

Nichtlineare Optik

Prof. Dr. Roland Sauerbrey

Vorlesung im SS 2007 an der TU Dresden

Literatur

1. R.W. Boyd: Nonlinear Optics; Academic Press, 2nd edition, 2003
2. Y.R. Shen: Principles of Nonlinear Optics; Wiley, 1984
3. P.N. Butcher, D. Cotter: The Elements of Nonlinear Optics; Wiley 1984
4. D.L. Mills: Nonlinear Optics; Springer 1999
5. M. Schubert, B. Wilhelmi: Nonlinear Optics and Quantum Electronics; Wiley 1986
6. P.W. Milonni, J.H. Eberly: Lasers; Wiley, 1988
7. B.E.A. Saleh, M.C. Teich: Fundamentals of Photonics; Wiley, 1991
8. P. Gibbon: Short Pulse Laser Interactions with Matter; Imperial College Press, 2005

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung und Zusammenfassung der linearen Optik	1
1.1	Suszeptibilität	2
1.2	Lineare Wellengleichung und Brechzahl	3
1.3	Ein Beispiel: Selbstphasenmodulation durch Feldionisation	5
1.4	Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex - Dispersion . . .	8
2	Das nichtlinear gebundene Elektron	14
2.1	Nicht zentrosymmetrische Medien	15
2.2	Zentrosymmetrische Medien	18
3	Nichtlineare Polarisierung und Wellengleichung	20
4	Frequenzverdopplung	23
4.1	Lösung der Wellengleichung	23
4.2	Intensitätsbetrachtungen	25
4.3	Wirkungsgrad der zweite-Harmonische-Erzeugung und nichtlinearoptischer Koeffizient	28
4.4	Phasenanpassung	30
5	Drei-Wellen-Mischung	40

5.1	MANLEY-ROWE-Relation	41
6	Nichtlineare Suszeptibilitäten, Nichtlineare Materialien und praktische Aspekte	46
6.1	MILLER'sche Regel	46
6.2	Symmetrien	47
6.3	SHG mit GAUSS'schen Strahlen	53
6.4	Messung ultrakurzer Pulse - Autokorrelation	55
6.5	Quasi-Phasenanpassung	59
7	Parametrische Verstärkung	62
7.1	Grundlagen	62
7.2	Drei Beispiele	64
8	Prozesse dritter Ordnung	67
8.1	Dritte Harmonische und 4-Wellen-Mischung	67
8.2	Phasenanpassung	69
8.3	Zweiphotonenresonanzen	71
8.4	Vier-Wellen-Mischung	73
8.5	Selbstfokussierung	75
8.6	Selbstphasenmodulation	79
9	Multiphotonenprozesse und Feldionisation	82
9.1	Zweiphotonenabsorption	82
9.2	Multiphotonenabsorption und Multiphotonenionisation . .	84

Bemerkungen:

- Alle Formeln in dieser Vorlesung sind komplett im mKsA-System gehalten.
- Die Behandlung der nichtlinearen Optik verlangt oft relativ langwierige Störungsrechnungen. In dieser Vorlesung wird soweit möglich das jeweils einfachste Modell benutzt, um die wesentlichen Züge des betrachteten Effekts darzustellen.
- Vektoren werden mit einer Unterstreichung \underline{r} , Tensoren mit zwei Unterstreichungen $\underline{\underline{\chi}}$ gekennzeichnet.
- GeT_EXt 2007 von Klemens Reuther
- $\lim_{\omega \rightarrow 3} 8 = \infty$

Kapitel 1

Einführung und Zusammenfassung der linearen Optik

Ziel der Vorlesung:

- Verständnis der Grundlagen der Nichtlinearen Optik
- Praktische Kenntnisse zu: Frequenzverdopplung, Parametrische Verstärkung, Vierwellenmischung
- Einblick in neueste Entwicklungen: Hohe Harmonische, Attosekundenpulse, relativistische Optik

Lineare Optik = Wechselwirkung von *Strahlung* mit *Materie*

- *Strahlung*: Elektromagnetisches Feld, beschrieben durch die MAXWELL-Gleichungen → *Klassisch*¹
- *Materie*: Es kommt meist nicht auf die detaillierten Eigenschaften an, daher ist eine quantenmechanische Betrachtung meist nicht nötig.

¹Eine Quantisierung des Strahlungsfeldes ist aufgrund der hohen auftretenden Photonzahlen nicht nötig, es genügt eine klassische Beschreibung.

1.1 Suszeptibilität

In der linearen Optik wird die Wechselwirkung von Strahlung und Materie durch den *dielektrischen Suszeptibilitätstensor* $\underline{\underline{\chi}}$ charakterisiert.

$$\underline{P} = \epsilon_0 \cdot \underline{\underline{\chi}} \cdot \underline{E} \quad (1.1)$$

Dabei ist \underline{P} die Polarisation im Medium, ϵ_0 die absolute Dielektrizitätskonstante des Vakuums ($\epsilon_0 = 8.854187817 \cdot 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$) und \underline{E} das angelegte elektrische Feld. Diese Gleichung beschreibt die lineare Optik komplett: Ein von außen angelegtes \underline{E} - und \underline{B} -Feld² erzeugen im Festkörper eine Polarisation \underline{P} .

Bei gegebener Frequenz ist $\chi_{\alpha\beta}$ konstant. Meist gilt außerdem $\chi_{\alpha\beta} = \chi_{\beta\alpha}$. Dann existiert eine Hauptachsentransformation und Gleichung 1.1 kann geschrieben werden als:

$$\underline{P} = \epsilon_0 \cdot (\chi_{xx} E_x; \chi_{yy} E_y; \chi_{zz} E_z) \quad (1.2)$$

In isotropen Medien gilt außerdem $\chi_{xx} = \chi_{yy} = \chi_{zz} =: \chi$ und Gleichung 1.2 wird zu:

$$\underline{P} = \epsilon_0 \cdot \chi \cdot \underline{E} \quad (1.3)$$

Für eine Komponente gilt also:

$$P_\alpha(\underline{r}, t) = \epsilon_0 \cdot \chi \dot{E}_\alpha(\underline{r}, t) \quad (1.4)$$

²Im Normalfall kleiner Felder kann das Magnetfeld vernachlässigt werden, denn es ist:

$$\underline{E} = -e \cdot (\underline{E} + \underline{v} \times \underline{B})$$

Aus den Maxwellgleichungen gilt aber:

$$|\underline{B}| = \frac{|\underline{E}|}{c}$$

Daraus folgt aber:

$$|\underline{E}| = -e \cdot |\underline{E}| \cdot \left(1 + \frac{v}{c}\right)$$

Der $\frac{v}{c}$ -Term beschreibt den durch das Magnetfeld hervorgerufene Anteil an der Kraft. Dieser muss erst bei relativistischen Geschwindigkeiten der Elektronen im Festkörper berücksichtigt werden. Solche Geschwindigkeiten treten erst ab Intensitäten von $I \gtrsim 10^{18} \text{ W/m}^2$ auf.

Das bedeutet allerdings, dass die Wechselwirkung *instantan* und *lokal* stattfindet. Das Medium reagiert sofort auf eine Änderung des Feldes, und die Polarisation am Ort \underline{r} ist unabhängig von der Polarisation am Ort \underline{r}' . Im Allgemeinen sind diese Voraussetzungen streng erfüllt.³

Auch in dieser Vorlesung wird zunächst immer eine lokale und instantane Antwort der Materie vorausgesetzt.

1.2 Lineare Wellengleichung und Brechzahl

Zunächst noch einmal die Grundgleichungen der klassischen linearen Optik

$$\underline{P} = \epsilon_0 \cdot \underline{\chi} \cdot \underline{E} \quad (1.5)$$

$$\underline{D} = \epsilon_0 \underline{E} + \underline{P} = \epsilon_0 \underline{\epsilon_r} \underline{E} \quad (1.6)$$

mit dem Dielektrizitätstensor:

$$\underline{\epsilon_r} = \underline{1} + \underline{\chi} \quad (1.7)$$

Bzw. isotrop:

$$\epsilon_r = 1 + \chi \quad (1.8)$$

Aus den MAXWELL-Gleichungen

$$\nabla \underline{D} = \rho \quad (1.9)$$

$$\nabla \underline{B} = 0 \quad (1.10)$$

$$\nabla \times \underline{E} = -\frac{\partial \underline{B}}{\partial t} \quad (1.11)$$

$$\nabla \times \underline{H} = \underline{j} + \frac{\partial \underline{D}}{\partial t} \quad (1.12)$$

sowie den Materialgleichungen

$$\underline{D} = \epsilon_0 \underline{\epsilon_r} \underline{E} \quad (1.13)$$

$$\underline{B} = \mu_0 \underline{\mu_r} \underline{H} \quad (1.14)$$

³Eine nicht lokale und nicht instantane Wechselwirkung hätte die Form

$$P_\alpha(\underline{r}, t) = \epsilon_0 \int \chi(\underline{r} - \underline{r}', t - t') E_\alpha(\underline{r}', t') d^3 \underline{r}' dt'$$

und den Vakuumbedingungen (Keine äußeren Ladungen und Ströme)

$$\rho = 0 \quad (1.15)$$

$$\underline{\underline{\mu_r}} = \underline{\underline{1}} \quad (1.16)$$

$$\underline{j} = 0 \quad (1.17)$$

folgt unter der Annahme, dass der Dielektrizitätstensor räumlich konstant ist ($\nabla \underline{\underline{\epsilon_r}} = 0$):

$$\boxed{\nabla^2 \underline{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \underline{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \underline{P}}{\partial t^2}} \quad (1.18)$$

Dies ist die *Grundgleichung der linearen Optik*.

Im dielektrischen Medium gilt Gleichung 1.1, und mit zeitlich konstanter Suszeptibilität ($\frac{\partial \chi}{\partial t} = 0$) folgt die Wellengleichung

$$\nabla^2 \underline{E} - \frac{1}{c^2} (\underline{\underline{1}} + \underline{\underline{\chi}}) \frac{\partial^2 \underline{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (1.19)$$

Nun kann man den Brechzahlensor $\underline{\underline{n}}$ definieren:

$$\underline{\underline{n}}^2 = \underline{\underline{\epsilon_r}} = \sqrt{\underline{\underline{1}} + \underline{\underline{\chi}}} \quad (1.20)$$

Im isotropen Medium wird Gleichung 1.19 zu:

$$\nabla^2 \underline{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \underline{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (1.21)$$

Diese Wellengleichung hat als Lösung Felder der Form

$$\underline{E}(\underline{r}, t) = \underline{f}(\omega t - \underline{k} \underline{r}) = \underline{f}(\omega(t - \frac{\hat{n}_k \cdot \underline{r}}{v_{Ph}})) \quad (1.22)$$

mit dem Einheitsvektor in Ausbreitungsrichtung \hat{n}_k und der Phasengeschwindigkeit v_{Ph}

$$v_{Ph} = \frac{\omega}{|\underline{k}|} = \frac{c}{n} \quad (1.23)$$

Das bedeutet dass sich die Frequenz bei der Ausbreitung durch ein dielektrisches Medium nicht ändert. Bei reellem Brechzahlensor bleibt zudem die Amplitude erhalten, es findet keine Absorption statt. Bei nichtlinear-optischen Prozessen werden oft neue Frequenzen erzeugt.

1.3 Ein Beispiel: Selbstphasenmodulation durch Feldionisation

Es genügt zum Beispiel eine zeitabhängige Polarisierung oder ein zeitabhängiger Brechungsindex, um bei ansonsten linearer Wellenausbreitung neue Frequenzen zu erzeugen. Diesen Prozess nennt man *Selbstphasenmodulation*.

In praktischer Anwendung erzeugt man diesen Effekt zum Beispiel durch Feldionisation eines Gases (Abbildung 1.1).

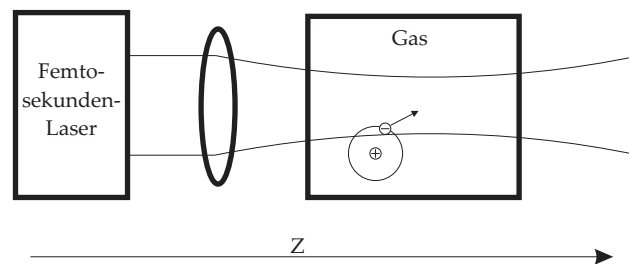


Abbildung 1.1: Feldionisation: Ein kurzer Laserpuls wird in ein Gas fokussiert und ionisiert dieses

Dabei ist anzumerken, dass die Wellenlänge des Lasers (sichtbares Licht: $0.5 \cdot 10^{-6}$ m) viel größer ist als die Ausdehnung der Atome ($0.1 \cdot 10^{-9}$ m), sodass auf die Elektronen ein annähernd konstantes Feld wirkt. Durch dieses wird das atomare Potential soweit abgesenkt, bis die Elektronen heraustunneln können und das Atom ionisiert wird. Dieser Vorgang heißt Feldionisation.

Für den Brechungsindex und die Dielektrizitätskonstante bei der Frequenz ω gilt:

$$n^2 = \epsilon_r = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (1.24)$$

Die Plasmafrequenz ω_p hängt jedoch wiederum von der freien Elektronen-

dichte n_e ab:

$$\omega_p^2 = \frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e} \quad (1.25)$$

Daraus ist schon offensichtlich, dass aus einer zeitlichen Änderung der Elektronendichte, die durch Feldionisation auftritt, eine Änderung des Brechungsindex folgt.

Da die Frequenz des eingestrahlten Lichtes im Allgemeinen groß ist gegen die Plasmafrequenz, kann man den Brechungsindex entwickeln:

$$n = 1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega^2} = 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e(t)}{n_{crit}} \quad (1.26)$$

n_{crit} bezeichnet hierbei eine "kritische Elektronendichte", die bei gegebener Frequenz des einfallenden Lichts eine Konstante ist. Für rotes Licht der Wellenlänge $\lambda \approx 800$ nm hat n_{crit} die Größenordnung 10^{-21} cm^{-2} .

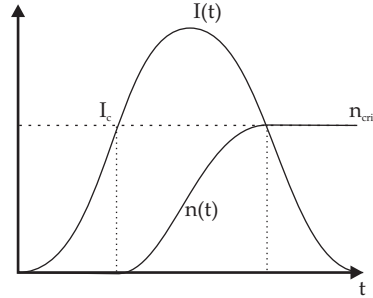


Abbildung 1.2: Sobald das Feld eine bestimmte Intensität I_c erreicht, können die Elektronen ungehindert aus der Atomhülle heraustunneln. Die Dichte der freien Elektronen steigt an, bis sie die kritische Elektronendichte erreicht und das Feld wieder zu schwach wird, um weitere Atome zu ionisieren. Die Rekombination findet auf einer viel größeren Zeitskala statt.

Für das elektrische Feld gilt:

$$E = E_0 e^{i(\omega t - k_0 n(t) z)} = E_0 e^{i\varphi(t)} \quad (1.27)$$

Mit der Phase

$$\varphi(t) = \omega t - k_0 n(t) z \quad (1.28)$$

Daraus kann man eine effektive Frequenz ω_{eff} bestimmen:

$$\omega_{eff} = \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \omega - k_0 z \frac{\partial}{\partial t} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{n_e(t)}{n_{crit}} \right) = \omega + \frac{k_0 z}{2 n_{crit}} \cdot \frac{\partial n_e}{\partial t} \quad (1.29)$$

Solange die Elektronendichte ansteigt, ist ω_{eff} größer als ω , es findet also eine Blauverschiebung statt. Diese wird auch tatsächlich beobachtet (Abbildungen 1.3 und 1.4).

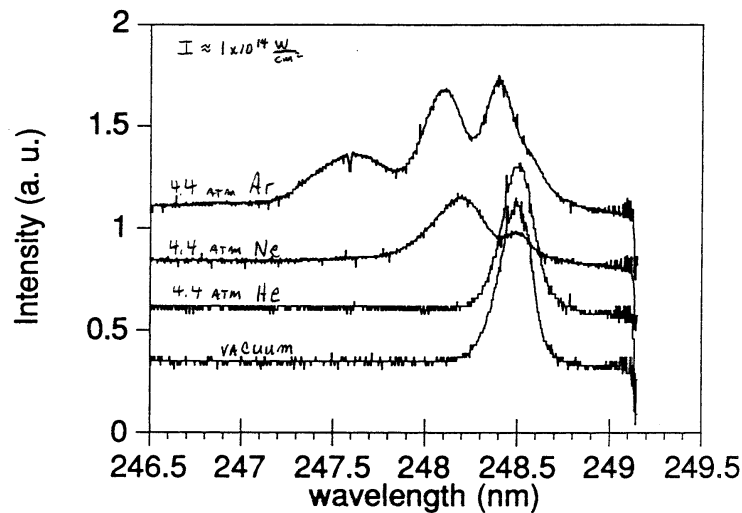


Abbildung 1.3: Blauverschiebung durch Selbstionisation in verschiedenen Gasen. Das Vakuumspektrum gibt das eingestrahlte Spektrum wieder.

⇒ Bei nichtlinearer Optik können Frequenzveränderungen auftreten.

