \begin{cases} xxyy = yyxx, \\ xyyx = yxxy, \\ xyxy = yxyx, \end{cases}$$

$$\begin{aligned} yyzz &= xxzz, & xyzz &= -yxzz, \\ zzyy &= zzxx, & zzxy &= -zzyx, \\ zyyz &= zxxz, & zxyz &= -zyxz, \\ yzzy &= xzzx, & xzzy &= -yzzx, \\ yzyz &= xzxz, & xzyz &= -yzxz, \\ zyzy &= zxzx, & zxzy &= -zyzx, \end{aligned}$$

$$xxxy = -yyyx = yyxy + yxyy + xyyy, \quad \begin{cases} yyxy = -xxyx, \\ yxyy = -xyxx, \\ xyyy = -yxxx. \end{cases}$$

$$\begin{aligned} yyyz &= -yxxz = -xyxz = -xxyz, \\ yyzy &= -yxzx = -xyzx = -xxzy, \\ yzyy &= -yzxx = -xzyx = -xzxy, \\ zyyy &= -zyxx = -zxyx = -zxxy, \\ xxxz &= -xyyz = -yxyz = -yyxz, \\ xxzx &= -xyzy = -yxzy = -yyzx, \\ xzxx &= -yzxy = -yzyx = -xzyy, \\ zxxx &= -zxyy = -zyxy = -zyyx. \end{aligned}$$

Đối với 3 lớp $3m$, $\bar{3}m$, và 32, có 37 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 14 yếu tố độc lập. Chúng là:

$$zzzz,\quad xxxx = yyyy = xxyy + xyyx + xyxy, \quad \begin{cases} xxyy = yyxx, \\ xyyx = yxxy, \\ xyxy = yxyx, \end{cases}$$

Bảng 1.5.4 (tiếp theo)

$$yyzz = xxzz, \quad xxxz = -xyyz = -yxyz = -yyxz,$$
$$zzyy = zzxx, \quad xxzx = -xyzy = -yxzy = -yyzx,$$
$$zyyz = zxxz, \quad xzxx = -xzyy = -yzxy = -yzyx,$$
$$yzzy = xzzx, \quad zxxx = -zxyy = -zyxy = -zyyx,$$
$$yzyz = xzxz,$$
$$zyzy = zxzx.$$

Tứ giác

Đối với 3 lớp $4, \bar{4},$ và $4/m$, có 41 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 21 yếu tố độc lập.

Chúng là:

$$xxxx = yyyy, \quad zzzz,$$
$$zzxx = zzyy, \quad xyzz = -yxzz, \quad xxyy = yyxx, \quad xxxy = -yyyx,$$
$$xxzz = zzyy, \quad zzxy = -zzyx, \quad xyxy = yxyx, \quad xxyx = -yyxy,$$
$$zxzx = zyzy, \quad xzyz = -yzxz, \quad xyyx = yxxy, \quad xyxx = -yxyy,$$
$$xzxz = yzyz, \quad zxzy = -zyzx, \quad yxxx = -xyyy,$$
$$zxxz = zyyz, \quad zxyz = -zyxz,$$
$$xzzx = yzzy, \quad xzzy = -yzzx.$$

Đối với 4 lớp 422, $4mm$, $4/mmm$, và $\bar{4}2m$, có 21 yếu tố khác 0, trong đó chỉ có 11 yếu tố độc lập. Chúng là:

$$xxxx = yyyy, \quad zzzz,$$
$$yyzz = xxzz, \quad yzzy = xzzx \quad xxyy = yyxx,$$
$$zzyy = zzxx, \quad yzyz = xzxz \quad xyxy = yxyx,$$
$$zyyz = zxxz, \quad zyzy = zxzx \quad xyyx = yxxy.$$

Đơn tà

Đối với 3 lớp $2, m,$ và $2/m$, có 41 yếu tố độc lập khác không, bao gồm:

3 yếu tố với tất cả các chỉ số bằng nhau
18 yếu tố với các chỉ số bằng nhau từng cặp
12 yếu tố với những chỉ số có 2 *y*, 1 *x*, và 1 *z*
4 yếu tố với những chỉ số có 3 *x* và 1 *z*
4 yếu tố với những chỉ số có 3 *z* và 1 *x*

