Estimación de $\chi^{(2)}$

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

Miller: $\dfrac{m a}{N^2 e^3} = $ cte.

N es más o menos cte ($\approx 10^{22}$ 1/cc)
m ✓ e ✓ a no se conoce

Asum. contribu. lineal y cuadrática son del mismo Orden
$\Rightarrow \quad m\omega_0^2 d = m a d^2$, donde $d \sim$ tamaño atómico
$\Rightarrow \boxed{a = \omega_0^2/d}$

Aprox. $D(\omega) \simeq \omega_0^2$, $N \simeq 1/d^3$, $a = \omega_0^2/d$

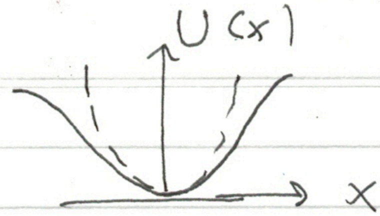
$$\Rightarrow \chi^{(2)} \simeq \frac{e^3}{m^2\omega_0^4 d^4}$$

$$\left.\begin{array}{l} \omega_0 \simeq 10^{16} \text{ rad/sec.} \\ d \simeq 3\,\text{Å} \\ e = 4.8\times10^{-10} \text{ esu} \\ m = 9.1\times10^{-28} \text{ gr.} \end{array}\right\} \Rightarrow \chi^{(2)} \simeq 1.7\times10^{-8} \text{ (esu)}$$

$\downarrow$

en acuerdo con valores experimentales

(ii) Medio centrosimétrico



$$F = -m\omega_0^2 x + mb|x|^3$$

3D, isotrópico: $\vec{F} = -m\omega_0^2 \vec{r} + mb(\vec{r}\cdot\vec{r})\vec{r}$ (1)

$$\Rightarrow \ddot{\vec{r}} + 2\gamma\dot{\vec{r}} + \omega_0^2\vec{r} - b(\vec{r}\cdot\vec{r})\vec{r} = -(e/m)\vec{E} \quad (2)$$

Tomamos: $\vec{E}(t) = \vec{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \vec{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \vec{E}_3 e^{-i\omega_3 t} + c.c.$ (3)

$$\vec{E}(t) = \sum_n \vec{E}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} + c.c.$$

y ponemos $\lambda\vec{E}(t)$ en (2).

Buscamos $\vec{r}(t) = \lambda\vec{r}^{(1)}(t) + \lambda^2\vec{r}^{(2)}(t) + \lambda^3\vec{r}^{(3)}(t) + \cdots$ (4)

$$\left.\begin{aligned}
\Rightarrow\quad & \ddot{\vec{r}}^{(1)} + 2\gamma\dot{\vec{r}}^{(1)} + \omega_0^2\vec{r}^{(1)} = -(e/m)\vec{E}(t) \\
& \ddot{\vec{r}}^{(2)} + 2\gamma\dot{\vec{r}}^{(2)} + \omega_0^2\vec{r}^{(2)} = 0 \\
& \ddot{\vec{r}}^{(3)} + 2\gamma\dot{\vec{r}}^{(3)} + \omega_0^2\vec{r}^{(3)} - b(\vec{r}^{(1)}\cdot\vec{r}^{(1)})\vec{r}^{(1)} = 0
\end{aligned}\right\} \quad (5)$$

Soluc. estacionaria: $\vec{r}^{(1)}(t) = \sum_n \vec{r}^{(1)}(\omega_n) e^{-i\omega_n t}$

OJO: suma sobre todos los ω_n: positive and negative

$$\Rightarrow \boxed{\vec{r}^{(1)}(\omega_n) = \frac{-e\vec{E}(\omega_n)/m}{D(\omega_n)}} \quad ; \quad D(\omega_n) \equiv \omega_0^2 - \omega_n^2 - 2i\gamma\omega_n \quad (6)$$

$$\vec{P}^{(1)}(\omega_n) = -Ne\,\vec{r}^{(1)}(\omega_n)$$

o sea, $\vec{P}^{(1)}(\omega_n) = \dfrac{Ne^2/m}{D(\omega_n)}\vec{E}(\omega_n)$ (6)

$$\Rightarrow P_i^{(1)}(\omega_n) = \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega_n)\, E_j(\omega_n)$$

donde $\chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) = \chi^{(1)}(\omega_n)\,\delta_{ij}$, con $\boxed{\chi^{(1)}(\omega_n) = \dfrac{Ne^2/m}{D(\omega_n)}}$ (7)