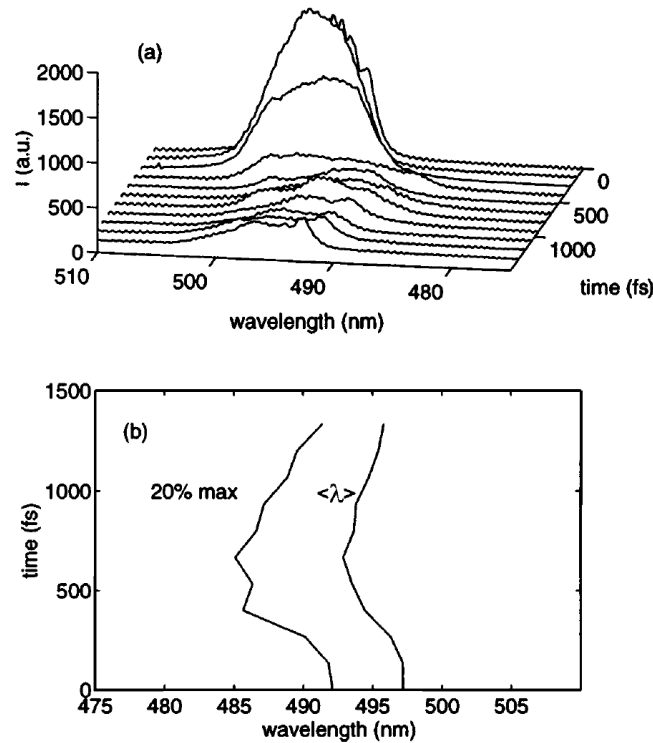


Abbildung 1.4: a) Zeitaufgelöste Spektren der Probenstrahlung. Zunächst wird die eingestrahlt Frequenz mit hoher Intensität abgestrahlt, die Intensität des Maximums verschiebt sich danach zunehmend hin zu kürzeren Wellenlängen. b) Verschiebung des Mittelwertes der Frequenz mit der Zeit (Aus: LeBlanc und Sauerbrey J. Opt. Soc. Am. B 13, 72 (1996))

1.4 Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex - Dispersion

Elektromagnetische Strahlung wechselwirkt mit den gebundenen Elektronen im Festkörper. Um die Betrachtung der Wechselwirkung zu vereinfachen, folgt erst einmal eine Betrachtung der Größenordnungen:

- Wellenlänge des Lichtes: (Siehe oben) $\lambda = 500 \text{ nm}$
 - Mittlerer Abstand Elektron-Atom: $r = 0.5 \text{ \AA}$ (1. Bohrscher Radius)
- Das Elektron sieht ein räumlich konstantes Feld
- Bindungsenergie durch inneratomares Feld $E_A = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 a_b^2} \approx 5 \cdot 10^{11} \text{ V/m}$
 - Feld einer em-Welle meist viel schwächer.
- In diesem Fall: Im Wesentlichen gebundenes Elektron, äußeres Feld verursacht kleine Störung → Störungsrechnung

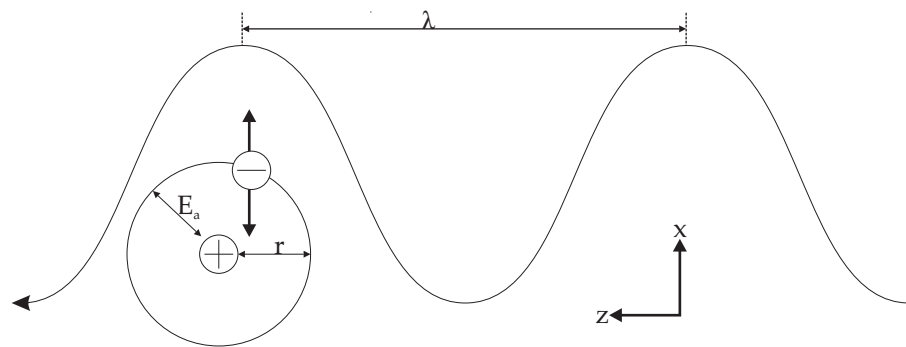


Abbildung 1.5: Eine in x-Richtung polarisierte Welle läuft in z-Richtung und regt dabei ein gebundenes Elektron zu Schwingungen in x-Richtung an.

Wir betrachten den eindimensionalen Fall: Die elektromagnetische Welle läuft in z-Richtung, das elektrische Feld ist linear in x-Richtung polarisiert. Die Bewegungsgleichung des Elektrons ist dann die eines (gedämpften) harmonischen Oszillators⁴ mit einem Störungsterm:

$$\ddot{x} + \nu\dot{x} + \omega_0^2 x = \frac{e}{m_e} E(z, t) \quad (1.30)$$

⁴In der nichtlinearen Optik werden dann stattdessen anharmonische Potentiale betrachtet

mit

$$E(z, t) = E_0 \cdot e^{i(\omega t - kz)} \quad (1.31)$$

Des weiteren ist ν ein Reibungsterm, der die Schwingung dämpft, uns aber hier nicht weiter interessieren soll. ω_0 ist die Eigenfrequenz des Elektrons im Potential des Atoms, das durch die elektromagnetische Welle nur schwach gestört wird.

Da die Maße des Atoms viel kleiner als die Wellenlänge sind, sieht das Elektron eine konstante Welle, und es gilt die Dipolnäherung:

$$E(z, t) \approx E(t) = E_0 \cdot e^{i\omega t} \quad (1.32)$$

Die Bewegungsgleichung des Elektrons entspricht nun der des getriebenen harmonischen Oszillators, die Lösung ist bekannt:

$$x(t) = \frac{\frac{e}{m_e} E_0}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\nu\omega} \cdot e^{i\omega t} \quad (1.33)$$

Aus der Bewegung des Elektrons entsteht ein Dipolmoment, makroskopisch gesehen tritt eine Polarisation auf. Daraus kann man auf die Suszeptibilität schließen. Es gilt sowohl

$$P = \epsilon_0 \cdot \chi_e \cdot E \quad (1.34)$$

als auch

$$P = e \cdot x(t) \cdot n_e \quad (1.35)$$

(mit der Elektronendichte n_e).

Daraus folgt für die Suszeptibilität:

$$\chi_e = \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\nu\omega} \quad (1.36)$$

mit der Plasmafrequenz

$$\omega_p^2 = \frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e} \quad (1.37)$$

Aus der Suszeptibilität folgt für die Dielektrizitätskonstante bzw. den Brechungsindex:

$$\epsilon_r = n^2 = 1 + \chi_e = 1 + \frac{\omega_p^2(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\nu^2} + i \frac{\omega_p^2\omega\nu}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\nu^2} \quad (1.38)$$

Man sieht sofort, dass der Brechungsindex abhängig von der Wellenlänge ist. Des weiteren ist offensichtlich, dass der Imaginärteil des Brechungsindex, der die Absorption beschreibt, direkt aus dem Dämpfungsterm in der Bewegungsgleichung hervorgeht.

Hier soll nun eine kleine Abschätzung der Größenordnungen folgen:

Festkörper:

- Elektronendichte: $n_e \approx 10^{22} \text{ cm}^{-3}$
- Plasmafrequenz: $\omega_p \approx 5 \cdot 10^{15} \text{ /s (UV)}$
- Dämpfung in Metallen typischerweise bei $\nu \approx 10^{12} \text{ /s (Elektron-Phonon-Kopplung)}$
- In der Nähe der Resonanz $\omega \approx \omega_0$ gilt meist auch $\omega \approx \omega_p$

→ Nahe der Resonanz gilt $\Im(\epsilon_r) \approx \frac{\omega_p}{\nu} \approx 5 \cdot 10^6 \gg 1$

Gas:

- Elektronendichte: $n_e \approx 10^{19} \text{ cm}^{-3}$
- Plasmafrequenz: $\omega_p \approx 10^{14} \text{ /s}$

→ An der Resonanz $\omega \approx \omega_0 \approx 10^{16} \text{ /s}$ gilt $\Im(\epsilon_r) \approx \frac{\omega_p^2}{\nu\omega} \approx 1$

- Etwas entfernt von der Resonanz gilt $\Im(\epsilon_r) \propto \frac{1}{\Delta\omega^4} \ll 1$

Der Brechungsindex von Gasen kann bei Frequenzen weit weg von der Resonanz angenähert werden:

$$n = \sqrt{\epsilon_r} \approx 1 + \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\nu^2} - \frac{i}{2} \frac{\omega_p^2\omega\nu}{(\omega_0^2 - \omega^2) + \omega^2\nu^2} \quad (1.39)$$

Quantenmechanisch wird stattdessen eine Störungs- bzw. Dichtematrixrechnung durchgeführt. Diese ist zum Beispiel bei Boyd ausgeführt. Prinzipiell werden dabei alle Resonanzniveaus ω_{0n} berücksichtigt, wobei jedes Niveau eine andere Oszillatorstärke f_{0n} aufweist:

$$f_{0n} = \frac{2m\omega_{0n}|\mu_{0n}|}{3\hbar e^2} \quad (1.40)$$

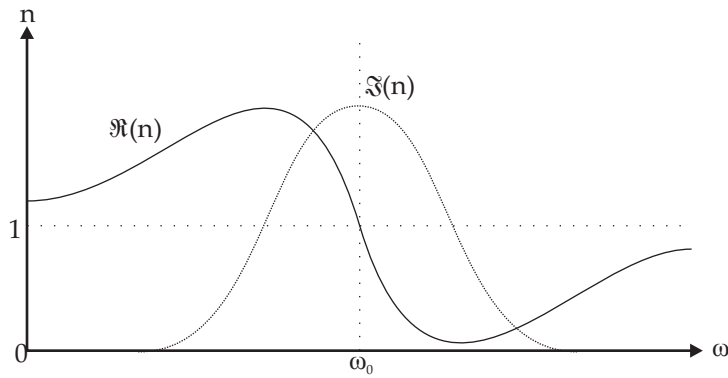


Abbildung 1.6: Real- und Imaginärteil des Brechungsindex von Gasen an der Resonanzstelle, schematisch

μ_{0n} sind dabei die Übergangswahrscheinlichkeiten von Niveau 0 in Niveau n ⁵. Für die Suszeptibilität gilt dann:

$$\chi(\omega) \approx \sum_n f_{0n} \frac{\omega_p^2}{\omega_{0n}^2 - \omega^2 - 2i\omega\gamma_{0n}} \quad (1.41)$$

(Mit der “Übergangsdämpfung” γ_{0n})

⁵Übergänge höherer Ordnung müssen erst berücksichtigt werden, wenn der Festkörper nicht mehr schnell in den Grundzustand zurückkehrt, was erst bei sehr hohen Temperaturen der Fall ist

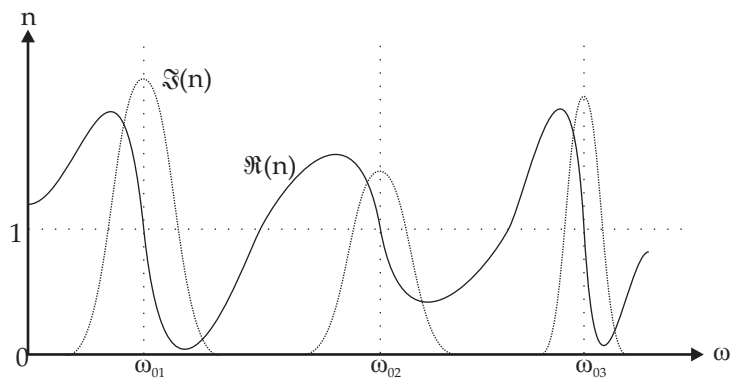


Abbildung 1.7: Real- und Imaginärteil des Brechungsindex von Gasen mit mehreren Resonanzen, schematisch

Kapitel 2

Das nichtlinear gebundene Elektron

Wir gehen wieder von einer in x-Richtung polarisierten elektromagnetischen Welle aus. Die allgemeine Bewegungsgleichung lautet:

$$m \cdot \ddot{x} = F_{\text{Reibung}} + F_{\text{Rück}} + F_{\text{el}} + F_{\text{mag}} \quad (2.1)$$

Die Reibungskraft resultiert aus der Dämpfung der Eigenschwingung im Potential. Dafür wird der Standardansatz angewendet:

$$F_{\text{Reibung}} = -\dot{x} \cdot \kappa \quad (2.2)$$

Für die elektrische Kraft gilt:

$$F_{\text{el}} = e \cdot E(t) \quad (2.3)$$

Hierbei wurde die Dipolnäherung angewendet. Der magnetische Anteil der LORENTZkraft ist bei Intensitäten kleiner 10^{18}W/cm^2 vernachlässigbar gering.

Die Rückstellkraft $F_{\text{Rück}}$ ist von der Potentialform abhängig und kann allgemein definiert werden als:

$$F_{\text{Rück}} = \underbrace{-D^{(1)} \cdot x}_{\text{Lineare Optik}} \underbrace{-D^{(2)} \cdot x^2 - D^{(3)} \cdot x^3 - D^{(4)} \cdot x^4 \dots}_{\text{Nichtlineare Optik}} \quad (2.4)$$

Die Reihe ist konvergent, sodass im Allgemeinen $D^{(n)}$ wesentlich größer als $D^{(n+1)}$ ist. In der linearen Optik wird nur der erste Term berücksichtigt,

also die Rückstellkraft als HOOKE'sch angenommen. In der Nichtlinearen Optik werden auch Terme höherer Ordnung berücksichtigt.

Des Weiteren unterscheidet man zwischen *zentrosymmetrischen* ($F(x) = -F(-x)$) und *nicht zentrosymmetrischen* ($F(x) \neq -F(-x)$) Medien.

2.1 Nicht zentrosymmetrische Medien

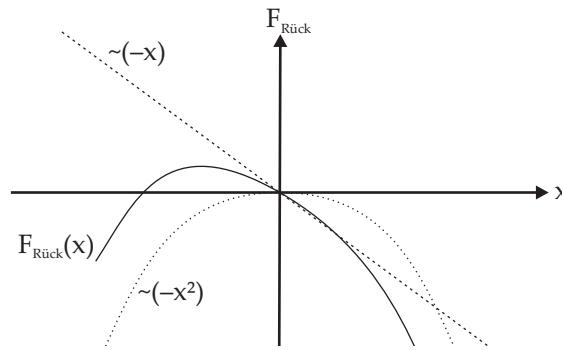


Abbildung 2.1: Ein nicht zentrosymmetrisches Potential aus einem linearen und einem quadratischen Term

In niedrigster Ordnung lautet der Ansatz für die Rückstellkraft:

$$F_{\text{Rück}} = -D^{(1)} \cdot x - D^{(2)} \cdot x^2 \quad (2.5)$$

Die Bewegungsgleichung wird damit zu

$$\ddot{x} + \nu \dot{x} + \omega_0^2 x + ax^2 = \frac{e}{m} E_0 \cos(\omega t) \quad (2.6)$$

mit

$$\nu := \frac{\kappa}{m}; \quad \omega_0^2 := \frac{D^{(1)}}{m}; \quad a := \frac{D^{(2)}}{m} \quad (2.7)$$

Diese nichtlineare Schwingungsgleichung ist im Allgemeinen nicht exakt lösbar. Deshalb wird oft eine Störungsrechnung angesetzt. Dabei wird gefordert, dass

$$\omega_0^2 \cdot x \gg ax^2 \quad (2.8)$$

ist, was gleichbedeutend mit

$$x \ll \frac{\omega_0^2}{a} = \frac{D^{(1)}}{D^{(2)}} \quad (2.9)$$

ist. Als weitere Vereinfachung wird der Dämpfungsterm $\nu \dot{x}$ vernachlässigt.

Der Lösungsansatz für x lautet dann:

$$x(t) = x^{(1)}(t) + x^{(2)}(t) \quad (2.10)$$

Wobei angenommen wird, dass

$$\max_t(x^{(1)}) \gg \max_t(x^{(2)}) \quad (2.11)$$

Die Bewegungsgleichung lautet dann:

$$\begin{array}{ccccccc} \ddot{x}^{(1)} + \ddot{x}^{(2)} + \omega_0^2 \cdot x^{(1)} + \omega_0^2 \cdot x^{(2)} + a \cdot x^{(1)2} + 2a \cdot x^{(1)}x^{(2)} + a \cdot x^{(2)2} = \frac{e}{m} E_0 \cos(\omega t) \\ (1) \quad (2) \quad (3) \quad (4) \quad (5) \quad (6) \quad (7) \end{array} \quad (2.12)$$

Die Terme 6 und 7 können wegen Gleichung 2.11 ganz vernachlässigt werden. In erster Ordnung der Näherung sind dazu die Terme 4 und 5 viel kleiner als Term 3 (Gleichungen 2.11 bzw. 2.9) und Term 2 viel kleiner als Term 1. Dann wird die Bewegungsgleichung zu:

$$\ddot{x}^{(1)} + \omega_0^2 \cdot x^{(2)} = -\frac{e}{m} E_0 \cos(\omega t) \quad (2.13)$$

Das ist wieder der getriebene harmonische Oszillator mit der Lösung:

$$x^{(1)} = \frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \cdot E_0 \cos(\omega t) \quad (2.14)$$

In zweiter Näherungsordnung gilt für die Terme 2, 4 und 5:

$$\ddot{x}^{(2)} + \omega_0^2 \cdot x^{(2)} = -a \cdot x^{(1)2} \quad (2.15)$$

Setzt man hier Gleichung 2.14 ein, so erhält man:

$$\ddot{x}^{(2)} + \omega_0^2 \cdot x^{(2)} = \frac{a}{2} \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 \cdot E_0 (1 + \cos(2\omega t)) \quad (2.16)$$

Die rechte Seite besteht offensichtlich aus einem konstanten und einem zeitlich veränderlichen Term. Man kann daher $x^{(2)}$ separieren in $x^{(2)} = x_1^{(2)} + x_2^{(2)}$ und die Differentialgleichung für jeden der beiden Anteile getrennt lösen:

$$\ddot{x}_1^{(2)} + \omega_0^2 x_1^{(2)} = -\frac{a}{2} \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 E_0^2 \quad (2.17)$$

$$\Rightarrow x_1^{(2)} = \text{const.} = -\frac{a}{2\omega_0^2} \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 E_0^2 \quad (2.18)$$

$$\ddot{x}_2^{(2)} + \omega_0^2 x_2^{(2)} = -\frac{a}{2} \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 E_0^2 \cos(2\omega t) \quad (2.19)$$

$$\Rightarrow x_2^{(2)} = -\frac{a}{2(\omega_0^2 - 4\omega^2)} \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 E_0^2 \cos(2\omega t) \quad (2.20)$$

Für $x = x^{(1)} + x^{(2)} = x^{(1)} + x_1^{(2)} + x_2^{(2)}$ folgt dann:

$$x = \frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} E_0 \cos(\omega t) - \frac{a}{2\omega_0^2} \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 E_0^2 - \frac{a}{2(\omega_0^2 - 4\omega^2)} \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 E_0^2 \cos(2\omega t) \quad (2.21)$$

Die Bewegung des Elektrons ist offensichtlich eine Überlagerung von drei Schwingungen:

- Eine Oszillation mit der Frequenz ω . Dieser Term beschreibt die klassische lineare Optik
- Eine Oszillation mit der Frequenz 0. Dieser Effekt heißt optische Gleichrichtung und beschreibt eine statische Polarisation
- Eine Oszillation mit der Frequenz 2ω . Dies ist die sogenannte *Frequenzverdopplung*. Die Amplitude dieser Schwingung ist proportional zu E_0^2 ! Man nennt diesen Teil der Welle auch die "zweite Harmonische".

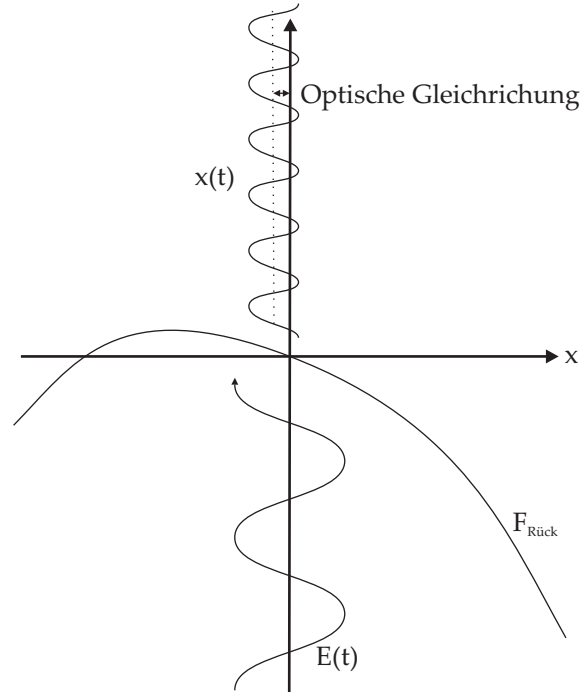


Abbildung 2.2: Schwingung des Elektrons im elektrischen Feld E bei nichtlinearer, nichtzentrosymmetrischer Rückstellkraft

2.2 Zentrosymmetrische Medien

Für die Rückstellkraft gilt im zentrosymmetrischen Fall:

$$F_{\text{Rück}} = -D^{(1)} \cdot x - D^{(3)} \cdot x^3 \quad (2.22)$$

Daraus folgt die Bewegungsgleichung:

$$\ddot{x} + \nu \dot{x} + \omega_0^2 x + bx^3 = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + E_3 e^{-i\omega_3 t} + \text{c.c.} \quad (2.23)$$

Die Lösung besitzt die Struktur:

$$x(t) = x^{(1)} + x^{(3)} \quad (2.24)$$

$x^{(2)}$ verschwindet.