Hệ hình thoi

Đối với 3 lớp , 222, $mm2$, và mmm, có 21 yếu tố độc lập khác 0, bao gồm :

3 yếu tố với các chỉ số bằng nhau
18 yếu tố với các chỉ số bằng nhau từng cặp

Tam tà

Đối với cả 2 lớp, 1 và $\bar{1}$, có 81 yếu tố độc lập khác 0

1.6.Mô tả miền thời gian của sự phi tuyến quang học

Trong những phần trước, chúng ta đã mô tả sự phi tuyến quang học theo đáp ứng của vật liệu quang với một hoặc nhiều trường đơn sắc đặt vào. Bằng cách ấy chúng ta nhận thấy rằng độ phân cực phi tuyến được tạo ra bao gồm một tổng rời rạc của những thành phần tần số điều hòa và tổng hoặc hiệu của những tần số có mặt trong trường đặt vào. Đặc biệt, chúng ta đã mô tả đáp ứng phi tuyến trong miền tần số bằng cách rút ra mối quan hệ giữa những thành phần tần số $P(\omega)$ của độ phân cực phi tuyến với những thành phần tần số của trường quang học đặt vào, $E(\omega')$.

Cũng có thể mô tả sự phi tuyến quang học trực tiếp trong miền thời gian bằng cách xem xét độ phân cực $\tilde{P}(t)$được sản sinh bởi trường đặt vào $\tilde{E}(t)$ nào đó. Hai phương pháp mô tả này hòan tòan tương đương, mặc dù sự mô tả trong miền thời gian thuận tiện hơn cho những lọai bài toán nào đó, Chẳng hạn những bàn toán có liên quan đến những trường đặt vào ở dạng xung ngắn, ngược lại sự mô tả trong miền tần số thuận tiện hơn khi mỗi trường đặt vào gần đơn sắc.

Đầu tiên chúng ta hãy xem xét trường hợp đặc biệt của vật liệu thể hiện đáp ứng hòan tòan phi tuyến. Chúng ta có thể mô tả độ phân cực được cảm ứng trong vật liệu như thế bởi

$$\tilde{P}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_0^\infty R^{(1)}(\tau)\tilde{E}(t-\tau)\,d\tau. \tag{1.6.1}$$

Ở đây $R^{(1)}(\tau)$ là hàm đáp ứng tuyến tính, nó mô tả đóng góp vào độ phân cực được tạo ra tại thời điểm *t* bởi một trường điện được đặt vào tại thời điểm sớm hơn $t-\tau$. Độ phân cực tổng cộng thu được bằng cách lấy tích phân những sự đóng góp này trên tất cả những thời điểm τ trước đó. Trong cách viết phương trình(1.6.1) như đã thấy, với cận dưới của tích phân là 0 chứ không phải $-\infty$, chúng ta đã giả sử rằng $R^{(1)}(\tau)$ tuân theo điều kiện nhân quả $R^{(1)}(\tau)=0$ khi $\tau<0$. Điều kiện này chứng tỏ rằng $\tilde{\boldsymbol{P}}^{(1)}(t)$ chỉ phụ thuộc vào quá khứ và không phụ thuộc vào giá trị tương lai của $\tilde{\boldsymbol{E}}(t)$

Phương trình (1.6.1) có thể được chuyển sang miền tần số bằng cách đưa vào phép biến đổi Fourier của những đại lượng khác nhau xuất hiện trong phương trình này. Chúng ta chấp nhận định nghĩa sau đây về phép biến đổi Fourier:

$$E(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(t) e^{i\omega t}\, dt \tag{1.6.2a}$$

$$\tilde{E}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) e^{-i\omega t}\, d\omega \tag{1.6.2b}$$

Với định nghĩa tương tự cho các đại lượng khác. Bằng cách đưa phương trình (1.6.2b) vào phương trình (1.6.1), chúng ta thu được:

$$\begin{aligned}\tilde{P}^{(1)}(t) &= \epsilon_0 \int_0^{\infty} d\tau \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} R^{(1)}(\tau) E(\omega) e^{-i\omega(t-\tau)} \\ &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \int_0^{\infty} d\tau\, R^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau} E(\omega) e^{-i\omega t} \end{aligned} \tag{1.6.3}$$

Hoặc

$$\tilde{P}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \chi^{(1)}(\omega;\omega) E(\omega) e^{-i\omega t}, \tag{1.6.4}$$

Ở đây, chúng ta đã đưa vào biểu thức tường minh của độ cảm tuyến tính

$$\chi^{(1)}(\omega;\omega) = \int_0^{\infty} d\tau\; R^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau}. \tag{1.6.5}$$

Phương trình (1.6.4) biễu diễn độ phân cực theo thời gian theo các thành phần tần số của trường đặt vào và độ cảm phụ thuộc tần số.