2do orden en λ: (5) $\Rightarrow \vec{r}^{(2)} = 0$. (8)

3er orden en λ:

$$\ddot{\vec{r}}^{(3)} + 2\gamma\dot{\vec{r}}^{(3)} + \omega_0^2\vec{r}^{(3)} = \overbrace{\underbrace{b(\vec{r}^{(1)}\cdot\vec{r}^{(1)})\vec{r}^{(1)}}}^{\text{forzamiento}}$$

$$= -\sum_{mnp} \frac{be^3[\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n)]\vec{E}(\omega_p)}{m^3 D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)} \times e^{-i(\omega_m+\omega_n+\omega_p)t} \quad (9)$$

sea $\omega_q \equiv \omega_m + \omega_n + \omega_p$,

buscamos $\vec{r}^{(3)}(t) = \sum_q \vec{r}^{(3)}(\omega_q)e^{-i\omega_q t}$ (10)

$$\Rightarrow (-\omega_q^2 - i2\gamma\omega_q + \omega_0^2)\vec{r}^{(3)}(\omega_q) = -\sum_{(mnp)} \frac{be^3[\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n)]\vec{E}(\omega_p)}{m^3 D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)}$$

$\to$ debe cumplirse que $\omega_q = \omega_m + \omega_n + \omega_p$

$$\Rightarrow \vec{r}^{(3)}(\omega_q) = -\sum_{(m,n,p)} \frac{be^3[\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n)]\vec{E}(\omega_p)}{m^3 D(\omega_q)D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)} \quad (11)$$

y de $\vec{P}^{(3)}(\omega_q) = -Ne\vec{r}^{(3)}(\omega)$ (12)

$$\Rightarrow \vec{P}^{(3)}(\omega_q) = \frac{Nbe^4}{m^3} \sum_{(mnp)} \frac{[\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n)]\vec{E}(\omega_p)}{D(\omega_q)D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)} \quad (13)$$

y como

$$P_i^{(3)}(\omega_q) = \sum_{jkl}\sum_{(mnp)} \chi_{ijkl}(\omega_q,\omega_m,\omega_n,\omega_p) E_j(\omega_m)E_k(\omega_n)E_l(\omega_p) \quad (14)$$

comparando (13) y (14) podríamos pensar que

$$\chi_{ijkl}^{(3)} = \frac{Nbe^4}{m^3}\cdot\frac{\delta_{jk}\delta_{il}}{D(\omega_q)D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)} \quad (15)$$

No posee todas las simetrías

hay $3! = 6$ permutaciones de los órdenes posibles en los cuales poner $E_j(\omega_m)$, $E_k(\omega_n)$ y $E_l(\omega_p)$

se def. $\chi^{(3)}$ como (1/6) de la suma de las 6 expresiones posibles (similares a (15)).

Resultado: $$\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q,\omega_m,\omega_n,\omega_p) = \frac{Nbe^4[\delta_{ij}\delta_{kl}+\delta_{ik}\delta_{jl}+\delta_{il}\delta_{jk}]}{3m^3D(\omega_q)D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)} \quad (16)$$

$$= \frac{bm}{3N^3e^4}[\chi^{(1)}(\omega_q)\chi^{(1)}(\omega_m)\chi^{(1)}(\omega_n)\chi^{(1)}(\omega_q)][\delta_{ij}\delta_{kl}+\delta_{ik}\delta_{jl}+\delta_{il}\delta_{jk}] \quad (17)$$

Estimación de b: $m\omega_0^2 d = mbd^3 \Rightarrow \boxed{b = \omega_0^2/d^2}$

$$\Rightarrow \chi^{(3)} \simeq \frac{Nbe^4}{m^3\omega_0^8} = \frac{e^4}{m^3\omega_0^6 d^5} \quad ; \quad (\omega \ll \omega_0)$$

usando $d = 3$ Å ; $\omega_0 = 7\times10^{15}$ (rad/s) $\Rightarrow \boxed{\chi^{(3)} = 3\times10^{-14} \text{ (esu)}}$