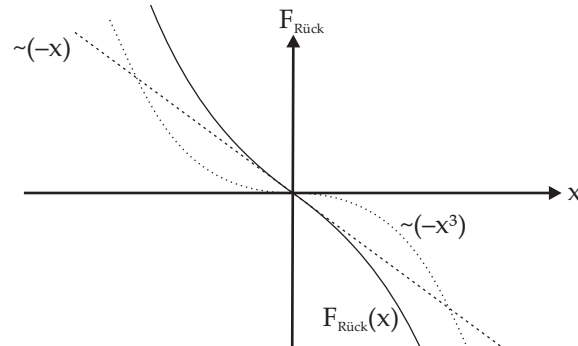


Abbildung 2.3: Ein zentrosymmetrisches Potential aus einem linearen und einem kubischen Term

Die Lösung des nichtlinearen Terms lautet dann:

$$x^{(3)}(\omega_q) = - \sum_{m,n,p} \frac{be^3 E(\omega_m) E(\omega_n) E(\omega_p)}{m^3 D(\omega_q) D(\omega_m) D(\omega_p)} \quad (2.25)$$

Dabei ist:

$$\omega_q = \omega_m + \omega_n + \omega_p \quad \text{Mit } m, n, p = \pm 1 \quad (2.26)$$

$$D(\omega) = \omega_0^2 - \omega^2 - i\nu\omega \quad (2.27)$$

Die weitere Bedeutung dieser Gleichungen wird im Kapitel über Prozesse dritter Ordnung diskutiert.

Kapitel 3

Nichtlineare Polarisation und Wellengleichung

Bemerkung: Dieses Kapitel kann in ähnlicher Form auch in der ersten Hälfte vom Milonni&Eberly nachgelesen werden

Das Dipolmoment pro Volumeneinheit eines Festkörpers lautet:

$$\underline{P} = n_e \cdot e \cdot \underline{r} \quad (3.1)$$

oder im eindimensionalen Fall

$$P = n_e \cdot e \cdot x \quad (3.2)$$

Hier bei ist n_e die Elektronendichte. Das eindimensionale E-Feld ist hierbei in x-Richtung polarisiert und hat damit die Form

$$\underline{E} = (E, 0, 0) \quad (3.3)$$

Da in den nichtlinearen Bewegungsgleichungen das Superpositionsprinzip *nicht* mehr gilt, müssen stets *reelle* Felde gewählt werden:

$$\begin{aligned} E(z, t) &= \Re(\varepsilon_\omega(z) \cdot e^{-i(\omega t - k_\omega z)}) \\ &= \frac{1}{2} [\varepsilon_\omega(z) e^{-i(\omega t - k_\omega z)} + \varepsilon_\omega^*(z) e^{i(\omega t - k_\omega z)}] \end{aligned} \quad (3.4)$$

mit

$$k_\omega = n(\omega) \cdot \frac{\omega}{c} \quad (3.5)$$

Bei $z = 0$ und $\varepsilon_\omega(z) = E_0 = \text{const.}$ wird Gleichung 3.4 zu:

$$E(0, t) = E_0 \cos \omega t \quad (3.6)$$

Dann ist aus Kapitel 2:

$$x_0 = -\frac{a}{2\omega_0^2} \cdot \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 \cdot |\varepsilon_\omega(z)|^2 \quad (3.7)$$

$$x_\omega = \frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \cdot \varepsilon_\omega(z) \cdot e^{ik_\omega z} \quad (3.8)$$

$$x_{2\omega} = -\frac{a}{2} \cdot \frac{1}{\omega_0^2 - 4\omega^2} \cdot \left(\frac{e/m}{\omega_0^2 - \omega^2} \right)^2 \cdot \varepsilon_\omega^2(z) \cdot e^{2ik_\omega z} \quad (3.9)$$

Nun soll das abgestrahlte Feld der Elektronen aus den MAXWELL-Gleichungen errechnet werden. Für die Polarisation $P^{(2)}$ (Zweite Ordnung) folgt:

$$\begin{aligned} P^{(2)}(z, t) = P_0^{(NL)} + \frac{1}{2} \left[P_\omega^{(L)} e^{-i(\omega t - k_\omega z)} + P_\omega^{(L)*} e^{i(\omega t - k_\omega z)} \right] \\ + \frac{1}{2} \left[P_{2\omega}^{(NL)} e^{-2i(\omega t - k_\omega z)} + P_{2\omega}^{(NL)*} e^{2i(\omega t - k_\omega z)} \right] \end{aligned} \quad (3.10)$$

Die Amplituden sind hierbei:

$$P_0^{(NL)} = -\frac{n_e a e^3}{2m^2 \omega_0^2 (\omega_0^2 - \omega^2)^2} \cdot |\varepsilon_\omega(z)|^2 \quad (3.11)$$

$$P_\omega^{(L)} = \frac{n e^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2)} \cdot |\varepsilon_\omega(z)| \quad (3.12)$$

$$P_{2\omega}^{(NL)} = -\frac{n_e a e^3}{2m^2 (\omega_0^2 - 4\omega^2) (\omega_0^2 - \omega^2)^2} \cdot \varepsilon_\omega^2(z) \quad (3.13)$$

Die hochgestellten Indizes (L) und (NL) bezeichnen jeweils die linearen bzw. nichtlinearen Anteile.

Damit wird aus Gleichung 1.18 (Mit $\frac{\partial^2}{\partial t^2} P_0^{(NL)} \equiv 0$):

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left(P_\omega^{(L)} + P_{2\omega}^{(NL)} \right) \quad (3.14)$$

Des Weiteren gilt näherungsweise:

$$P_\omega^{(L)} = \epsilon_0 \cdot \chi_{e,\omega} \cdot E \quad (3.15)$$

Mit $n_\omega^2 = 1 + \chi_{e,\omega}$ folgt daraus die *Grundgleichung der Nichtlinearen Optik*:

$$\boxed{\nabla^2 E - \frac{n_\omega^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(NL)}} \quad (3.16)$$

Diese Gleichung beschreibt ein von der nichtlinearen Polarisation getriebenes E-Feld, also die Abstrahlung der bewegten Elektronen. E_0 erzeugt die nichtlineare Polarisation $P^{(NL)}$, welche E abstrahlt. Alternativ kann man es auch als von E_0 getriebenes, zeitabhängiges $\chi(t)$ ansehen, welches neue Frequenzen erzeugt.

Kapitel 4

Frequenzverdopplung

4.1 Lösung der Wellengleichung

In diesem Kapitel soll es darum gehen, die Wellengleichung 3.16 zu lösen und das Ergebnis zu interpretieren. Bemerkung: Aus Gründen der Einfachheit wird jetzt der konjugiert komplexe Teil nicht mehr ausgeschrieben. Prinzipiell gelten alle Argumente, die auf das komplexe Feld angewandt werden auch für sein konjugiert komplexes.

Für das E-Feld mit der Frequenz 2ω gelte folgender Ansatz:

$$E = \frac{1}{2} [\varepsilon_{2\omega}(z)e^{-i(2\omega - k_{2\omega}z)} + \text{c.c.}] \quad (4.1)$$

Mit

$$k_{2\omega} = n(2\omega) \cdot \frac{2\omega}{c} \quad (4.2)$$

Es wird nun noch folgende Näherung eingeführt: Die Einhüllende der Wellenfunktion, also $\varepsilon_{2\omega}(z)$ ändere sich wesentlich langsamer als die Schwingung selbst. Diese Näherung heißt "Slowly varying envelope approximation", oder SVEA:

$$k_{2\omega} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{2\omega}}{\partial z} \gg \frac{\partial^2 \varepsilon_{2\omega}}{\partial z^2} \quad (4.3)$$

Für die Terme der linken Seite von Gleichung 3.16 gilt nun:

$$\nabla^2 E = \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} \approx \frac{1}{2} \left[2ik_{2\omega} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{2\omega}}{\partial z} - k_{2\omega}^2 \varepsilon_{2\omega} \right] \cdot e^{-i(2\omega t - k_{2\omega} z)} + \text{c.c.} \quad (4.4)$$

$$\frac{n_{2\omega}^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = -\frac{1}{2} \frac{4\omega^2 n_{2\omega}^2}{c^2} [\varepsilon_{2\omega} \cdot e^{-i(2\omega t - k_{2\omega} z)} + \text{c.c.}] \quad (4.5)$$

Mit Gleichung 4.2 wird die gesamte linke Seite damit zu:

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{n_{2\omega}^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = ik_{2\omega} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{2\omega}}{\partial z} \cdot e^{-i(2\omega t - k_{2\omega} z)} + \text{c.c.} \quad (4.6)$$

Für die rechte Seite gilt:

$$\begin{aligned} \mu_0 \frac{\partial^2 P^{(NL)}}{\partial t^2} &= \frac{1}{2} \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left[P_{2\omega}^{(NL)} \cdot e^{-2i(\omega t - k_{\omega} z)} + \text{c.c.} \right] \\ &= -2\omega^2 \mu_0 \cdot P_{2\omega}^{(NL)} \cdot e^{-2i(\omega t - k_{\omega} z)} + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (4.7)$$

Damit lautet Gleichung 3.16 nun:

$$ik_{2\omega} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{2\omega}}{\partial z} \cdot e^{-i(2\omega t - k_{2\omega} z)} + \text{c.c.} = -2\omega^2 \mu_0 \cdot P_{2\omega}^{(NL)} \cdot e^{-2i(\omega t - k_{\omega} z)} + \text{c.c.} \quad (4.8)$$

Die Zeitabhängigkeit ist auf beiden Seiten dieselbe und kann daher herausgekürzt werden. Damit wird:

$$\frac{\partial \varepsilon_{2\omega}}{\partial z} = 2 \frac{i\mu_0 \omega^2}{k_{2\omega}} \cdot P_{2\omega}^{(NL)} \cdot e^{i(2k_{\omega} - k_{2\omega})z} + \text{c.c.} \quad (4.9)$$

Außerdem war (Gleichung 3.13):

$$P_{2\omega}^{(NL)} = -\frac{n_e a e^3}{2m^2(\omega_0^2 - 4\omega^2)(\omega_0^2 - \omega^2)^2} \cdot \varepsilon_{\omega}^2(z) =: -\bar{d} \cdot \varepsilon_{\omega}^2(z) \quad (4.10)$$

Mit der *Phasenfehlanpassung* ("phase mismatch") Δk

$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c} (n(\omega) - n(2\omega)) \quad (4.11)$$

ergibt sich damit:

$$\boxed{\frac{\partial \varepsilon_{2\omega}}{\partial z} = \frac{2i\omega}{n(2\omega)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \bar{d} \cdot \varepsilon_{\omega}^2(z) \cdot e^{i\Delta k z}} \quad (4.12)$$

Die Anwachsrate des 2ω -Feldes hängt über die Materialkonstanten $n(2\omega)$, \bar{d} und Δk vom angelegten Feld ε_{ω} , der *Fundamentalen* ab. Außerdem besitzt es eine Oszilation im Ort.

4.2 Intensitätsbetrachtungen

Für die weitere Betrachtung soll angenommen werden, dass die Erzeugung der zweiten Harmonischen ein sehr ineffizienter Effekt ist, der nur sehr wenig Energie aus der ursprünglichen Welle aufnimmt. Dann gilt:

$$\varepsilon_{\omega}^2(z) \approx \varepsilon_{\omega}^2(0) =: \varepsilon_{\omega}^2 = \text{const.} \quad (4.13)$$

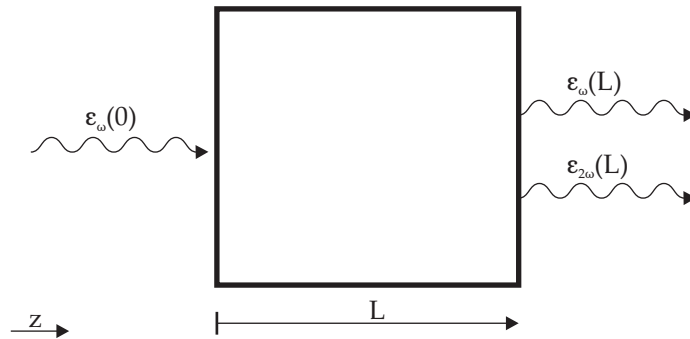


Abbildung 4.1: Ein Feld der Frequenz ω erzeugt in einem Körper der Länge L ein Feld der Frequenz 2ω .

Dann kann Gleichung 4.12 durch Integration gelöst werden, und man erhält:

$$\varepsilon_{2\omega}(L) = \frac{i\omega}{n(\omega)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} d\varepsilon_{\omega}^2(0) L \cdot e^{i\frac{\Delta k L}{2}} \frac{\sin(\frac{\Delta k L}{2})}{\frac{\Delta k L}{2}} \quad (4.14)$$

Für die Intensitäten I_{ω} bzw. $I_{2\omega}$ gilt:

$$I_{\omega, 2\omega} = \frac{n(\omega, 2\omega)}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_{\omega, 2\omega}|^2 \quad (4.15)$$

Anmerkung:

Im Vakuum ($n = 1$) gilt: $\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \approx 377 \, \Omega$ Daraus folgt:

$$I_{\frac{W}{m^2}} \approx \frac{n}{754} \cdot (\varepsilon_{\frac{V}{m}}) \Leftrightarrow \varepsilon_{\frac{V}{m}} \approx \sqrt{754 \cdot I_{\frac{W}{m^2}}}$$

Hier nun ein paar Zahlenbeispiele, um die Größenordnungen zu verdeutlichen:

Lichtquelle	Intensität	Feldstärke
Sonne	$\approx 1 \text{ kW/m}^2$ (Solarkonstante)	$\approx 1000 \text{ V/m}$
Schwacher Laser	$\approx 10 \text{ GW/m}^2$	$\approx 2,7 \text{ MV/m}$
Starker Laser	$\approx 10^{24} \text{ W/m}^2$	$\approx 2,7 \cdot 10^{13} \text{ V/m}$

Zum Vergleich: In aktuellen Beschleunigern werden Feldstärken der Größenordnung MV/m erreicht. Diese ist jedoch durch die Überschlagsspannung begrenzt.

Stellt man Gleichung 4.15 nach der jeweiligen Intensität um, so erhält man:

$$I_{2\omega}(L) = 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \frac{\omega^2 \bar{d}^2}{n^2(\omega) n(2\omega)} I_{\omega}^2(0) L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} \quad (4.16)$$

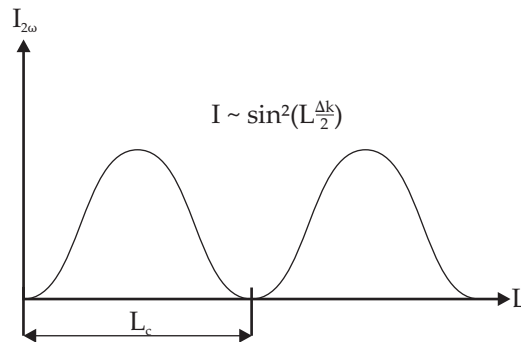


Abbildung 4.2: Intensität der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit der Länge L des Festkörpers bei einer nicht verschwindenden Phasenfehlanpassung. Die Länge L_c heißt *Kohärenzlänge*.

Der Grund, dass bei bestimmten Probenabmessungen bei Verlängerung der Probe die Intensität der zweiten Harmonischen sinkt, liegt in der Größe Δk . Diese beschreibt die Differenz der Wellenvektoren der Wellen mit der Kreisfrequenz ω und 2ω , und damit eine Differenz in der Phasengeschwindigkeit.

An jedem Ort L' erzeugt die eingestrahlte Welle mit der Frequenz ω eine Welle mit der Frequenz 2ω und der selben Phase. Am Ort $L' + \frac{1}{2}L_c$ wird auch eine Welle mit der Frequenz 2ω erzeugt, nur dass diese zu der ersten

genau um π phasenverschoben ist und sie daher auslöscht. (Abbildung 4.3)

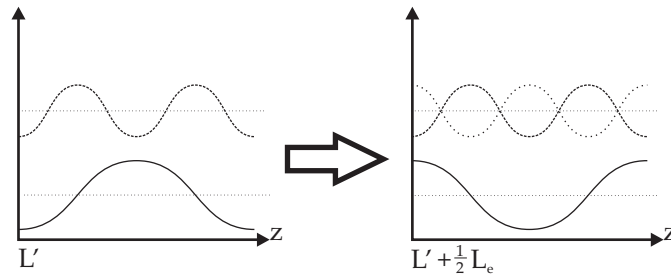


Abbildung 4.3: Am Ort L' erzeugt die Fundamentale (durchgezogen) eine Welle der Frequenz 2ω mit der selben Phase (gestrichelt). Am Ort $L' + \frac{1}{2}L_c$ hat die Fundamentale jedoch aufgrund der unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten eine um π verschobene Phase zur zweiten harmonischen. Deshalb hat auch die an diesem Ort erzeugte zweite Harmonische einen Phasenunterschied von π zu der zuerst erzeugten, es findet Auslöschung statt.