Bằng cách thay vế trái của phương trình này bằng $\int P^{(1)}(\omega) \exp(-i\omega t)\, d\omega/2\pi$ và chú ý đến sự bằng nhau phải được giữ lại đối với mỗi tần số ω, chúng ta tìm lại được mô tả đáp ứng tuyến tính trong miền tần số thông thường:

$$P^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega;\omega) E(\omega). \tag{1.6.6}$$

Đáp ứng phi tuyến có thể được mô tả theo cách tương tự. Độ phân cực bậc hai khi có cường độ trường đặt vào là

$$\tilde{P}^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int_0^\infty d\tau_1 \int_0^\infty d\tau_2 \, R^{(2)}(\tau_1, \tau_2) E(t-\tau_1) E(t-\tau_2), \qquad (1.6.7)$$

ở đây điều kiện nhân quả đòi hỏi rằng $R^{(2)}(\tau_1, \tau_2) = 0$ nếu cả τ_1 và τ_2 đều âm. Như trước, chúng ta viết $E(t-\tau_1)$ và $E(t-\tau_2)$ theo khai triển Fourier của chúng dùng phương trình (1.6.2b) vì thế biểu thức của độ phân cực bậc hai sẽ là

$$\begin{aligned}\tilde{P}^{(2)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_2}{2\pi} \int_0^\infty d\tau_1 \int_0^\infty d\tau_2 R^{(2)}(\tau_1, \tau_2) \\ &\quad \times E(\omega_1) e^{-i\omega_1(t-\tau_1)} E(\omega_2) e^{-i\omega_2(t-\tau_2)} \\ &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_2}{2\pi} \chi^{(2)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2) e^{-i\omega_\sigma t},\end{aligned} \qquad (1.6.8)$$

ở đây, chúng ta đã định nghĩa $\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2$ và đã đưa vào độ cảm bậc hai:

$$\chi^{(2)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2) = \int_0^\infty d\tau_1 \int_0^\infty d\tau_2 \, R^{(2)}(\tau_1, \tau_2) e^{i(\omega_1\tau_1 + \omega_2\tau_2)}. \qquad (1.6.9)$$

Thủ tục này dễ dàng được tổng quát hóa cho các độ cảm bậc cao hơn. Đặc biêt, chúng ta có thể biểu diễn độ cảm bậc ba là:

$$\begin{aligned}\tilde{P}^{(3)}(t) &= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_2}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega_3}{2\pi} \chi^{(3)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2, \omega_3) \\ &\quad \times E(\omega_1) E(\omega_2) E(\omega_3) e^{-i\omega_\sigma t},\end{aligned} \qquad (1.6.10)$$

Ở đây $\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ và

$$\chi^{(3)}(\omega_\sigma;\omega_1,\omega_2,\omega_3)=\int_0^\infty d\tau_1\int_0^\infty d\tau_2\int_0^\infty d\tau_3 \times R^{(3)}(\tau_1,\tau_2,\tau_3)\,e^{i(\omega_1\tau_1+\omega_2\tau_2+\omega_3\tau_3)}. \tag{1.6.11}$$

1.7. Hệ thức Kramer – Kronig trong quang tuyến tính và phi tuyến

Chúng ta đã quen thuộc với hệ thức Kramer-Kronig trong quang học tuyến tính. Nó là những điều kiện thiết lập mối quan hệ giữa những thành phần thực và ảo của các đại lượng phụ thuộc tần số chẳng hạn như độ cảm tuyến tính. Chúng rất hữu dụng bởi vì phần thực của độ cảm tại một tần số nào đó có thể được xác định nếu đã biết sự phụ thuộc tần số của phần ảo của độ cảm. Bởi vì việc đo phổ hấp thụ thường dễ hơn đo sự phụ thuộc tần số của chiết suất nên kết quả này rất quan trọng trong thực tế. Trong phần này, chúng ta sẽ tổng kết lại viêc rút ra hệ thức Kramer-Kronig đối với hệ tuyến tính, và sau đó chỉ ra hệ thức này có thể được rút ra như thế nào đối với những hệ phi tuyến.