Ec. de onda no-lineal en ausencia de cargas y corrientes

$$\left.\begin{array}{ll}\vec{\nabla}\cdot\vec{D}=0 & \vec{\nabla}\cdot\vec{B}=0, \\ \vec{\nabla}\times\vec{E}+\frac{1}{c}\frac{\partial\vec{B}}{\partial t}=0 \; ; & \vec{\nabla}\times\vec{H}=\frac{1}{c}\frac{\partial\vec{D}}{\partial t}\end{array}\right\} \quad (1)$$

assumiendo un medio no-magnetico, $\vec{B}=\vec{H}$

$$\vec{D}=\vec{E}+4\pi\vec{P}=\vec{E}+4\pi\chi\vec{E}\equiv\varepsilon\vec{E} \qquad (2)$$

$$(1),(2)\Rightarrow \vec{\nabla}\times\vec{\nabla}\times\vec{E}+\frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{E}=-\frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2\vec{P}}{\partial t^2}$$

ahora, $\vec{\nabla}\times\vec{\nabla}\times\vec{E}=\vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{E})-\nabla^2\vec{E}$

Pero, de $0=\vec{\nabla}\cdot\vec{D}=\vec{\nabla}\cdot(\varepsilon\vec{E})=\varepsilon\vec{\nabla}\cdot\vec{E}+\vec{E}\cdot\vec{\nabla}\varepsilon$

$$\Rightarrow \vec{\nabla}\cdot\vec{E}=-\frac{1}{\varepsilon}\vec{E}\cdot\vec{\nabla}\varepsilon=-\vec{E}\cdot\vec{\nabla}[\ln\varepsilon]$$ (=0 for transverse waves)

$\Rightarrow$ si $\ln(\varepsilon)$ varía lentam. en el espacio, $\vec{\nabla}\cdot\vec{E}\simeq 0$

$$\Rightarrow \vec{\nabla}\times\vec{\nabla}\times\vec{E}\simeq-\nabla^2\vec{E}$$

$$\Rightarrow \boxed{\nabla^2\vec{E}-\frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{E}=\frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2\vec{P}}{\partial t^2}} \quad ✓ \qquad (3)$$

$$\vec{P}=\vec{P}_L+\vec{P}_{NL}\Rightarrow \frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2\vec{P}}{\partial t^2}=\frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{P}_L+\frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2\vec{P}_{NL}}{\partial t^2}$$

$$\Rightarrow \nabla^2\vec{E}-\frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\underbrace{(\vec{E}+4\pi\vec{P}_L)}_{\substack{\varepsilon_L\vec{E}\\ \| \\ n^2}}=+\frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2\vec{P}^{NL}}{\partial t^2}$$

$$\boxed{\nabla^2\vec{E} - \frac{n^2}{c^2}\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = \underbrace{+\frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2 P_{NL}(E)}{\partial t}}_{}} \qquad (4)$$

fuente efectiva radiando en medio lineal, con índice n.

Resolviendo la Ec. de onda no-lineal

(4) Puede escribirse como: $\mathbb{L}[\vec{E}] = S(\vec{E})$

se genera iterativa/. una secuencia $\{E_0, E_1, \ldots E_n\}$

se parte de E_0, el cual genera una fuente $S(E_0)$

→ se resuelve $\mathbb{L}(\vec{E}) = S(E_0)$ y se obtiene E_1.

→ se usa E_1 para generar $S(E_1)$ y se resuelve

$\mathbb{L}(E) = S(\vec{E}_1) \longrightarrow$ det. $\vec{E}_2$, etc.

campo inicial $\vec{E}_0$ contiene 1 o varias ondas de diferente frecuencia. Como $S(E)$ es nolineal → se generan nuevas frecuencias. [Generación de armónicos]

Efecto Electro-óptico:

Ahora el $\vec{E}$ incidente es: $\vec{E}(t) = E(0) + \left(E(\omega)e^{i\omega t} + c.c.\right)$ (1)

$$P_{NL} = \chi^{(2)}\left\{E^2(0) + E^2(\omega)e^{2i\omega t} + E^{*2}(\omega)e^{-2i\omega t} + 2E(0)E(\omega)e^{i\omega t} + \right.$$
$$\left. + 2E(0)E^*(\omega)e^{-i\omega t} + 2|E(\omega)|^2\right\} \quad (2)$$

$$\Rightarrow \quad P_{NL}(0) = \chi^{(2)}\left(E^2(0) + 2|E(\omega)|^2\right) \sim \chi^{(2)}E^2(0) \quad (3)$$

$$P_{NL}(\omega) = 2\chi^{(2)}E(0)E(\omega) \quad (4)$$

$P_{NL}(2\omega) = \chi^{(2)}E^2(\omega) \longrightarrow$ SHG (5)

contribución a la susceptibilidad de 1er orden (lineal)

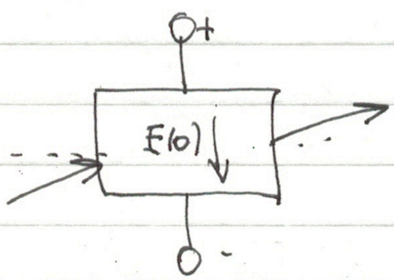
o sea, $P(\omega) = P^{(1)}(\omega) + P^{(2)}(\omega) = \chi^{(1)}E(\omega) + 2\chi^{(2)}E(0)E(\omega)$

$\therefore P(\omega) = \left(\chi^{(1)} + 2\chi^{(2)}E(0)\right)E(\omega) \equiv \chi E(\omega)$

y de $n^2 = 1 + 4\pi\chi \Rightarrow 2n\Delta n = 4\pi\Delta\chi$

$$\Rightarrow \boxed{\Delta n = \frac{2\pi\left(2\chi^{(2)}E(0)\right)}{n} = \left(\frac{4\pi\chi^{(2)}}{n}\right)E(0)}$$

Efecto electro-óptico.



refracción es controlada por voltage aplicado.

Óptica no-lineal de 2do orden

$$P_{NL} = \chi^{(2)} E^2$$

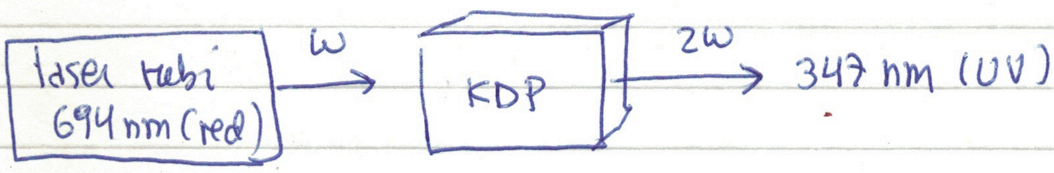
Sea el $\vec{E}$ incidente, $\vec{E}(t) = E(\omega)e^{i\omega t} + c.c.$

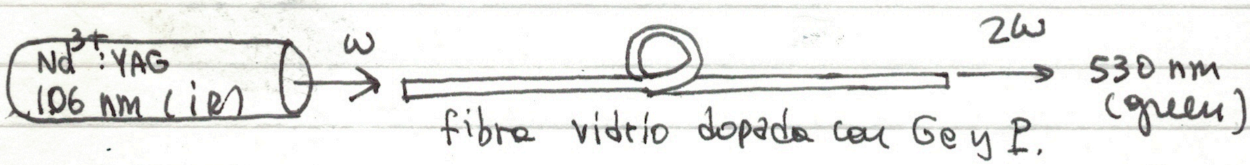
$$\Rightarrow P_{NL} = \chi^{(2)}\left(E(\omega)e^{i\omega t} + E^*(\omega)e^{-i\omega t}\right)^2$$

$$= \chi^{(2)}\left[E^2(\omega)e^{2i\omega t} + E^{*2}(\omega)e^{-2i\omega t} + 2|E(\omega)|^2\right]$$

$$= \underbrace{2\chi^{(2)}|E(\omega)|^2}_{P_{NL}(0)} + \left(\underbrace{\chi^{(2)}E^2(\omega)}_{P_{NL}(2\omega)}e^{2i\omega t} + c.c.\right)$$

(i) generación de 2do armónico: $P_{NL}(2\omega) = \chi^{(2)}E^2(\omega)$.





(ii) $P_{NL}(0) = 2\chi^{(2)}|E(\omega)|^2 \to$ da origen a un $\vec{E}$ estático

$\to$ dif. de voltaje a través de la muestra