Beispiel:

- Nd-Yag-Laser: $\lambda = 1,064 \text{ } \mu\text{m}$, $\frac{\lambda}{2} = 532 \text{ nm}$
- Kristalliner Quarz: $n(\omega) = n(\lambda) = 1,534$, $n(2\omega) = n(\frac{\lambda}{2}) = 1,547$

$$\Delta k = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot \Delta n \quad \rightarrow \quad L_c = \frac{\lambda}{2\Delta n} = \frac{532 \text{ nm}}{0,013} = 41 \text{ } \mu\text{m}$$

4.3 Wirkungsgrad der zweite-Harmonische-Erzeugung und nichtlinearoptischer Koeffizient

Den Wirkungsgrad der Erzeugung der zweiten Harmonischen (Auch kurz SHG: "Second Harmonics Generation") können wir definieren als:

$$\eta_{SHG} := \frac{I_{2\omega}(L)}{I_{\omega}} \propto \omega^2 \cdot \bar{d}^2 \cdot I(0) L^2 \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (4.17)$$

Gelänge es, die Phasenfehlanpassung verschwinden zu lassen, also $\Delta k \rightarrow 0$, so würde der oszillierende Term gegen 1 konvergieren:

$$\frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \xrightarrow{\Delta k \rightarrow 0} 1 \quad (4.18)$$

Die Intensität der zweiten harmonischen geht also quadratisch sowohl mit der Intensität $I_{2\omega}$ der eingestrahnten Welle als auch mit der Länge L des Körpers. (Abbildung 4.4)

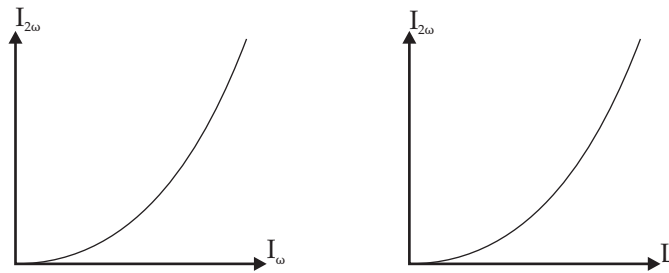


Abbildung 4.4: Intensität der zweiten harmonischen bei verschwindender Phasenfehlanpassung in Abhängigkeit von der Länge der Probe sowie der Intensität der eingestrahnten Welle

Für die Polarisierung galt (Gleichung 3.13):

$$P_{2\omega}^{(NL)} = - \underbrace{\frac{n_e a e^3}{2m^2(\omega_0^2 - 4\omega^2)(\omega_0^2 - \omega^2)^2}}_{\bar{d}} \cdot \varepsilon_\omega^2(z) \quad (4.19)$$

Für den nichtlinearen Koeffizienten \bar{d} soll nun die Größenordnung abgeschätzt werden. Dafür werden die einzelnen Anteile untersucht:

- ω_0 :

Die eingestrahlte Frequenz ω_0 sollte so liegen, dass das untersuchte Material transparent ist, also keine Bandlücke im betrachteten Frequenzbereich besitzt. Sichtbares Licht hat eine Wellenlänge in der Größenordnung 1 μm . Das entspricht einer Energie von ca. 1 eV (1,2 $\mu\text{m} \hat{=} 1$ eV, 600 nm $\hat{=} 2$ eV). Die Bandlücke sollte also möglichst größer als 3 eV sein. Außerdem darf das Material nicht zentrosymmetrisch sein. Ein Beispiel ist Quarz: Er besitzt eine Bandlücke von 6 eV. Das entspricht einer Frequenz von $\omega_0 = \frac{c_0}{\lambda} \approx 10^{16}$ Hz. Zum Vergleich: sichtbares Licht hat eine Frequenz von 10^{15} Hz ($\lambda = 1 \mu\text{m}$).

Für einen nichtresonanten Prozess ($(4)\omega^2 \ll \omega_0^2$) gilt:

$$\bar{d} \approx \frac{n_e a e^3}{2m^2 \omega_0^6} \quad (4.20)$$

- a

Um die Größenordnung des Parameters a abzuschätzen, soll hier kurz ein einfaches Modell entwickelt werden: Um das Minimum r_0 herum kann das Potential in eine Taylorreihe entwickelt werden:

$$V(r) = -\frac{V_0}{2} + \frac{V_0}{r_0^2}(r - r_0)^2 - \frac{V_0}{r_0^3}(r - r_0)^3 + \dots \quad (4.21)$$

Die auf das Elektron wirkende Kraft ist dann:

$$F(x) = -\frac{dV}{dr} = -2\frac{V_0}{r_0^2}x - \underbrace{3\frac{V_0}{r_0^3}}_{a \cdot m}x^2 + \dots \quad (4.22)$$

Mit einer typischen Potentialtiefe von 5 eV, einer Gitterkonstante (\cong mittlere Auslenkung des Elektrons) von 3 Å und der Ruhemasse des Elektrons ergibt sich:

$$a \approx 10^{42} \text{ s}^{-2} \text{ m}^{-1}$$

Die Elektronendichte in Metallen beträgt ungefähr:

$$n_e \approx 3 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3} = 3 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3} \quad (4.23)$$

Damit ergibt sich für den nichtlinearen Koeffizienten:

$$\bar{d} \approx 10^{-22} \frac{\text{As}}{\text{V}^2}$$

In Abbildung 4.5 sind die nichtlinearen Koeffizienten für verschiedene Materialien und Kristallrichtungen angegeben.

Der Nachweis der zweiten Harmonischen gelang zuerst P.A. Franken et al.¹. Das wesentlich anschaulichere Experiment führten jedoch Maker et al durch² (Abbildung 4.6):

Ein Quarzkristall wird von einem Rubin-Laser durchstrahlt. Hinter dem Kristall befindet sich ein Blaufilter, der nur die zweite Harmonische, nicht jedoch den anregenden Strahl hindurchlässt. Danach folgt ein Photomultiplier und ein Szintillator zum Messen der Intensitäten. Dreht man nun den Kristall um eine Achse senkrecht zum Strahl, so entsteht bei Auftragung der Intensität über dem Drehwinkel ein symmetrisches Kamm-Muster, die sogenannten "Maker-Fringes" (Abbildung 4.7).

4.4 Phasenanpassung

Die Erzeugung der zweiten Harmonischen ist äußerst ineffizient. Eine Lösungsmöglichkeit dieses Problems ist die sogenannte Phasenanpassung. Man spricht von Phasenanpassung, wenn die Phasenfehlanpassung verschwindet, also:

$$\Delta k = \frac{2\omega}{c} (n(2\omega) - n(\omega)) \stackrel{!}{=} 0 \quad (4.24)$$

Der häufigste Ansatz, dies zu erreichen, ist die *Winkelphasenanpassung* ("angle phase matching") in doppelbrechenden Materialien. Deshalb folgt hier eine kurze Wiederholung der Doppelbrechung:

¹P.A. Franken, A.E.Hill, C.W. Peters und G. Weinreich, Phys. Rev. Lett. 7, 118 (1961)

²P. D. Maker, R. W. Terhune, M. Nisenhoff und C. M. Savage, Phys. Rev. Lett. 8, 21 (1962).

TABLE 19.6-1 Representative Magnitudes of Second-Order Nonlinear Optical Coefficients for Different Materials^a

Crystal	d_{iK} (MKS units) ^b
Te	$d_{11} = 5.7 \times 10^{-21}$
GaAs	$d_{14} = 1.2 \times 10^{-21}$
Ag ₃ AsS ₃ (proustite)	$d_{31} = 1.5 \times 10^{-22}$
	$d_{22} = 2.4 \times 10^{-22}$
	$d_{33} = 3.0 \times 10^{-22}$
KNbO ₃	$d_{31} = 1.4 \times 10^{-22}$
	$d_{32} = 1.8 \times 10^{-22}$
BaNbNbO ₁₅ (bananas)	$d_{33} = 1.2 \times 10^{-22}$
	$d_{32} = 8.2 \times 10^{-23}$
LiIO ₃	$d_{31} = 1.1 \times 10^{-22}$
	$d_{33} = 3.2 \times 10^{-23}$
KTiOPO ₄ (KTP)	$d_{33} = 1.2 \times 10^{-22}$
	$d_{31} = 5.8 \times 10^{-23}$
	$d_{32} = 4.4 \times 10^{-23}$
LiNbO ₃	$d_{31} = 4.3 \times 10^{-23}$
	$d_{22} = 2.3 \times 10^{-23}$
	$d_{33} = 3.9 \times 10^{-22}$
β -BaB ₂ O ₄ (BBO)	$d_{22} = 1.4 \times 10^{-23}$
	$d_{31} = 7.1 \times 10^{-25}$
LiB ₃ O ₅ (LBO)	$d_{32} = 1.1 \times 10^{-23}$
	$d_{31} = 1.0 \times 10^{-23}$
	$d_{33} = 5.6 \times 10^{-25}$
NH ₄ H ₂ PO ₄ (ADP)	$d_{36} = 6.8 \times 10^{-24}$
KH ₂ PO ₄ (KDP)	$d_{36} = 4.1 \times 10^{-24}$
	$d_{14} = 3.8 \times 10^{-24}$
Quartz	$d_{11} = 3.0 \times 10^{-24}$
	$d_{14} = 2.6 \times 10^{-26}$

^aActual values depend on the wavelength.

^bThe coefficients d/ϵ_0 are often used in the literature (generally in units of pm/V). The coefficients in the table are readily converted to pm/V by dividing the tabulated values by $10^{-12}\epsilon_0 = 8.84 \times 10^{-24}$.

Abbildung 4.5: Representative Größenordnungen Nichtlinearer Koeffizienten verschiedener Materialien

4.4.1 Doppelbrechung in einachsigen Kristallen

Tritt ein Strahl in einen doppelbrechenden Kristall ein, so wird er in zwei Strahlen aufgespalten: Den ordentlichen und den außerordentlichen Strahl. Im ordentlichen Strahl ist das E-Feld senkrecht zu der Ebene polarisiert, die durch die Ausbreitungsrichtung und die Kristallachse aufge-

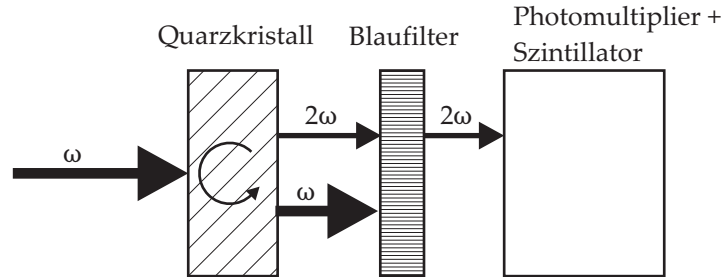


Abbildung 4.6: Schematischer Aufbau des Experiments von Maker et al. Siehe Text

spannt wird. Im außerordentlichen Strahl ist das E-Feld parallel zu dieser Ebene polarisiert. (Abbildung 4.8)

Für beide Strahlen lässt sich ein Brechungsindex angeben:

- $n_o = n_{\text{ordentlich}}(\omega)$ für den ordentlichen Strahl, unabhängig vom Winkel zwischen Einfallsrichtung und optischer Achse des Kristalls Θ
- $n_e = n_{\text{außerordentlich}}(\omega, \Theta)$ für den außerordentlichen Strahl, abhängig von Θ :

$$\frac{1}{n_e^2(\omega, \Theta)} = \frac{\cos^2(\Theta)}{n_o^2(\omega)} + \frac{\sin^2(\Theta)}{n_e^2(\omega)} \quad (4.25)$$

$n_e(\omega)$ ist hierbei der außerordentliche Brechungsindex bei Einfall senkrecht zur optischen Achse. Beim Einfall in Richtung der optischen Achse sind die beiden Brechungsindizes gleich.

Damit lassen sich nun zwei Fälle unterscheiden: Der des positiv einachsigen, sowie des negativ einachsigen doppelbrechenden Kristalls.

4.4.2 Positiv einachsiger Kristall

Für den positiv einachsigen Kristall gilt:

$$n_e(\omega) > n_o(\omega) \quad (4.26)$$

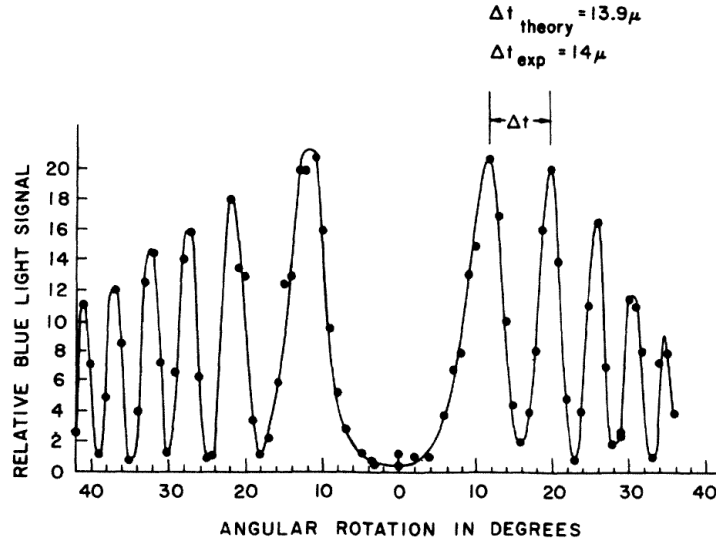


FIG. 1. Blue light generation vs inclination of 0.0308-in. thick quartz platelet to laser beam. Rotation axis normal to beam, parallel to crystal z axis. Red beam unfocused and polarized parallel to the z axis.

Abbildung 4.7: Aus der Originalarbeit von Maker et al.

In Abbildung 4.9 sind die ordentlichen Brechungsindizes für die Frequenzen ω und 2ω sowie der außerordentliche Brechungsindex für die Frequenz ω in Abhängigkeit vom Winkel Θ in ein Polardiagramm eingezeichnet. Die Bedingung für Phasenanpassung ist gegeben, wenn die Einfallsrichtung der im Diagramm mit k gekennzeichneten entspricht. Dann erzeugt der außerordentliche Strahl einen phasengepassten ordentlichen Strahl mit der doppelten Frequenz. Das bedeutet, dass Fundamentale und zweite Harmonische senkrecht zueinander polarisiert sind. In Formeln ausgedrückt:

$$n_o(2\omega) = n_e(\omega, \Theta) \quad (4.27)$$

$$\sin^2 \Theta = \frac{\frac{1}{n_o^2(\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)}}{\frac{1}{n_o^2(\omega)} - \frac{1}{n_e^2(\omega)}} \quad (4.28)$$

Um das zu ermöglichen, muss außerdem gelten (Abbildung 4.10):

$$n_e(\omega) \geq n_o(2\omega) \quad (4.29)$$

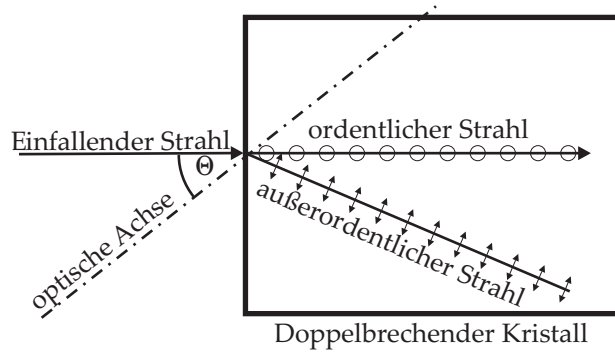


Abbildung 4.8: Doppelbrechung in einem Kristall, schematisch

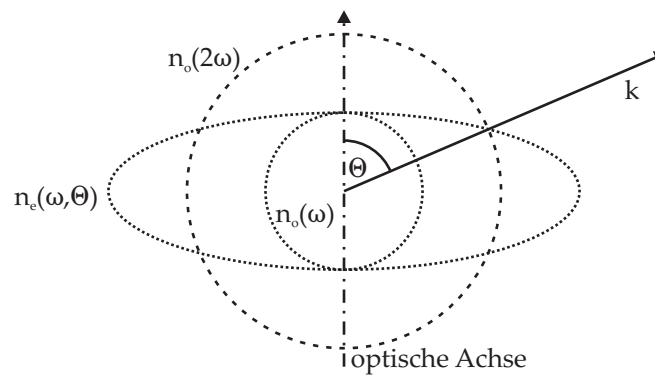


Abbildung 4.9: Phasenanpassung in einem positiv einachsigen Kristall

Ein klassischer positiv einachsiger Kristall ist zum Beispiel das Quarz.

4.4.3 Negativ einachsiger Kristall

Im negativ einachsigen Kristall gilt:

$$n_e(\omega) < n_o(\omega) \quad (4.30)$$

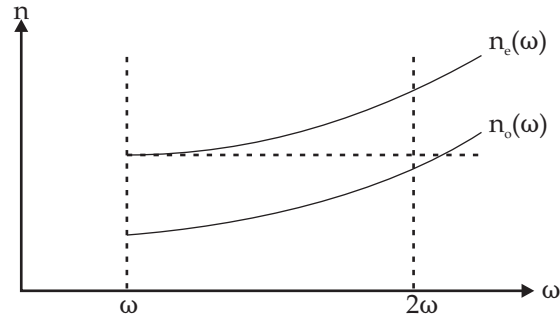


Abbildung 4.10: Ordentlicher und außerordentlicher Brechungsindex in Abhängigkeit von der Frequenz für Phasenanpassung im positiv einachsigen doppelbrechenden Kristall

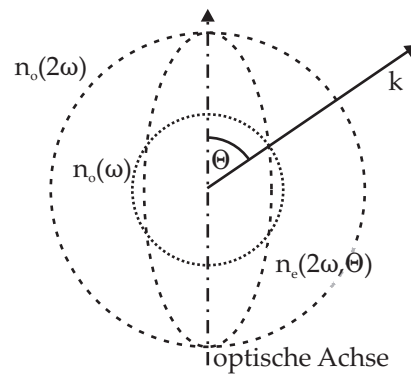


Abbildung 4.11: Phasenanpassung in einem positiv einachsigen Kristall

Das Polardiagramm für Phasenanpassung in diesem Fall ist in Abbildung 4.11 gezeigt. In diesem Fall erzeugt der ordentliche Strahl mit der Frequenz ω die zweite Harmonische als außerordentlichen Strahl. Es folgt

eine ähnliche Beziehung für den Winkel Θ :

$$\sin^2 \Theta = \frac{\frac{1}{n_o^2(\omega)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega)}}{\frac{1}{n_e^2(\omega)} - \frac{1}{n_o^2(\omega)}} \quad (4.31)$$

Außerdem muss gelten:

$$n_e(s\omega) \leq n_o(\omega) \quad (4.32)$$

Ein Beispiel für einen negativ einachsigen Kristall ist BBO (Beta-Barium-Borid). Für eine Verdopplung von $\lambda = 496 \text{ nm}$ auf $\frac{\lambda}{2} = 248 \text{ nm}$ sind die Brechungsindizes:

$$\begin{aligned} n_o(496 \text{ nm}) &= 1,6778 & n_o(248 \text{ nm}) &= 1,7802 \\ n_e(496 \text{ nm}) &= 1,5572 & n_e(248 \text{ nm}) &= 1,6271 \end{aligned}$$

Da $n_e(248 \text{ nm}) < n_o(496 \text{ nm})$, ist dieses Material phasenanpassbar. Es folgt für den Winkel, bei dem Phasenanpassung erfolgt:

$$\Theta = 53,03^\circ$$

4.4.4 Anwendungsgrenzen

Generell benötigen Materialien für die SHG einige Eigenschaften: \bar{d} sollte möglichst groß sein; Phasenanpassung sollte möglich sein; Das Material sollte sowohl bei ω als auch bei 2ω transparent sein. Es gibt jedoch noch ein paar weitere Beschränkungen, was die Ausmaße des Kristalls betrifft. Diese werden hier im folgenden kurz angerissen.

Räumlicher Walk-off

Im phasengepassten Material werden sich die Fundamentale und die zweite harmonische aufgrund der Doppelbrechung in unterschiedliche Richtungen ausbreiten. Daher wird die zweite Harmonische nur auf einer bestimmten Länge verstärkt (Abbildung 4.12). Diesen Effekt nennt man räumlichen Walk-off.