1.7.1 Hệ thức Kramer-Kronig trong quang học tuyến tính:

Trong phần trước, chúng ta thấy rằng độ cảm tuyến tính có thể được viết là:

$$\chi^{(1)}(\omega) \equiv \chi^{(1)}(\omega;\omega) = \int_0^\infty R^{(1)}(\tau)e^{i\omega\tau}\,d\tau, \qquad (1.7.1)$$

Ở đây, cận dưới của tích phân được chọn bằng 0 để phản ánh sự kiện $R^{(1)}(\tau)$ tuân theo điều kiện nhân quả $R^{(1)}(\tau) = 0$ khi $\tau < 0$. Cũng cần chú ý rằng (từ phương trình (1.6.1) $R^{(1)}(\tau)$ cần phải là số thực bởi vì nó thiết lập mối quan hệ giữa hai đại lượng vốn đã thực $\tilde{P}(t)$ và $\tilde{E}(t)$. Do đó, từ phương trình (1.7.1) ngay lập tức, chúng ta suy ra

$$\chi^{(1)}(-\omega) = \chi^{(1)}(\omega)^*. \qquad (1.7.2)$$

Chúng ta hãy xem xét một số tích chất toán học còn lại của độ cảm tuyến tính. Để làm việc này, sẽ hữu dụng hơn nếu chúng ta sử dụng một giả thuyết toán học thuần túy xem ω là một đại lượng phức $\omega = Re\omega + iIm\omega$. Một tính chất toán học quan trọng của $\chi(\omega)$ là nó giải tích (nghĩa là đơn trị và có đạo hàm liên tục) ở nửa trên của mặt phẳng phức, $Im\omega \geq 0$. Để chứng minh rằng $\chi(\omega)$ giải tích ở nửa trên của mặt phẳng phức cần phải chứng tỏ rằng tích phân trong phương trình (1.7.1) hội tụ ở mọi nơi trong vùng đó. Đầu tiên, chúng ta chú ý rằng biểu thức dưới dấu tích phân trong phương trình (1.7.1) có dạng $R^{(1)}(\tau)\ \exp[i(Re\omega)\tau]\ \exp[-(Im\omega)\tau]$, và bởi vì $R^{(1)}(\tau)$ xác định ở mọi nơi , sự có mặt của số hạng $\exp[-(Im\omega)\tau]$ là thích hợp để đảm bảo sự hội tụ của tích phân khi $Im\omega > 0$. Đối với $Im\omega = 0$ (dọc theo trục thực) tích phân có thể được chứng minh là hội tụ, cả từ đối số toán học dựa trên việc $R^{(1)}(\tau)$ phải là bình phương khả tích hoặc từ phát biểu vật lí rằng đối với ω thực, $\chi(\omega)$ là đại lượng vật lý có thể đo được và vì thế phải xác định.

Để thiết lập hệ thức Kramer-Kronig, tiếp theo, chúng ta xét tích phân:

$$\text{Int} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega' - \omega}. \tag{1.7.3}$$

Chúng ta thừa nhận quy ước rằng trong biểu thức chẳng hạn như (1.7.3) chúng ta lấy giá trị chính của Cosi của tich phân, nghĩa là

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega' - \omega} \equiv \lim_{\delta \to 0}\left[\int_{-\infty}^{\omega-\delta} \frac{\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega' - \omega} + \int_{\omega+\delta}^{\infty} \frac{\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega' - \omega}\right]. \tag{1.7.4}$$