Der Walk-off-Winkel δ errechnet sich zu:

$$\tan \delta = \frac{(n_o^2 - n_e^2) \tan \Theta}{n_e^2 + n_o^2 \tan^2 \Theta} y \quad (4.33)$$

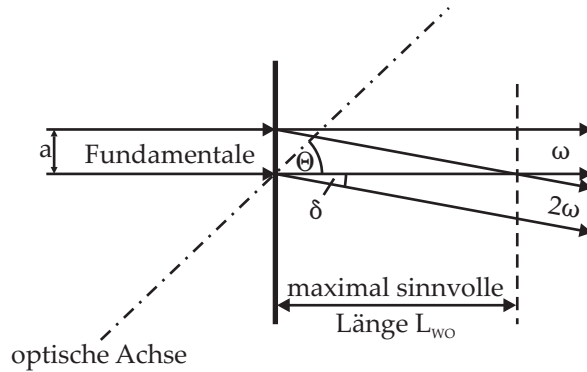


Abbildung 4.12: Räumlicher Walk-off, schematisch für einen negativ einachsigen Kristall: Die Fundamentale (ω) mit der Breite a und die zweite Harmonische (2ω) breiten sich in unterschiedliche Richtungen aus. Die erzeugte zweite Harmonische wird nur auf der Länge L_{WO} verstärkt.

Da dieser Winkel meist klein ist, gilt für die Walk-off-Länge:

$$l_{WO} \approx \frac{a}{\delta} \quad (4.34)$$

Eine Verlängerung des Kristalls resultiert nicht mehr in einer Intensitätsteigerung, sondern nur noch in einer Verbreiterung des Strahls der zweiten Harmonischen.

Akzeptanzwinkel

Der einfallende, gebündelte Strahl hat eine endliche Apertur. Die äußeren Bereiche der Fundamentalen sind daher nicht mehr phasenangepasst. Damit sie trotzdem noch einen Beitrag liefern, sollte der Kristall zu kurz für Auslöschung durch Phasenfehlانpassung sein (Abbildung 4.13). Diese Bedingung lautet in Formeln:

$$\Delta k \cdot l_a = k \cdot l_a \cdot \Delta \Theta \quad (4.35)$$

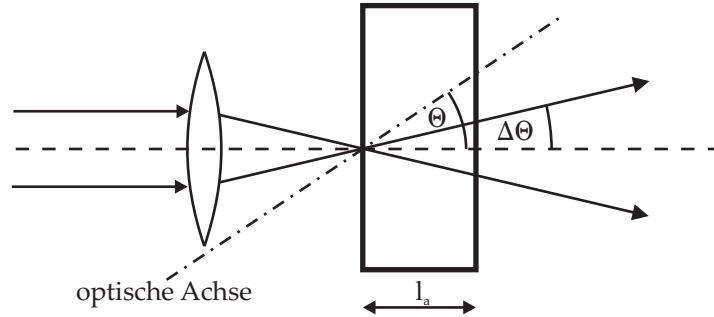


Abbildung 4.13: Akzeptanzwinkel, schematisch; Siehe Text

Damit folgt für den Akzeptanzwinkel des Kristalls, bei dem noch Verstärkung der zweiten Harmonischen auftritt:

$$\Delta\Theta = \frac{\lambda_\omega / l_a}{n_o^2(\omega) [n_e^{-2}(2\omega) - n_o^{-2}(2\omega)] \sin 2\Theta} \quad (4.36)$$

Zeitlicher Walk-off

In phasenangepassten Materialien sind zwar die Phasengeschwindigkeiten der Fundametalen und der zweiten Harmonischen identisch, nicht jedoch die Gruppengeschwindigkeiten v_g . Das führt dazu, dass bei kurzen Pulsen ($\tau_{Puls} \lesssim \text{ps}$) die Fundamentale der anfangs erzeugten zweiten Harmonischen davonläuft und sie nach einer gewissen Länge nicht mehr verstärkt.

Für die Laufzeiten gilt:

$$t_{\omega, 2\omega} = \frac{l_{ZW}}{v_g(\omega, 2\omega)} \quad (4.37)$$

Der Laufzeitunterschied ergibt sich damit zu:

$$\Delta t = t_{2\omega} - t_\omega = l_{ZW} \cdot \frac{1}{v_g(2\omega)} - \frac{1}{v_g(\omega)} \quad (4.38)$$

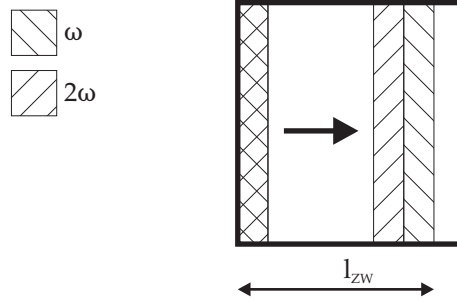


Abbildung 4.14: Zeitlicher Walk-off, schematisch. Ein kurzer Puls läuft auf der Länge l_{ZW} der erzeugten zweiten Harmonischen davon und trägt danach nicht mehr zur Verstärkung bei.

Um den zeitlichen Walk-off zu vermeiden muss nun gelten:

$$\Delta t \leq \tau_{Puls} \quad (4.39)$$

Damit folgt für die Walk-off-Länge:

$$l_{ZW} \leq \frac{\tau_{Puls}}{\frac{1}{v_g(2\omega)} - \frac{1}{v_g(\omega)}} \quad (4.40)$$

Eine Verlängerung des Kristalls führt dann nicht mehr zu einer Verstärkung der Intensität der zweiten Harmonischen, nur noch zu einer Verlängerung des erzeugten Pulses.

Unkritische Phasenanpassung - noncritical phasematching

Der räumliche Walk-off kann vermieden werden, wenn es gelingt, Phasenanpassung bei einem Einfallswinkel von $\Theta = 90^\circ$ zu erreichen. Dies ist jedoch nur möglich, wenn folgende Bedingung erfüllt ist:

$$\begin{aligned} n_e(\omega) &= n_o(2\omega) & \text{positiv einachsig} \\ n_o(\omega) &= n_e(2\omega) & \text{negativ einachsig} \end{aligned} \quad (4.41)$$

Kapitel 5

Drei-Wellen-Mischung

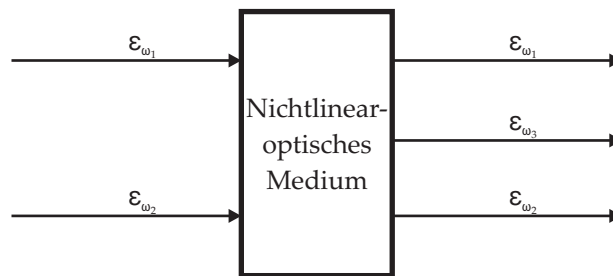


Abbildung 5.1: Dreiwellenmischung

Der grundlegende Sachverhalt der Drei-Wellen ist in Abbildung 5.1 dargestellt: Zwei elektromagnetische Wellen ϵ der Frequenzen ω_1 und ω_2 werden in ein nichtlinear-optisches Medium eingestrahlt. Darin wird eine elektromagnetische Welle mit der Frequenz ω_3 erzeugt.

Die eingestrahlte Welle hat die Form (Ausbreitung in z-Richtung, in x-Richtung polarisiert):

$$E(z, t) = \frac{1}{2} [\epsilon_1(z) \cdot e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + \text{c.c.}] + \frac{1}{2} [\epsilon_2(z) \cdot e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + \text{c.c.}] \quad (5.1)$$

Dabei gilt für die Wellenzahl k :

$$k_j = \frac{n(\omega_j) \cdot \omega_j}{c} \quad \text{mit } j = 1, 2, 3 \quad (5.2)$$

Als Ansatz wird nun wieder das Modell des anharmonisch gebundenen Elektrons genutzt und die Schwingungsgleichung aufgestellt:

$$\ddot{x} + \omega_0^2 x + ax^2 = \frac{e}{m} E(z, t) \quad (5.3)$$

Die Rechnung verläuft nun analog zu der zur Frequenzverdopplung und soll hier nicht noch einmal in der Ausführlichkeit hingeschrieben werden. Die Vorgehensweise ist wieder folgende:

- Störungsrechnung für den harmonischen Oszillator
- Durch den quadratischen Ter ergeben sich gemischte Terme in den Frequenzen
- Diese sind Produkte von Exponentialtermen
- Die Frequenzen als Argumente Der Exponentialterme werden addiert bzw. subtrahiert.

Damit ergibt sich eine Lösung der Form

$$x \sim e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} + e^{-i(\omega_1-\omega_2)t} + \text{c.c.} \quad (5.4)$$

Das bedeutet das Felder mit Frequenzen $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$ erzeugt werden. Durch gewählte Phasen Anpassung kann auch nur eines der beiden Felder ausgewählt werden.

5.1 MANLEY-ROWE-Relation

Im Folgenden soll zunächst nur die Summenfrequenzerzeugung betrachtet werden. Die Berechnungen kann man unter Beachtung der jeweiligen Vorzeichen auch für die Erzeugung der Differenzfrequenz anwenden.

Die Welle mit der Summenfrequenz hat die Form:

$$E_3 = [\varepsilon_3(z)e^{-i(\omega_3 t - k_e z)} + \text{c.c.}] \quad (5.5)$$

Für drei Felder im Kristall nimmt die Grundgleichung der linearen Optik (Gleichung 3.16) folgende Form an:

$$\frac{\partial^2 E_3}{\partial t^2} - \frac{n(\omega_3)}{c^2} \frac{\partial^2 E_3}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (P_1^{(NL)} + P_2^{(NL)}) \quad (5.6)$$

Hierbei ist $P_1^{(NL)} \propto E_1$ und $P_2^{(NL)} \propto E_2$. Wendet man nun noch die SVEA an, so bekommt man ein System aus drei Gleichungen:

$$\frac{d\varepsilon_1}{dz} = \frac{i\omega_1}{n(\omega_1)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \bar{d} \cdot \varepsilon_2^* \varepsilon_3 \cdot e^{-i\Delta k z} \quad (5.7)$$

$$\frac{d\varepsilon_2}{dz} = \frac{i\omega_2}{n(\omega_2)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \bar{d} \cdot \varepsilon_1^* \varepsilon_3 \cdot e^{-i\Delta k z} \quad (5.8)$$

$$\frac{d\varepsilon_3}{dz} = \frac{i\omega_3}{n(\omega_3)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \bar{d} \cdot \varepsilon_1 \varepsilon_2 \cdot e^{+i\Delta k z} \quad (5.9)$$

$$\text{Mit } \Delta k = k_1 + k_2 - k_3 \quad (5.10)$$

Offensichtlich sind alle drei Wellen miteinander gekoppelt.

Will man nun die Intensitäten betrachten, benötigt man das Betragsquadrat der jeweiligen Feldstärken. Für die Ableitungen gilt jedoch:

$$\frac{d|\varepsilon_i|^2}{dz} = \frac{d\varepsilon_i}{dz} \varepsilon_i^* + \frac{d\varepsilon_i^*}{dz} \varepsilon_i \quad (i = 1, 2, 3) \quad (5.11)$$

Multipliziert man nun 5.7 mit ε_1^* , 5.8 mit ε_2^* sowie 5.9 mit ε_3^* und addiert jeweils das komplex konjugierte dazu, so erhält man folgende drei Gleichungen:

$$\frac{1}{\omega_1} n(\omega_1) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{d\varepsilon_1}{dz} \varepsilon_1^* + \frac{d\varepsilon_1^*}{dz} \varepsilon_1 \right) = \bar{d} \cdot (i \varepsilon_2^* \varepsilon_3 \varepsilon_1^* e^{-i\Delta k z} - i \varepsilon_2 \varepsilon_3^* \varepsilon_1 e^{i\Delta k z}) \quad (5.12)$$

$$\frac{1}{\omega_2} n(\omega_2) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{d\varepsilon_2}{dz} \varepsilon_2^* + \frac{d\varepsilon_2^*}{dz} \varepsilon_2 \right) = \bar{d} \cdot (i \varepsilon_1^* \varepsilon_3 \varepsilon_2^* e^{-i\Delta k z} - i \varepsilon_1 \varepsilon_3^* \varepsilon_2 e^{i\Delta k z}) \quad (5.13)$$

$$\frac{1}{\omega_3} n(\omega_3) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \left(\frac{d\varepsilon_3}{dz} \varepsilon_3^* + \frac{d\varepsilon_3^*}{dz} \varepsilon_3 \right) = \bar{d} \cdot (i \varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3^* e^{i\Delta k z} - i \varepsilon_1^* \varepsilon_2^* \varepsilon_3 e^{-i\Delta k z}) \quad (5.14)$$

Identifiziert man nun die drei rechten Seiten miteinander und führt einen zusätzlichen Faktor $\frac{1}{2}$ ein, so erhält man dadurch die MANLEY-ROWE-Relation:

$$\boxed{\frac{1}{\omega_1} \frac{d}{dz} \left(n(\omega_1) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_1|^2 \right) = \frac{1}{\omega_2} \frac{d}{dz} \left(n(\omega_2) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_2|^2 \right) = -\frac{1}{\omega_3} \frac{d}{dz} \left(n(\omega_3) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_3|^2 \right)} \quad (5.15)$$

Um diese Gleichungen interpretieren zu können, werden die einzelnen Terme in einer etwas anderen Form aufgeschrieben:

$$\frac{1}{2} n(\omega_i) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_i|^2 = \frac{1}{2} \epsilon_0 \epsilon_r |\varepsilon_i|^2 \cdot \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \epsilon_0 \epsilon_r}} \quad (5.16)$$

Hierbei wurde die Relation $n = \sqrt{\epsilon_r}$ benutzt. Der erste Faktor stellt offensichtlich eine Energiedichte dar, während der zweite Term die Lichtgeschwindigkeit im Medium ist. Das Produkt der beiden ist offenbar eine Energiestromdichte, also eine Intensität. Für die Intensität einer elektromagnetischen Welle gilt aber bei quantenmechanischer Betrachtung (Mit der Photonendichte n):

$$I = n \cdot \hbar \cdot \omega \cdot c \quad (5.17)$$

Damit kann man Gleichung 5.15 einfach schreiben als:

$$\frac{dn_1}{dz} = \frac{dn_2}{dz} = -\frac{dn_3}{dz} \quad (5.18)$$

Oder mit der Photonenzahl in einem gegebenen Volumen ($N = n \cdot V$):

$$\frac{dN_1}{dz} = \frac{dN_2}{dz} = -\frac{dN_3}{dz} \quad (5.19)$$

Diese Gleichung ist einfach zu interpretieren: Offensichtlich wird entlang der z-Achse ein ω_3 -Photon aus einem ω_1 -Photon und einem ω_2 -Photon erzeugt.

5.1.1 Frequenzverdopplung und Effizienz

Anmerkung: Frequenzverdopplung ist kein Spezialfall der Drei-Wellen-Mischung¹. Für die SHG bekommen die Gleichungen 5.7 bis 5.9 die Form:

$$\frac{d\varepsilon_\omega}{dz} = \frac{i\omega}{n(\omega)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \bar{d} \cdot \varepsilon_\omega^* \varepsilon_{2\omega} e^{i\Delta k z} \quad (5.20)$$

$$\frac{d\varepsilon_{2\omega}}{dz} = \frac{i\omega}{n(2\omega)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \cdot \bar{d} \cdot \varepsilon_\omega^2 e^{i\Delta k z} \quad (5.21)$$

$$\text{Mit } \Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega} \quad (5.22)$$

Daraus folgt die MANLEY-ROWE-Relation für die SHG:

$$\frac{1}{\omega} \frac{d}{dz} \left(n(\omega) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_\omega|^2 \right) = -2 \frac{1}{2\omega} \frac{d}{dz} \left(n(2\omega) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_{2\omega}|^2 \right) \quad (5.23)$$

Die Herleitung der Ausbreitungsgleichung für SHG ist etwas länglich und kann z.B. im Mills nachgelesen werden. Ein wesentlicher Ansatz dabei ist die Einführung einer effektiven Länge l in Gleichung 5.21:

$$\frac{d\varepsilon_{2\omega}}{dz} = i \underbrace{\frac{\omega}{n(2\omega)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \bar{d}}_{\text{Einheit: 1/Länge}} \varepsilon_\omega \cdot \varepsilon_\omega e^{i\Delta k z} \quad (5.24)$$

$$\Rightarrow \frac{1}{l} = \frac{\omega}{n(2\omega)} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \bar{d} \varepsilon_\omega(0) \quad (5.25)$$

Daraus folgt nach längerer Rechnung die Ausbreitungsgleichung für die zweite Harmonische (bei perfekter Phasenanpassung):

$$\boxed{\varepsilon_{2\omega}(z) = i \varepsilon_\omega(0) \tanh\left(\frac{z}{l}\right)} \quad (5.26)$$

(Siehe Abbildung 5.2)

Für den Wirkungsgrad gilt demnach:

$$\eta_{SHG} = \frac{|\varepsilon_{2\omega}|^2}{|\varepsilon_\omega|^2} = \tanh^2\left(\frac{z}{l}\right) \xrightarrow{\frac{z}{l} \ll 1} \frac{z^2}{l^2} \propto \bar{d}^2 \varepsilon_\omega(0)^2 z^2 \quad (5.27)$$

¹Siehe auch Milonny&Eberly

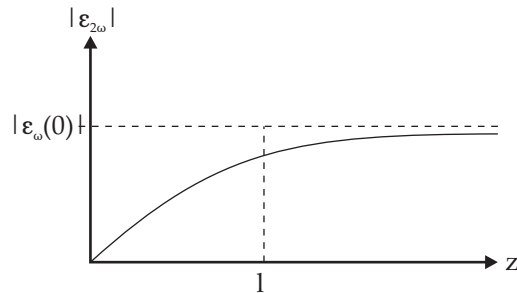


Abbildung 5.2: Feldstärke der zweiten Harmonischen in Abhängigkeit der z -Position. Bei $z = l$ hat die erzeugte Feldstärke ca. 76% der eingestrahnten Feldstärke erreicht.

Für sehr große effektive Längen l , entsprechend sehr kleinen Effizienzen \bar{d} , erhält man die schon früher abgeleitete Abhängigkeit von z^2 .

Bei sehr großen Längen gilt:

$$\eta_{SHG} \xrightarrow{z \rightarrow \infty} 1 \quad (5.28)$$

Das bedeutet, dass in einem genügend langen Kristall jedes eingestrahlte Photon der Frequenz ω im Verhältnis 2:1 in ein Photon der Frequenz 2ω umgewandelt wird.

Die Länge l liegt typischerweise im Bereich cm. Die Intensität frequenzverdoppelter Photonen hängt proportional von der Stärke des eingestrahnten Feldes $\varepsilon_{\omega}(0)$ ab. Diese ist im Allgemeinen durch die Zerstörschwelle des benutzten Materials begrenzt.

Kapitel 6

Nichtlineare Suszeptibilitäten, Nichtlineare Materialien und praktische Aspekte

6.1 MILLER'sche Regel

Zunächst noch einmal eine kurze Wiederholung. Es galt für den ungedämpften Oszillator (Gleichung 1.36):

$$\chi(\omega) = \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \quad (6.1)$$

$$\chi(2\omega) = \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - 4\omega^2} \quad (6.2)$$

Mit der Plasmafrequenz (Gleichung 1.37):

$$\omega_p^2 = \frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e} \quad (6.3)$$

Für die SHG galt (Gleichung 4.16):

$$I_{2\omega}(L) = 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \frac{\omega^2 \bar{d}^2}{n^2(\omega) n(2\omega)} I_\omega^2(0) L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} \quad (6.4)$$

Mit dem nichtlinear optischen Koeffizienten (Gleichung 4.19):

$$\bar{d} = \frac{n_e a e^3}{2m^2(\omega_0^2 - 4\omega^2)(\omega_0^2 - \omega^2)^2} \quad (6.5)$$

Damit kann man den Koeffizienten schreiben als:

$$\bar{d} = \frac{m_e a \epsilon_0^3}{2 n_e^2 e^3} \chi^2(\omega) \chi(2\omega) \quad (6.6)$$

Oder:

$$\bar{d} = \frac{m_e a \epsilon_0^3}{2 n_e^2 e^3} (n^2(\omega) - 1)^2 (n^2(2\omega) - 1) \quad (6.7)$$

Daraus folgt direkt die MILLER'sche Regel: Große lineare Suszeptibilitäten erzeugen große nichtlineare Koeffizienten.

6.2 Symmetrien

Es wird nun eine neue Notation ähnlich Gleichung 1.3 eingeführt, in der die Nichtlineare Polarisation linear von den beiden eingestrahnten Feldern sowie von einer Suszeptibilität zweiter Ordnung abhängt. Für die Summenfrequenzerzeugung ($0 = -\omega_3 + \omega_1 + \omega_2$) ergibt sich:

$$P^{(NL)}(\omega_3) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_3, \omega_1, \omega_2) \cdot \varepsilon(\omega_1) \varepsilon(\omega_2) \quad (6.8)$$

Beziehungsweise für die Differenzfrequenzerzeugung ($\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$):

$$P^{(NL)}(\omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(-\omega_2, -\omega_1, \omega_3) \cdot \varepsilon^*(\omega_1) \varepsilon(\omega_3) \quad (6.9)$$

Zuerst steht das erzeugte Feld mit negativem Vorzeichen, danach die eingestrahnten Felder mit positivem Vorzeichen bei Vernichtung und negativem Vorzeichen bei Erzeugung. Dabei gilt:

$$\varepsilon(-\omega_i) = \varepsilon^*(\omega_i) \quad (6.10)$$

Außerdem gilt z.B. für Differenzfrequenzerzeugung:

$$P^{(NL)}(\omega_2) = 2\bar{d} \cdot \varepsilon^*(\omega_1) \varepsilon(\omega_3) \quad (6.11)$$

Das bedeutet:

$$\bar{d} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} \quad (6.12)$$

Hier noch eine kurze Einheiten- und Größenbetrachtung:

$$\begin{aligned}
[\bar{d}] &= \frac{\text{As}}{V^2} & [\epsilon_o] &= \frac{\text{As}}{V_m} \\
\Rightarrow [\chi] &= \frac{\text{As}}{V^2} \cdot \frac{V_m}{\text{As}} = \frac{\text{m}}{V} \\
\bar{d} &\approx 10^{-22} \frac{\text{As}}{V^2} \\
\Rightarrow \chi^{(2)} &\approx 10^{-22} \frac{\text{As}}{V^2} \cdot \frac{2}{8.85 \cdot 10^{-12}} \frac{V_m}{\text{As}} \approx 10^{-11} \frac{\text{m}}{V} = 10 \frac{\text{pm}}{V}
\end{aligned}$$

In der Literatur findet man auch oft Werte in esu-Einheiten. Die Umrechnung erfolgt in folgender Weise:

$$\chi(\text{SI}) = \frac{4\pi}{3 \cdot 10^4} \chi(\text{esu})$$

Des Weiteren soll nun auch noch der Tensorcharakter der Suszeptibilität berücksichtigt werden:

$$P_i^{(NL)}(\omega_3) = \epsilon_0 \chi_{ijk} \epsilon_i(\omega_1) \epsilon_j(\omega_2) \quad (6.13)$$

Die i, j, k bezeichnen dabei jeweils eine der drei Raumkomponenten der Vektoren, außerdem gilt hier die EINSTEIN'sche Summenkonvention. Der Tensor $\underline{\underline{\chi}}$ hat demnach 27 Komponenten. Es sind allerdings noch einige Symmetrie-Eigenschaften anwendbar, die die Komponentenzahl reduzieren können.

6.2.1 Permutationssymmetrie

Da die Nummerierung der eingestrahlten Felder willkürlich ist, können der zweite und dritte Index vertauscht werden:

$$\chi_{ijk}(-\omega_A, \omega_B, \omega_C) = \chi_{ijk}(-\omega_A, \omega_B, \omega_C) \quad (6.14)$$

$$\rightarrow \chi_{ijk} = \chi_{ikj} \quad (6.15)$$

Durch die Permutationssymmetrie wird die Anzahl der Komponenten der Suszeptibilität auf 18 gesenkt.

6.2.2 KLEINMANN-Symmetrie

Die KLEINMANN-Symmetrie geht von transparenten Materialien aus, in denen χ sehr wenig von der Wellenlänge, aber sehr stark von der Richtung

abhängt. Das bedeutet, dass der Wert von χ_{ijk} für jede Permutation von i, j und k der selbe ist, also:

$$\chi_{ijk} = \chi_{ikj} = \chi_{jik} = \chi_{jki} = \chi_{kij} = \chi_{kji} \quad (6.16)$$

Die KLEINMANN-Symmetrie beinhaltet die Permutationssymmetrie bereits. Die Anzahl unabhängiger Komponenten beträgt bei dieser Symmetrie nur noch 10.

Diese beiden Symmetrien sollen nun am Beispiel der SHG angewendet werden. Für den nichtlinear optischen Koeffizienten gilt:

$$\bar{d}_{ijk} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{ijk} \quad (6.17)$$

Mit der Permutationssymmetrie gilt:

$$\bar{d}_{ijk}(-2\omega, \omega, \omega) = \bar{d}_{ikj}(-2\omega, \omega, \omega) \quad (6.18)$$

Schreibt man nun Gleichung 6.13 in Matrixform auf, so erhält man:

$$\begin{pmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_z(\omega)E_x(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{pmatrix} \quad (6.19)$$

Dabei wurde die Notation von VOIGT, bei der die letzten beiden Indizes zu einem zusammengefasst werden. Das ist möglich, da sie ja vertauschbar sind. Der Zusammenhang zwischen der normalen und der VOIGT'schen Indizierung ist:

$$d_{ijk} = d_{i\lambda} \quad \text{mit } \lambda = \begin{cases} j & j = k \\ 9 - (j + k) & j \neq k \end{cases} \quad (6.20)$$

Die KLEINMANN-Symmetrie identifiziert nun noch Elemente dieser 3×6 -Matrix miteinander, z.B.:

$$d_{16} = d_{112} = d_{121} = d_{211} = d_{21} \quad (6.21)$$

Die daraus resultierende Gleichung mit 10 unabhängigen Komponenten (fett) hat nun die Form:

$$\begin{pmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{d}_{11} & \mathbf{d}_{12} & \mathbf{d}_{13} & \mathbf{d}_{14} & \mathbf{d}_{15} & \mathbf{d}_{16} \\ d_{16} & \mathbf{d}_{22} & \mathbf{d}_{23} & \mathbf{d}_{24} & d_{14} & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & \mathbf{d}_{33} & d_{23} & d_{13} & d_{14} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_z(\omega)E_x(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{pmatrix} \quad (6.22)$$

6.2.3 Kristallsymmetrie

Eine weitere Reduktion der Komponentenzahl ist durch die Anwendung des NEUMANN'schen Prinzips möglich. Dieses besagt, dass eine Kristalleigenschaft mindestens die Symmetrie des Kristalls aufweisen muss. Je höher die Symmetriegruppe des Kristalls ist, desto höher muss auch die der Suszeptibilität sein. Dafür hier ein Beispiel: Lithiumniobat (LiNbO_3) ist ein häufig für die SHG benutztes Material. Es hat die Symmetrie der Punktgruppe 3m. Der Suszeptibilitätstensor zweiter Stufe wird dann:

$$d_{i\lambda} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.23)$$

In Abbildung 6.1 sind die Beziehungen für weitere Punktgruppen angegeben.

6.2.4 Tensorkomponenten und Phasenanpassung

Für den einfallenden Strahl kann man zwei Winkel festlegen: θ bezeichnet den Winkel zwischen dem Wellenvektor \underline{k} und der optischen Achse (z-Achse). Φ bezeichnet den Winkel zwischen \underline{k} und der x-z-Ebene. Wir betrachten nun LiNbO_3 mit Phasenanpassung Typ I ($E(2\omega) \parallel E(\omega)$).

Zunächst soll der Spezialfall $\Phi = 0$ betrachtet werden, dass heißt die einfallende Welle ist in der x-z-Ebene polarisiert (Abbildung 6.2).

Für die nichtlineare Polarisation bei der SHG galt (Gleichung 4.19):

$$P^{(NL)} = \bar{d} \varepsilon^2 \quad (6.24)$$

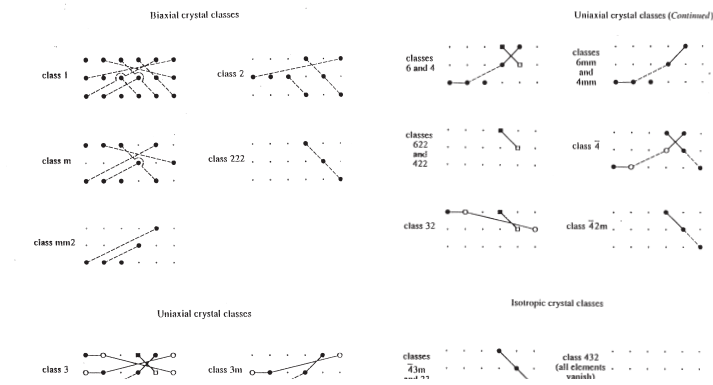


Abbildung 6.1: Struktur der Koeffizientenmatrix verschiedener Symmetrieklassen. Punkte bezeichnen verschwindende Komponenten; Vierecke bezeichnen unter KLEINMANN-Symmetrie verschwindende Komponenten; Verbundene Symbole bezeichnen Koeffizienten mit gleichem Wert, allerdings hat das offene Symbol das umgekehrte Vorzeichen des geschlossenen Symbols. Gestrichelte Verbindungen gelten nur unter KLEINMANN-Symmetrie. Aus: Boyd

Das einfallende Feld hat die Form:

$$E = \varepsilon \begin{pmatrix} \cos \theta \\ 0 \\ \sin \theta \end{pmatrix} \quad (6.25)$$

Dann gilt für die Polarisation in x-Richtung:

$$P_x = P \cdot \cos \theta = 2d_{31}\varepsilon_x\varepsilon_z - 2d_{22}\varepsilon_x\varepsilon_y \quad (6.26)$$

Der zweite Term verschwindet, und nach Division durch $\cos \theta$ erhält man einen Ausdruck für die gesamte nichtlineare Polarisation:

$$P^{(NL)} = 2d_{31} \sin \theta \varepsilon^2 \quad (6.27)$$

$$\rightarrow \bar{d} = 2d_{31} \sin \theta \quad (6.28)$$

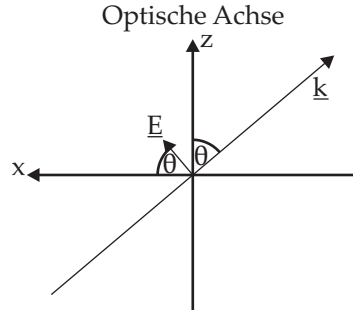


Abbildung 6.2: Einfallender, in der x-z-Ebene polarisierter Strahl

Misst man also in dieser Weise den nichtlinearen Koeffizienten für die SHG, so kann man daraus eine Komponente des Tensors errechnen.

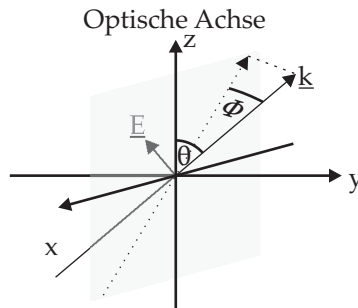


Abbildung 6.3: Einfallender Strahl mit $\Phi \neq 0$

Für den allgemeinen Fall ($\Phi \neq 0$; Abbildung 6.3) gilt für Phasenanpassung Typ I:

$$\bar{d} = 2d_{31} \sin \theta - d_{22} \cos \theta \sin 3\Phi \quad (6.29)$$

Für Phasenanpassung Typ II ($E(2\omega) \perp E(\omega)$) gilt:

$$\bar{d} = d_{22} \cos^2 \theta \cos 3\Phi \quad (6.30)$$

Man wählt also im Allgemeinen die Phasenanpassung, die das größere \bar{d} liefert.

6.3 SHG mit GAUSS'schen Strahlen

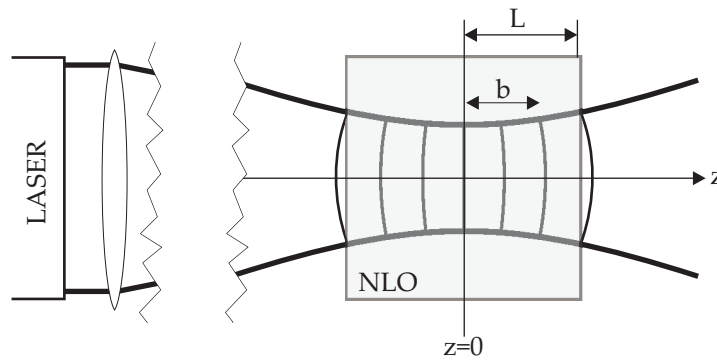


Abbildung 6.4: Ein Laserstrahl wird mit einer mittleren Fokusslänge b in einen nichtlinear-optischen Kristall (NLO) der Länge L fokussiert.

Im allgemeinen besteht ein Laserstrahl, der in ein nichtlinear-optisches Medium fokussiert wird, nicht komplett aus ebenen Wellen. Die Annahme ebener Wellen gilt nur auf einer "Halbwertslänge" b um den Fokus herum (Abbildung 6.4). Die Halbwertslänge ist definiert als:

$$I(b) = \frac{I(0)}{2} \quad (6.31)$$

Je nach Länge L des NLO-Kristalls muss nun ein anderes Wechselwirkungsverhalten berücksichtigt werden.

6.3.1 Schwache Fokussierung

Bei schwacher Fokussierung gilt $b \gg L$. In diesem Fall wird der Kristall durch im Allgemeinen ebene Wellen durchstrahlt. Es gilt der bis jetzt be-

handelte, einfache Fall:

$$P_{2\omega} \propto L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)} P_{\omega}^2 \quad (6.32)$$

6.3.2 Starke Fokussierung

Bei starker Fokussierung gilt $b \ll L$. Bei einem sehr starken, harten Fokus tritt am Nullpunkt ein Phasensprung um π auf ("Gouy-Phase"). Das wirkt sich bei höheren NL-Prozessen immer stärker auf. Mit der Phasenanpassung

$$\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} \quad (6.33)$$

gilt für die nichtlineare Polarisierung (Abbildung 6.5):

$$P_{2\omega} \propto \begin{cases} 0 & \Delta k \leq 0 \\ \pi b e^{-\frac{b\Delta k}{2}} P_{\omega}^2 & \Delta k > 0 \end{cases} \quad (6.34)$$

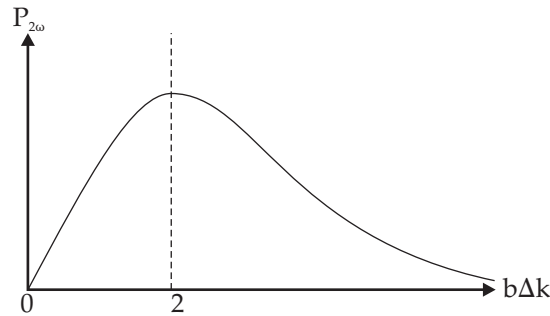


Abbildung 6.5: Nichtlineare Polarisierung in Abhängigkeit vom Produkt der Phasenfehlanpassung und der Halbwertslänge.

Diesen Effekt kann man anschaulich durch die Wellenvektoren begründen (Abbildung 6.6). Bei negativer Phasenfehlanpassung kann keine Impulserhaltung gewährleistet werden. Bei positiver Phasenfehlanpassung kann je nach Geometrie des Strahls allerdings genau Phasenanpassung erfolgen.

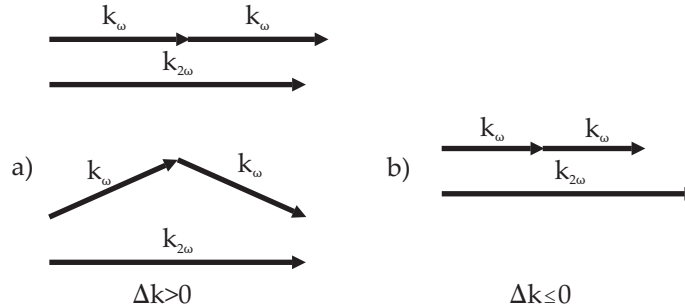


Abbildung 6.6: Mögliche Lage der Wellenvektoren von Fundamentaler und zweiter Harmonischer bei a) positiver und b) negativer Phasenfehlanpassung

6.4 Messung ultrakurzer Pulse - Autokorrelation

Die zweite Harmonische kann verwendet werden, um die Länge ultrakurzer Pulse ($\sim 10^{-15}$ s) zu messen.