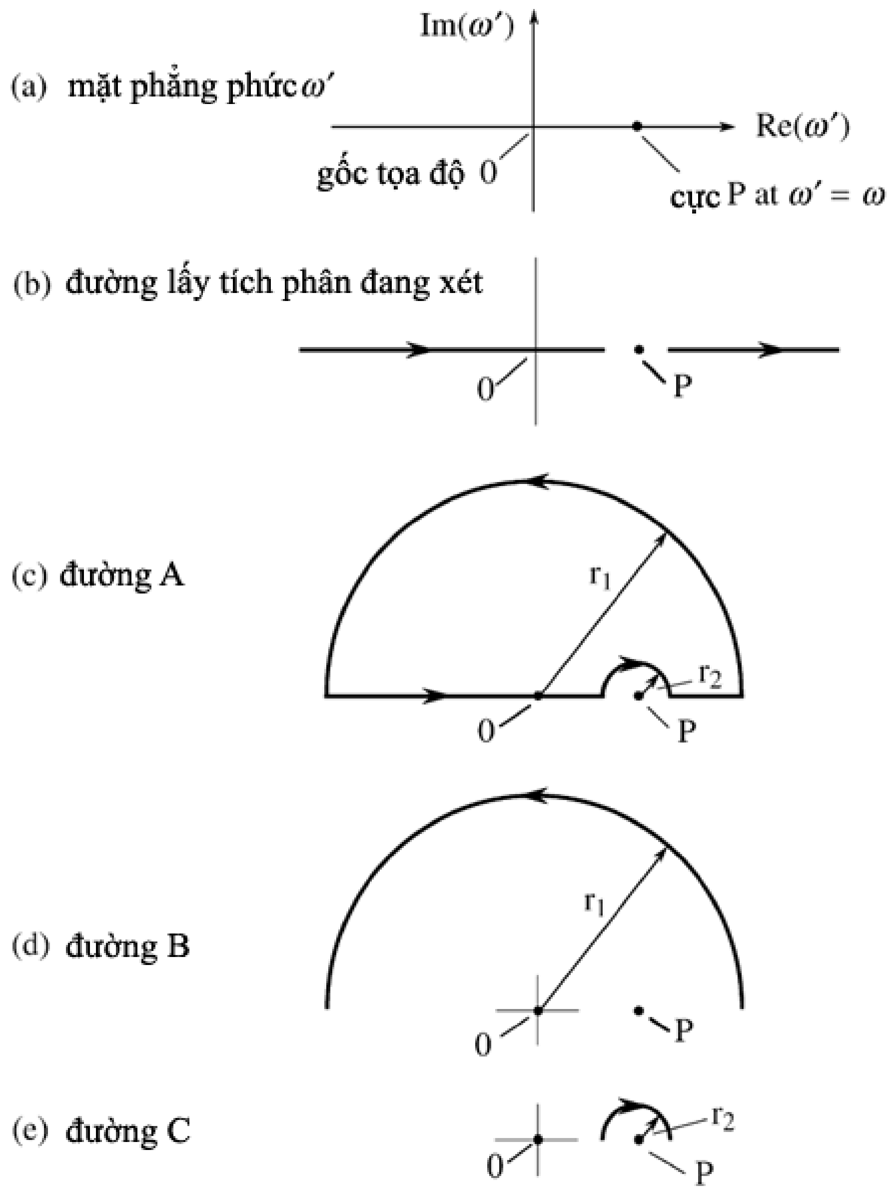
Chúng ta tính biểu thức (1.7.3) bằng kĩ thuật lấy tích phân theo chu tuyến, chú ý rằng tích phân đang xét được cho bởi $Int = Int(A) - Int(B) - Int(C)$, trong đó *IntA*, *IntB*, *IntC* là những tích phân đường của $\chi^{(1)}\omega'/(\omega' - \omega)$ trên đường được chỉ trong hình 1.7.1. Bởi vì $\chi^{(1)}\omega'$ giải tích ở nửa trên mặt phẳng, chỉ điểm kì dị của biểu thức lấy tích phân $\chi^{(1)}\omega'/(\omega' - \omega)$ ở nửa mặt phẳng trên là đơn cực dọc theo trục thực tại $\omega' = \omega$. Vì thế, chúng ta thấy rằng *Int(A)=0* do định lí Cô si bởi vì đường cong kín lấy tích phân không chứa cực nào. Hơn nữa, *Int(B)=0* bởi vì đường lấy tích phân tăng theo $|\omega'|$, nhưng ngược lại khi ω' lớn biểu thức lấy tích phân tỉ lệ với $\chi(\omega')/|\omega'|$ và vì thế tích sẽ có khuynh hướng tiến tới 0 với điều kiện là $\chi(\omega')$ tiến tới 0 khi ω' đủ lớn. Cuối cùng, theo lí thuyết thặng dư $Int(C) = -\pi i\chi(\omega)$. Bằng cách đưa những giá trị này vào phương trình (1.7.3), chúng ta thu được kết quả:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{-i}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega' - \omega}. \tag{1.7.5}$$

Bằng cách tách $\chi^{(1)}(\omega)$ thành phần thực và phần ảo riêng, chúng ta sẽ thu được dạng của các hệ thức Kramers-Kronig:

$$\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega)=\frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega'-\omega}, \tag{1.7.6a}$$

$$\operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega)=-\frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega'-\omega}. \tag{1.7.6b}$$



Hình 1.7.1| Giản đồ được dùng để tính tích phân theo chu tuyến của phương trình (1.7.3). (a)biễu diễn mặt phẳng phức ω', (b) biễu diễn đường lấy tích phân đang xét và (c), (d), và (e) biễu diễn đường mà tích phân được tính trên đó dùng kĩ thuật lấy tích phân theo chu tuyến. Trong khi tính tích phân, giới hạn $r_1 \to \infty$ và $r_2 \to 0$ được chọn.

Những tích phân này cho chúng ta biết phần thực của $\chi^{(1)}$ có thể được suy ra khi đã biết sự phụ thuộc tần số của phần ảo như thế nào và ngược lại. Bởi vì phổ hấp thụ thường dễ đo hơn sự phụ thuộc tần số của chiết suất, nên sẽ rất hữu dụng khi dùng phương trình (1.7.6a) như là một phương tiện để tiên đoán sự phụ thuộc tần số của phần thực của $\chi^{(1)}$.

Hệ thức Kramer-Kronig có thể được viết lại để chỉ bao hàm việc lấy tích phân trên các tần số dương (có ý nghĩa vật lý). Từ phương trình (1.7.2), chúng ta thấy rằng

$$\operatorname{Re}\chi^{(1)}(-\omega) = \operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega), \qquad \operatorname{Im}\chi^{(1)}(-\omega) = -\operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega). \qquad (1.7.7)$$

Do đó, chúng ta có thể viết lại phương trình (1.7.6b) như sau:

$$\begin{aligned}\operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega) &= -\frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{0}\frac{\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega'-\omega} - \frac{1}{\pi}\int_{0}^{\infty}\frac{\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega'-\omega} \\ &= \frac{1}{\pi}\int_{0}^{\infty}\frac{\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega'+\omega} - \frac{1}{\pi}\int_{0}^{\infty}\frac{\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega')\,d\omega'}{\omega'-\omega}\end{aligned} \qquad (1.7.8)$$

Và do đó

$$\operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega) = \frac{-2\omega}{\pi}\int_{0}^{\infty}\frac{\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega')}{\omega'^2-\omega^2}\,d\omega'. \qquad (1.7.9a)$$

Tương tự, chúng ta tìm được

$$\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega) = \frac{2}{\pi}\int_{0}^{\infty}\frac{\omega'\operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega')}{\omega'^2-\omega^2}\,d\omega'. \qquad (1.7.9b)$$

1.7.2 Hệ thức Kramer-Kronig trong quang phi tuyến

Hệ thức tương tự với hệ thức Kramer-Kronig thông thường cho đáp ứng tuyến tính có thể được suy ra đối với một số tương tác quang phi tuyến (chứ không phải tất cả). Đầu tiên, hãy xem xét độ cảm phi tuyến có dạng $\chi^{(3)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ với $\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ và với ω_1, ω_2, và ω_3 tất cả đều dương và phân biệt. Một độ cảm như thế tuân theo hệ thức Kramer-Kronig ở một trong số 3 tần số đầu vào, chẳng hạn:

$$\chi^{(3)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{1}{i\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\chi^{(3)}(\omega_\sigma'; \omega_1, \omega_2', \omega_3)}{\omega_2'-\omega_2}\,d\omega_2', \qquad (1.7.10)$$