6.4.1 Interferometrische Autokorrelation

Interferometrische Autokorrelation 1. Ordnung

Bei der interferometrischen Autokorrelation 1. Ordnung wird der zu messende Puls durch ein Michelson-Interferometer geleitet. Ein schematischer Aufbau ist in Abbildung 6.7 abgebildet, ebenso wie das an der Diode ankommende Signal. Der eingestrahlte Puls hat eine Halbwertsbreite τ_L ¹. Für die Verzögerung gilt (mit der Lichtgeschwindigkeit c):

$$\tau = \frac{L_2 - L_1}{c} \quad (6.35)$$

¹Die Halbwertsbreite ist unterschiedlich bei Betrachtung von Intensitäten beziehungsweise Felder. Es gilt $\tau_{l,\text{Intensität}} = \sqrt{2}\tau_{l,\text{Feld}}$

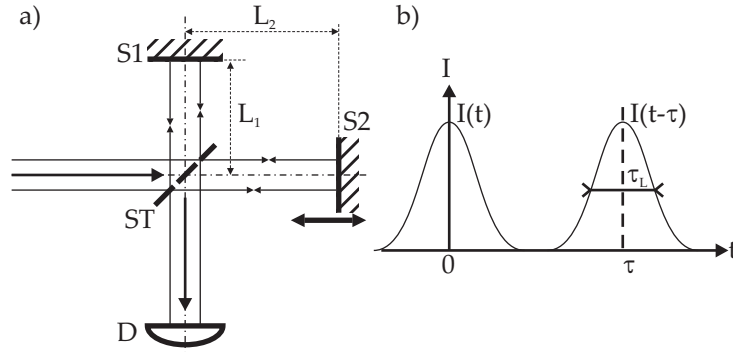


Abbildung 6.7: a) Versuchsaufbau zur Interferometrischen Autokorrelation 1. Ordnung (Michelson-Interferometer). Einfallendes Licht wird durch den Strahlteiler (ST) in zwei Teilstrahlen aufgeteilt. Diese werden an zwei Spiegeln (S1, S2) reflektiert und am Strahlteiler wieder zu einem Strahl zusammengefasst, der zeitaufgelöst in der Photodiode (D) detektiert wird. Ein Spiegel (Hier: S2) ist dabei beweglich montiert. b) Intensitätssignal an der Photodiode für $\tau \gg \tau_L$. Bedeutung der Formelzeichen siehe Text

Für die gesamte, an der Diode ankommende Intensität S gilt:

$$\begin{aligned}
 S_\omega(\tau) &= \int I_{ges}(t, \tau) dt \propto \int (E(t) + E(t - \tau))^2 dt \\
 &\propto \int I(t) dt + \int E(t) \cdot E(t - \tau) dt \quad (6.36)
 \end{aligned}$$

$I(t)$ bezeichnet hierbei die eingestrahlte Intensität ($I(t) \propto E^2(t)$).

Über S_ω kann man demnach nicht die gesamte Pulslänge messen, sondern nur seine Kohärenzlänge, die im Allgemeinen kürzer ist.

Interferometrische Autokorrelation 2. Ordnung

Für die interferometrische Autokorrelation 2. Ordnung wird das Michelson-Interferometer erweitert (Abbildung 6.8).

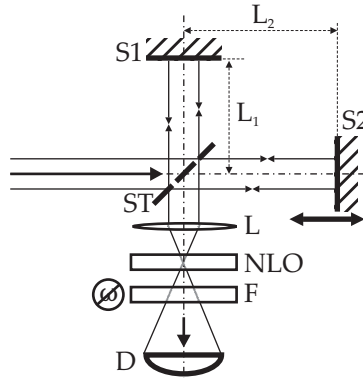


Abbildung 6.8: Versuchsaufbau für die interferometrische Autokorrelation 2. Ordnung: In das Michelson-Interferometer wird noch eine Linse eingefügt, die das Licht in ein nichtlinear optisches Medium fokussiert. Darin wird die zweite Harmonische erzeugt. Im dahinter liegenden Filter wird die Fundamentale absorbiert, sodass das Signal an der Photodiode nur aus der zweiten Harmonischen besteht.

Für die auf der Diode ankommende Gesamtintensität gilt dann:

$$S_{2\omega}(\tau) = \int I_{2\omega}(t, \tau) dt \propto \int E_{2\omega}^2(t, \tau) dt \quad (6.37)$$

Aus z.B. Gleichung 4.16 folgt dann:

$$S_{2\omega}(\tau) \propto \int (E_{\omega}(t) + E_{\omega}(t - \tau))^4 \quad (6.38)$$

Das bedeutet, dass in der Gesamtintensität insgesamt 5 Terme auftauchen, von denen nur einer die Autokorrelation beschreibt. In Bereichen ohne Überlapp ($\tau \gg \tau_L$) gilt:

$$S_{2\omega}(\text{inf}) \propto 2I_{\omega}^2 \propto 2E_{\omega}^4 \quad (6.39)$$

Dies stellt praktisch eine Verschiebung der gesamten $S(\tau)$ -Kurve dar. Im Bereich des Überlapps ($\tau \sim \tau_L$) gehen in die Kurve neben der konstanten Verschiebung modifizierte Interferenzen sowohl von E_{ω} als auch von $E_{2\omega}$ und die Intensitätsautokorrelation ein. Ein Beispiel einer solchen Kurve ist in Abbildung 6.9 abgebildet. Diese Kurven sind im Allgemeinen sehr schwer zu interpretieren.

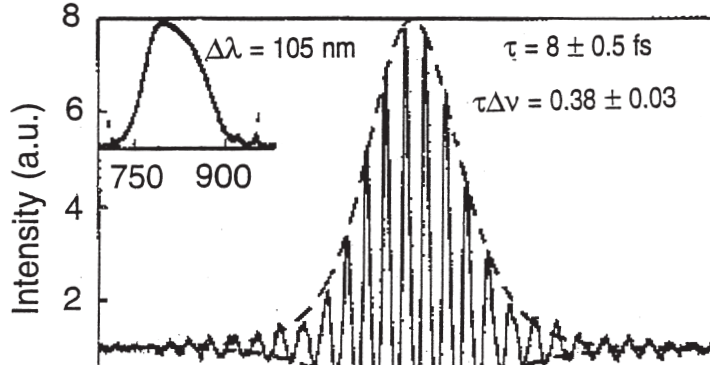


Abbildung 6.9: Ein-Schuss Interferometrische Autokorrelation mit SHG. Bei einem angenommenen Puls der Form sech^2 entspräche diese Messung einer zeitlichen Puls-Halbwertsbreite von 8 fs.

6.4.2 Untergrundfreie Intensitätsautokorrelation

Der Versuchsaufbau für die Untergrundfreie Intensitätsautokorrelation ist in Abbildung 6.10 gezeigt. Für das ankommende Feld gilt dann:

$$E_{2\omega} \propto E(t) \cdot E(t - \tau) \quad (6.40)$$

Für das gesamte Signal gilt dann:

$$S_{2\omega}(\tau) = \int I_{2\omega}(t, \tau) dt \propto \int |E_{\omega}(t) \cdot E_{\omega}(t - \tau)|^2 \propto \int I_{\omega}(t) \cdot I_{\omega}(t - \tau) dt \quad (6.41)$$

Dies ist das reine Autokorrelationssignal, aus dem nun direkt eine Aussage über die Halbwertsbreite des Pulses getroffen werden kann. Es kann jedoch nichts über die Form des Pulses ausgesagt werden. Ein Beispiel für eine Messung ist in Abbildung 6.11 dargestellt.

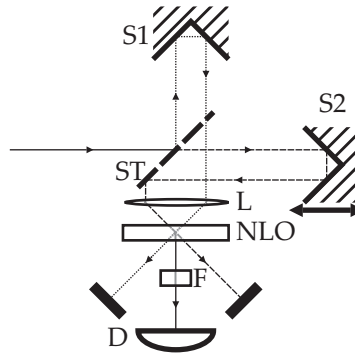


Abbildung 6.10: Versuchsaufbau zur Untergrundfreien Intensitätsautokorrelation. Die beiden Spiegel sind nun Umlenkspiegel, sodass die beiden Teilstrahlen erst im nichtlinearen optischen Medium interferieren können. Auf diese Weise wird Licht nur in signifikanter Menge in Richtung des Detektors gebeugt, wenn auf beiden Seiten gleichzeitig ein Signal vorhanden ist. Außerdem wird wiederum die Fundamentale vor dem Detektor durch einen Filter geblockt

6.5 Quasi-Phasenanpassung

Um die Intensität der SHG zu steigern, gibt es neben der normalen Phasenanpassung auch die Quasi-Phasenanpassung (QPM, Quasi Phase Matching). Nach der Kohärenzlänge $l_c/2$ ist die Fundamentale der zuerst erzeugten zweiten harmonischen um $\pi/2$ phasenversetzt. Ändert sich an dieser Stelle nun das Vorzeichen von \bar{d} , so entspricht das einem Phasensprung der neu erzeugten zweiten Harmonischen um π . Dadurch verstärkt die neu erzeugte zweite Harmonische nun die zuerst Erzeugte, anstatt sie auszulöschen. Der Intensitätsgang ist zusammen mit dem für den phasengepassten und den unangepassten Fall in Abbildung 6.12 dargestellt. Ein Beispiel für die praktische Realisierung von Quasi-Phasenanpassung ist in Abbildung 6.13 gezeigt.

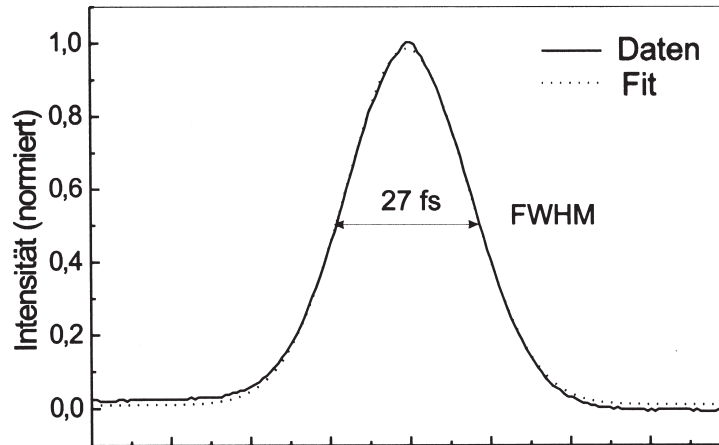


Abbildung 6.11: Messung der Untergrundfreien Intensitätsautokorrelation. Je nach angenommener Form des Pulses beträgt die zeitliche Halbwertsbreite 18 fs (sech^2 -Profil) oder 19 fs (GAUSS-Profil).

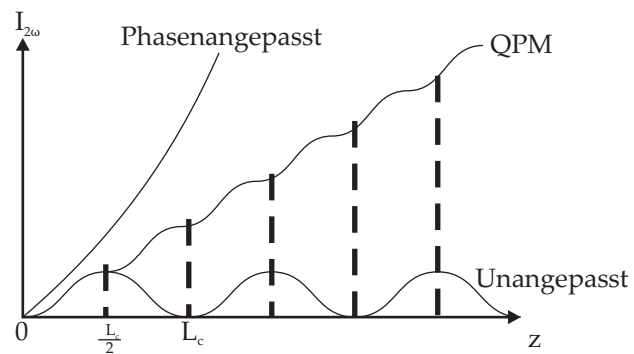


Abbildung 6.12: Intensitätsgang bei Quasi-Phasenanpassung im Vergleich zum phasenangepassten und unangepassten Fall. Bei den dicken, gestrichelten Linien findet ein Vorzeichenwechsel in \bar{d} statt.

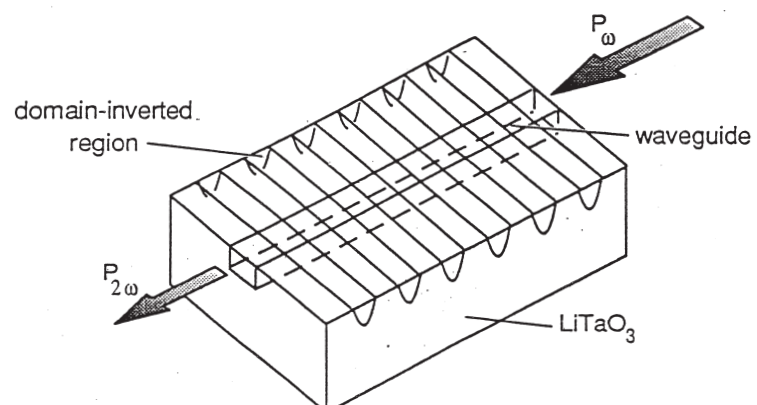


Abbildung 6.13: Struktur eines Quasi-phasenangepassten LiTaO₃-Kristalls für die SHG.

Kapitel 7

Parametrische Verstärkung

7.1 Grundlagen

In Abbildung 7.1 ist ein Experiment zur Differenzfrequenzerzeugung dargestellt. Für diesen Prozess lautet die MANLEY-ROWE-Relation:

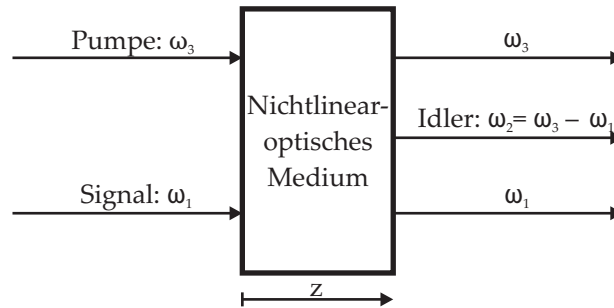


Abbildung 7.1: Differenzfrequenzerzeugung

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{\omega_1} \frac{d}{dz} \left(n(\omega_1) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_1|^2 \right) &= \frac{1}{\omega_2} \frac{d}{dz} \left(n(\omega_2) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_2|^2 \right) \\
 &= - \frac{1}{\omega_3} \frac{d}{dz} \left(n(\omega_3) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\varepsilon_3|^2 \right) \quad (7.1)
 \end{aligned}$$

Die Abnahme in der Pumpe (ω_3) speist sowohl das Signal (ω_1) als auch den Idler (ω_2). Diesen Prozess nennt man *Parametrische Verstärkung*.

Des weiteren soll noch die Non Depleted Pump Approximation (NDP) gelten: Die Intensität der Pumpwelle ist wesentlich größer als die des Signals und des Idlers:

$$I_3 \gg I_1, I_2 \quad (7.2)$$

Das bedeutet, dass die Feldstärke der Pumpe in z-Richtung annähernd konstant ist. Unter der weiteren Annahme der Phasenanpassung gilt nun:

$$\frac{d\varepsilon_1}{dz} = i \left[\frac{\omega_1}{n(\omega_1)} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \bar{d} \varepsilon_3(0) \right] \varepsilon_2^* = i \sqrt{\frac{\omega_1}{\omega_2}} b_1 \varepsilon_2^* \quad (7.3)$$

$$\frac{d\varepsilon_2}{dz} = -i \left[\frac{\omega_2}{n(\omega_2)} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \bar{d} \varepsilon_3^*(0) \right] \varepsilon_1 = -i \sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_1}} b_2^* \varepsilon_1 \quad (7.4)$$

$$(7.5)$$

Mit:

$$b_i := \left(\frac{\omega_1 \omega_2}{n(\omega_i)} \frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \bar{d} \varepsilon_3(0) \quad i = 1, 2 \quad (7.6)$$

Differenziert man diese beiden Gleichungen noch einmal und setzt ein, so erhält man:

$$\boxed{\frac{d^2 \varepsilon_1}{dz^2} = K^2 \varepsilon_1; \quad \frac{d^2 \varepsilon_2}{dz^2} = K^2 \varepsilon_2} \quad (7.7)$$

Mit:

$$K = \left(\frac{\omega_1 \omega_2}{n(\omega_1) n(\omega_2)} \frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \bar{d} |\varepsilon_3(0)| \quad (7.8)$$

Die Einheit von K ist m^{-1} .

Die Anfangsbedingungen für diese Differenzialgleichung lauten:

$$\varepsilon_3(z) \approx \text{const.} > 0 \quad (7.9)$$

$$\varepsilon_1(0) \neq 0; \quad \varepsilon_2(0) = 0 \quad (7.10)$$

Die Lösungen für die Felder lauten dann:

$$\boxed{\varepsilon_1(z) = \varepsilon_1(0) \cosh(K \cdot z)} \quad (7.11)$$

$$\boxed{\varepsilon_2(z) = i \sqrt{\frac{\omega_2}{\omega_1}} \varepsilon_1^*(0) \sinh(K \cdot z)} \quad (7.12)$$

Bzw. für die Intensitäten:

$$I_{\omega_1}(z) = I_{\omega_1}(0) \cosh^2(K \cdot z) \quad \text{Signal} \quad (7.13)$$

$$I_{\omega_2}(z) = \frac{\omega_2}{\omega_1} I_{\omega_1}(0) \sinh^2(K \cdot z) \quad \text{Idler} \quad (7.14)$$

Der Verlauf der Intensitäten ist in Abbildung 7.2 gezeigt.

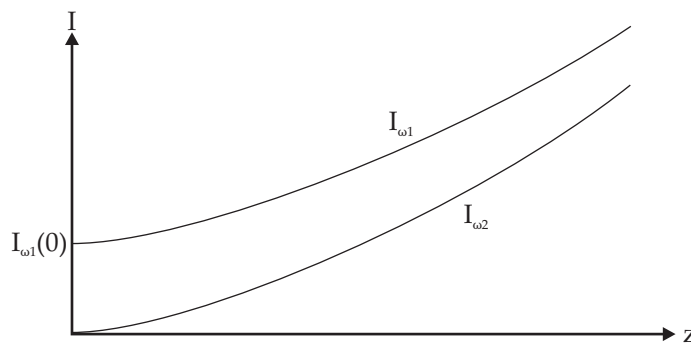


Abbildung 7.2: Verlauf der Intensitäten von Signal und Idler in Abhängigkeit der durchstrahlten Dicke.

7.2 Drei Beispiele

7.2.1 Lithiumniobat - LiNbO_3

Der nichtlineare Koeffizient hat die Größenordnung $\bar{d} = 4 \cdot 10^{-23} \frac{\text{As}}{\text{V}^2}$. Als Pumplaser soll ein NdYAG-Laser¹ dienen. Dieser hat eine Wellenlänge von $\lambda_3 = 1,06 \mu\text{m}$. Damit soll ein frequenzverdoppelter Strahl verstärkt werden. Damit gilt für die Wellenlängen: $\lambda_1 = \lambda_2 = 2\lambda_3 = 2,12 \mu\text{m}$. Die Brechungsindizes in LiNbO_3 sind $n(\omega_1) = n(\omega_2) \approx n(\omega_3) = 1,5$. Der Koeffizient K hat dann einen Wert von $K = 2 \cdot 10^{-4} \cdot \sqrt{\frac{I_3(0)}{\text{W}/\text{cm}^2}} \text{ cm}^{-1}$. Typische

¹In einem NdYAG-Laser dient ein mit Neodym dotierter Yttrium-Aluminium-Granat-Kristall ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) als optisch aktives Medium.

Pumpintensitäten sind $I_{\text{Pump}} \approx 100 \frac{\text{MW}}{\text{cm}^2} = 10^8 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Damit ergibt sich ein K von $\approx 2/\text{cm}$.

In einem Kristall von 2 cm gilt also $K \cdot z \approx 4$. Damit erreicht die Verstärkung einen Wert von $\frac{I_{\omega_1}(2 \text{ cm})}{I_{\omega_1}(0)} \approx \cosh^2(4) \approx \frac{1}{2}e^8 \approx 1500$.

7.2.2 Optical Parametric Chirped Puls Amplification - OPCPA

Der Prozess der Optical Parametric Chirped Puls Amplification verbindet die Methode der CPA (Chirped Puls Amplification) mit der Parametrischen Verstärkung. Er dient dazu, ultrakurze Pulse sehr stark zu verstärken. Das Prinzip ist vereinfacht in Abbildung 7.3 dargestellt.