ở đây $\omega'_\sigma = \omega_1 + \omega'_2 + \omega_3$. Khi tính tích phân chỉ bao gồm ω'_1 và ω'_3, chúng ta cũng được kết quả tương tự.Việc chứng minh kết quả này được tiến hành một cách hoàn toàn tương tự với hệ thức Kramer-Kronig tuyến tính. Đặc biệt, từ phương trình (1.6.11) chúng ta chú ý rằng $\chi^{(3)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ là biến đổi Fourier của hàm đáp ứng nhân quả, và vì thế $\chi^{(3)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ được xem như hàm của 3 biến độc lập của nó ω_1, ω_2 và ω_3, là giải tích trong vùng $Im\omega_1 \geq 0$, $Im\omega_2 \geq 0$, và $Im\omega_3 \geq 0$. Sau đó, chúng ta có thể thực hiện lấy tích phân được chỉ ở phía vế phải của phương trình (1.7.10) như là một tích phân dọc theo đường cong kín ở phần trên của mặt phẳng phức ω_2, và thu được kết quả như đã chỉ ra. Quả thực, không có gì là ngạc nhiên khi hệ thức giống Kramer-Kronig sẽ tồn tại trong trường hợp đang xét; biểu thức $\chi^{(3)}(\omega_\sigma; \omega_1, \omega_2, \omega_3)E(\omega_1)E(\omega_2)E(\omega_3)$ là tuyến tính trong trường $E(\omega_2)$ và hệ vật lí là nhân quả, và vì thế là nguyên nhân dẫn đến hệ thức Kramer-Kronig tuyến tính thông thường thích hợp cho trường hợp đang xét.

Chú ý rằng trong phương trình (1.7.10) tất cả chứ không phải một trong những tần số đầu vào được giữ cố định. Hệ thức Kramer-Kronig cũng có thể được tính trong những trường hợp tổng quát hơn. Nó có thể được biểu diễn bằng đối số hơi phức tạp (xem Phần 6.2 của Hutching và các cộng sự., 1992)

$$\chi^{(n)}(\omega_\sigma; \omega_1 + p_1\omega, \omega_2 + p_2\omega, \ldots, \omega_n + p_n\omega) = \frac{1}{i\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi^{(n)}(\omega'_\sigma; \omega_1 + p_1\omega', \omega_2 + p_2\omega', \ldots, \omega_n + p_n\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \tag{1.7.11}$$

ở đây $p_i \geq 0$ đối với tất cả i và ở đâu mà ít nhất một p_i khác 0. Trong số nhiều trường hợp đặc biệt bao hàm trong phương trình (1.7.11) có những trường hợp liên quan đến độ cảm của sự tạo sóng hài bậc hai:

$$\chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) = \frac{1}{i\pi}\int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi^{(2)}(2\omega'; \omega', \omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \tag{1.7.12}$$

Và đối với sự tạo sóng hài bậc 3

$$\chi^{(3)}(3\omega;\omega,\omega,\omega)=\frac{1}{i\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\chi^{(3)}(3\omega';\omega',\omega',\omega')}{\omega'-\omega}\,d\omega'. \qquad (1.7.13)$$

Hệ thức Kramer-Kronig cũng có thể được tính toán đối với sự thay đổi trong chiết suất được cảm ứng bởi một chùm phụ, nó được mô tả bởi một độ cảm loại $\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega_1,-\omega_1)$. Đặc biệt, người ta có thể chứng tỏ rằng (Hutchings và các cộng sự)

$$\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega_1,-\omega_1)=\frac{1}{i\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{\chi^{(3)}(\omega';\omega',\omega_1,-\omega_1)\,d\omega'}{\omega'-\omega}. \qquad (1.7.14)$$

Có lẽ, quá trình quan trọng nhất mà đối với nó không thể hình thành hệ thức Kramer-Kronig là những quá trình thay đổi tự cảm ứng trong chiết suất, nghĩa là những quá trình được mô tả bằng độ cảm phi tuyến $\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega,-\omega)$. Chú ý rằng độ cảm này không có dạng giống như trong phương trình (1.7.10) và (1.7.11), bởi vì 2 tần số đầu tiên đặt vào bằng nhau và bởi vì tần số thứ 3 âm. Hơn nữa, người ta có thể chứng tỏ bằng cách tính toán tường minh (xem bài tập cuối chương này) rằng đối với những hệ thống mô hình nào đó, phần thực và ảo của $\chi^{(3)}$không liên hệ với nhau theo kiểu thích hợp để thõa mãn hệ thức Kramer-Kronig.

Tóm lại, chúng ta thấy rằng hệ thức Kramer-Kronig luôn luôn có giá trị trong quang học tuyến tính nhưng chỉ có giá trị đối với một số chứ không phải tất cả các quá trình quang phi tuyến.