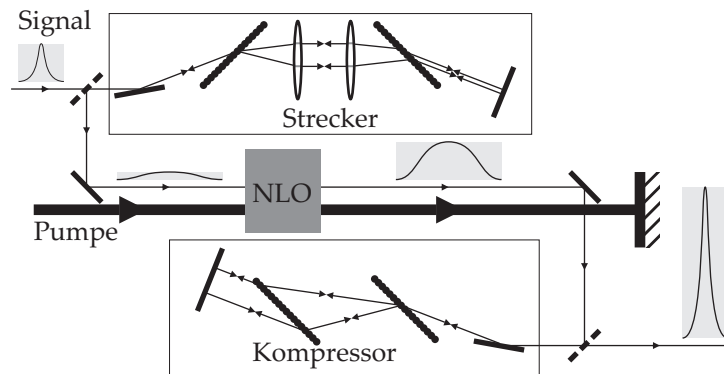


Abbildung 7.3: Schematische Anordnung zur OPCPA (Siehe Text)

Ein ultrakurzer Signalpuls ($\approx \text{fs}$) wird in einer Gitteranordnung ("Strecker") aufgeweitet ("chirped", $\approx \text{ns}$). Er besteht effektiv aus den Pulsen aller vorhandenen Teilfrequenzen, die einzeln immer noch genauso kurz wie der Ausgangspuls sind. Dieser verlängerte Puls wird dann zusammen mit der Pumpwelle in den NLO-Kristall (zum Beispiel BBO) eingekoppelt und über den Prozess der Parametrischen Verstärkung verstärkt. Der Idler wird hierbei zum Beispiel über eine passende Phasen(Fehl)anpassung unterdrückt. Danach wird das verstärkte Signal mittels einer Gitteranord-

nung ("Kompressor") ähnlich dem Strecker wieder komprimiert, sodass am Ende ein ultrakurzer, energieintensiver Puls entsteht.

Der Vorteil liegt hier darin, dass die Pumpwelle über eine längere Zeit Energie in das Signal übertragen kann. Außerdem kann die Zerstörschwelle der Komponenten umgangen werden. Lediglich die Zerstörschwelle des auskoppelnden Halbspiegels stellt noch einen begrenzenden Faktor dar.

7.2.3 Optischer Parametrischer Oszillator - OPO

Das Prinzip des Optischen Parametrischen Oszillators ist in Abbildung 7.4 gezeigt. Über den Winkel des NLO-Kristalls kann man eine Frequenz

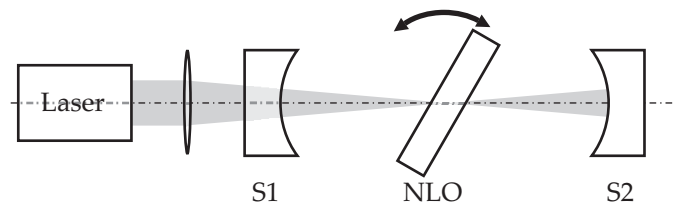


Abbildung 7.4: Optischer Parametrischer Oszillator.
(Siehe Text)

wählen, für die Phasenanpassung gilt. Sobald ein passendes Photon aus der Fluoreszenz erscheint, wird es verstärkt. Über die Eigenschaften der beiden Spiegel (S1, S2) kann man dann die passende Mode auswählen. Damit hat man praktisch einen durchstimbaren Laser.

Kapitel 8

Prozesse dritter Ordnung

8.1 Dritte Harmonische und 4-Wellen-Mischung

Bis jetzt wurde der Fall betrachtet, dass zwei einfallende Wellen eine dritte erzeugen, die Dreiwellenmischung. Datunter fallen die SHG (Pumpe + Pumpe \rightarrow SH), und die Summen- bzw. Differenzfrequenzerzeugung (Pumpe + Signal \rightarrow Idler).

Bei Betrachtung der zentrosymmetrischer als auch nicht zentrosymmetrischer Materialien (Kapitel 2) erkennt man, dass in jedem Medium eine Polarisation dritter Ordnung existiert. Diese tritt natürlich im Allgemeinen erst bei großen Auslenkungen des Elektrons aus der Ruhelage, und damit bei großen Feldstärken auf.

Die Polarisation dritter Ordnung hat zunächst trivialerweise die Form:

$$\underline{P}^{(NL)}(\omega_i) = e n_e m v x^{(3)}(\omega_i) \quad (8.1)$$

Mit der Betrachtung über nichtzentrosymmetrische Medien (Abschnitt 2.2, Gleichung 2.25) kann man schreiben:

$$\boxed{P_i^{(NL)}(\omega_A) = \epsilon_0 \chi_{ijkl}(\omega_A, \omega_B, \omega_C, \omega_D) \varepsilon_j(\omega_B) \varepsilon_k(\omega_C) \varepsilon_l(\omega_D)} \quad (8.2)$$

Dies ist die Nichtlineare Polarisation für die Vierwellenmischung. Dabei bezeichnet jedes der i, j, k, l eine beliebige der drei Raumrichtungen, während die A, B, C, D eine Permutation der vier beteiligten Felder sind. (Vgl. auch Abschnitt 6.2)

Beispiele für 4-Wellenmischung sind:

- Summenfrequenzerzeugung:

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$$

- Dritte Harmonische:

$$\omega_4 = 3\omega$$

Dafür lautet die Polarisation:

$$P^{(NL)}(3\omega, z) = \frac{1}{4}\epsilon_0 \chi(-3\omega, \omega, \omega, \omega) \varepsilon^3(\omega, z) \quad (8.3)$$

- Entartete 4-Wellen-Mischung:

$$\omega_4 = \omega + \omega - \omega$$

In diesem Fall lautet die Polarisation:

$$P^{(NL)}(\omega, z) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \chi(-\omega, \omega, -\omega, \omega) \varepsilon^2(\omega, z) \varepsilon^*(\omega, z) \quad (8.4)$$

Woher kommen die verschiedenen Vorfaktoren? Dafür berachten wir den Fall, dass alle drei eingestrahnten Felder gleich und in x-Richtung polarisiert sind. Dann gilt für die Polarisation in x-Richtung:

$$P_x^{(NL)}(\alpha\omega, z, t) = \epsilon_0 \chi_{xxxx} E^3(\omega, z, t) \quad \text{Mit } \alpha \in \{-1, -3\} \quad (8.5)$$

Mit dem eingestrahnten Feld

$$E(\omega, z, t) = \frac{1}{2} [\varepsilon(\omega, z) e^{-i(\omega t - k_\omega z)} + \text{c.c.}] \quad (8.6)$$

folgt:

$$E^3(\omega, z, t) = \frac{1}{8} [\varepsilon^3(\omega, z) e^{-3i(\omega t - k_\omega z)} + \text{c.c.} + 3\varepsilon^2(\omega, z) \varepsilon^*(\omega, z) e^{-i(\omega t - k_\omega z)} + \text{c.c.}] \quad (8.7)$$

Außerdem gilt für die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung:

$$P_x^{(NL)} = \frac{1}{2} [P^{(NL)}(3\omega, z) e^{-3i\omega t} e^{i(k_1 + k_2 + k_3)z} + \text{c.c.} + P^{(NL)}(\omega, z) e^{-i\omega t} e^{i(k_1 - k_2 + k_3)z} + \text{c.c.}] \quad (8.8)$$

Setzt man nun Gleichung 8.7 in Gleichung 8.5 ein und identifiziert die Terme mit denen in Gleichung 8.8, so erhält man die nichtlinearen Polarisationen 3. Ordnung für die Dritte Harmonische bzw. die entartete Vierwellenmischung:

$$P^{(NL)}(3\omega, z) = \frac{1}{4}\epsilon_0 \chi(-3\omega, \omega, \omega, \omega) \varepsilon^3(\omega, z) \quad (8.9)$$

$$P^{(NL)}(\omega, z) = \frac{3}{4}\epsilon_0 \chi(-\omega, \omega, -\omega, \omega) \varepsilon^2(\omega, z) \varepsilon^*(\omega, z) \quad (8.10)$$

Setzt man diese Polarisation in die Grundgleichung der nichtlinearen Optik ein, so erhält man unter Anwendung der SVEA:

$$\frac{d\varepsilon(3\omega)}{dz} = \frac{3i\omega}{8cn(3\omega)} \chi^{(3)}(3\omega) \varepsilon^3(\omega) e^{i\Delta k z} \quad (8.11)$$

Mit:

$$\Delta k = 3k_\omega - k_{3\omega} = \frac{3\omega}{c} [n(\omega) - n(3\omega)] \quad (8.12)$$

Die Lösung dieser Gleichung erfolgt wie bei der SHG (Integrieren, quadrieren), und man erhält unter der NDP-Annahme:

$$I_{3\omega}(L) = \frac{9\omega^2}{16\epsilon_0^2 c^4 n(\omega)^3 n(3\omega)} |\chi^{(3)}(3\omega)|^2 I_\omega^3(0) L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2} \quad (8.13)$$

Das bedeutet, dass die erzeugte Intensität der dritten Harmonischen mit der dritten Potenz von der Ausgangsintensität abhängt (Abbildung 8.1).

8.2 Phasenanpassung

Analog der SHG ist wieder wünschenswert, Δk verschwinden zu lassen:

$$\underline{\Delta k} = 3\underline{k}_\omega - \underline{k}_{3\omega} = \underline{k}_{\omega,1} + \underline{k}_{\omega,2} + \underline{k}_{\omega,3} - \underline{k}_{3\omega} \stackrel{!}{=} 0 \quad (8.14)$$

8.2.1 Nichtkollineare Phasenanpassung

Eine Möglichkeit, dies zu erreichen, liegt darin, nicht kollineare Strahlen zu benutzen. Dies ist in Abbildung 8.2 veranschaulicht.

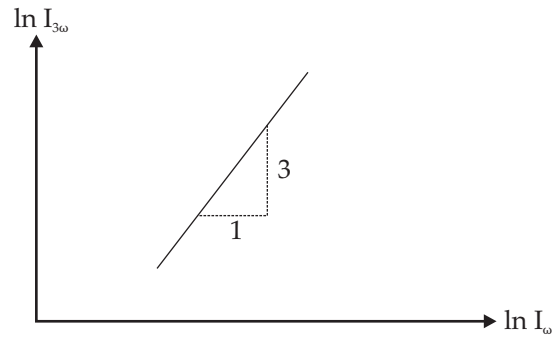


Abbildung 8.1: Intensität der dritten Harmonischen in Abhängigkeit der Intensität der Fundamentalen

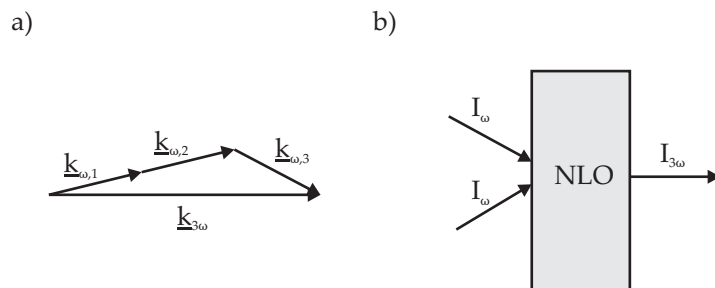


Abbildung 8.2: a) Mögliche Anordnung der Fundamentalen für Phasenanpassung bei Erzeugung der dritten Harmonischen. b) Praktische Realisierung (schematisch) von Phasenanpassung bei Erzeugung der dritten Harmonischen

8.2.2 Kollineare Phasenanpassung

Bei kollinearer Phasenanpassung muss gelten:

$$n(\omega) \stackrel{!}{=} n(3\omega) \quad (8.15)$$

Dies ist auch mit doppelbrechenden Kristallen nicht mehr zu erreichen. Daher muss zwischen ω und 3ω eine Resonanz liegen (Vergleiche Abbildung 1.7). Um dies für verschiedene Wellenlängen realisieren zu können, arbeitet man mit Gasgemischen. (Abbildung 8.3) Seien f_1 und f_2 die An-

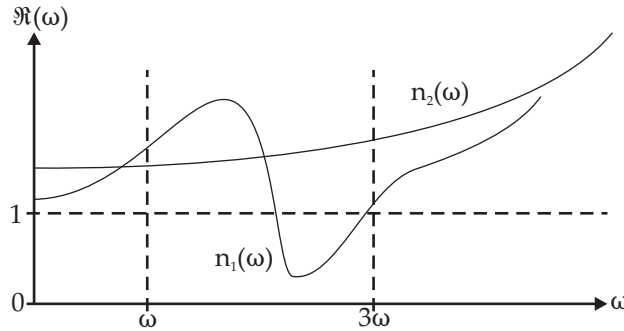


Abbildung 8.3: Realteil der Brechungsindizes zweier verschiedener Gase für kollineare Phasenanpassung mittels Gasgemischen

teile der beiden Gase ($f_1 + f_2 = 1$) und $n_1(\omega)$ und $n_2(\omega)$ ihre Brechungsindizes, so gilt:

$$n(\omega) = f_1 n_1(\omega) + f_2 n_2(\omega) \quad (8.16)$$

$$n(3\omega) = f_1 n_1(3\omega) + f_2 n_2(3\omega) \quad (8.17)$$

Damit erhält man für das Mischungsverhältnis für Phasenanpassung:

$$\boxed{\frac{f_1}{f_2} = \frac{n_2(3\omega) - n_2(\omega)}{n_1(\omega) - n_1(3\omega)}} \quad (8.18)$$

8.3 Zweiphotonenresonanzen

Genauer zu Zweiphotonenresonanzen kann z.B. im Boyd nachgelesen werden. Hier soll der Prozess nur kurz beschrieben werden. Man kann die Erzeugung der dritten harmonischen als Übergang über zwei virtuelle Zustände in einen realen oder virtuellen Zustand ansehen (Abbildung

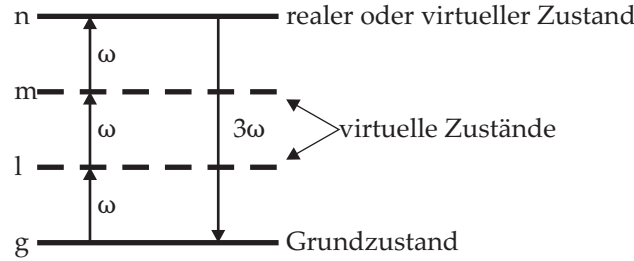


Abbildung 8.4: Zustandsdiagramm für die Erzeugung der dritten Harmonischen. Ist m ein realer Zustand, so tritt Zweiphotonenresonanz auf.

8.4). Die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung lautet dann in quantenmechanischer Betrachtung:

$$\chi(-3\omega, \omega, \omega, \omega) = \frac{n_e}{\epsilon_0 \hbar^3} \sum_{l,m,n} \mu_{gl} \mu_{lm} \mu_{mn} \mu_{ng} \cdot A_{lmn} \quad (8.19)$$

Die $\mu_{\alpha\beta}$ bezeichnen dabei die Dipolmomente zwischen den beiden Zuständen, A_{lmn} ist ein Resonanzterm, der bei Vernachlässigung der Dämpfungsterme folgende Form annimmt:

$$A_{lmn} \frac{1}{(\omega_{lg} - 3\omega)(\omega_{mg} - 2\omega)(\omega_{ng} - \omega)} + \frac{1}{(\omega_{lg} + \omega)(\omega_{mg} - 2\omega)(\omega_{ng} - \omega)} \quad (8.20)$$

Ist m nun kein virtueller, sondern ein realer Zustand, so wird der Term $\omega_{mg} - 2\omega$ sehr klein und der A sehr groß, da bei einem realen Zustand die Dämpfung sehr klein wird. Virtuelle Zustände haben hingegen eine große Dämpfung¹.

¹Wäre l ein realer Zustand, so würden sich Elektronen darin sammeln und es würde statt der dritten Harmonischen verstärkt entartete Vierwellenmischung auftreten.

8.4 Vier-Wellen-Mischung

Der Prozess der Vierwellenmischung ist in Abbildung 8.5 abgebildet. Er kann anschaulich so erklärt werden: Die beiden Pumpwellen bilden eine stehende Welle im Medium aus, was in einem "Polarisationsgitter" resultiert. An dieser periodischen Polarisationsfunktion wird der eingestrahlte Probestrahl als Signal abgelenkt.

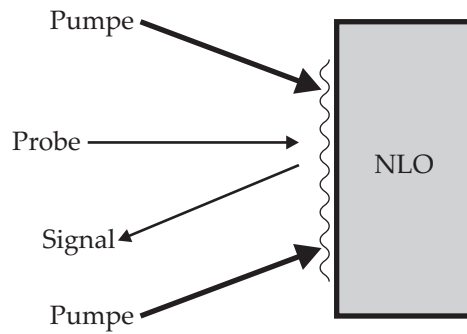


Abbildung 8.5: Veranschaulichung der Vierwellenmischung: Die beiden Pumpstrahlen erzeugen ein "Polarisationsgitter", an dem der Probenstrahl gebeugt wird.

Die nichtlineare Polarisation für die Vierwellenmischung hatte die Form (Gleichung 8.10):

$$P^{(NL)}(\omega, z) = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi(-\omega, \omega, -\omega, \omega) \varepsilon^2(\omega, z) \varepsilon^*(\omega, z) \quad (8.21)$$

Setzt man diese Polarisation in die Grundgleichung der NLO (Gleichung 3.16) ein, so erhält man:

$$\nabla^2 \varepsilon + \frac{n_0^2}{c^2} \omega^2 \cdot \varepsilon = -\frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{c^2} \cdot \omega^2 |\varepsilon(\omega)|^2 \varepsilon(\omega) \quad (8.22)$$

n_0 ist hierbei der Brechungsindex bei der Frequenz ω . Umgestellt folgt daraus:

$$\boxed{\nabla^2 \varepsilon + \frac{\omega^2}{c^2} \left(n_0^2 + \frac{3}{4} \chi^{(3)} \cdot |\varepsilon(\omega)|^2 \right) \cdot \varepsilon(\omega) = 0} \quad (8.23)$$

Offenbar stellt der Term in Klammern hier einen neuen Brechungsindex dar, für den gilt:

$$n^2 = n_0^2 + \frac{3}{4} \chi^{(3)} \cdot |\varepsilon(\omega)|^2 =: 1 + \chi_L + \chi_{NL} \quad (8.24)$$

Anders ausgedrückt gilt:

$$n = n_0 \cdot \sqrt{1 + \frac{\chi_{NL}}{n_0^2}} \stackrel{\chi_{NL} \ll n_0^2}{\approx} n_0 \cdot \left(1 + \frac{1}{2} \frac{\chi_{NL}}{n_0^2}\right) \quad (8.25)$$

Mit der Definition der Intensität

$$I_\omega = \frac{1}{2} \epsilon_0 c |\varepsilon(\omega)|^2 \quad (8.26)$$

folgt für die nichtlineare Suszeptibilität:

$$\chi_{NL} = \frac{3}{2} \frac{\chi^{(3)} I}{\epsilon_0 c} \quad (8.27)$$

Damit folgt für den Brechungsindex:

$$n \approx n_0 + \frac{3}{4} \frac{1}{\epsilon_0 c_0} \chi^{(3)} I =: n_0 + n_2 I \quad (8.28)$$

Damit folgt für den Intensitätsabhängigen Teil des Brechungsindex n_2 :

$$\boxed{n_2 = \frac{3}{4} \frac{1}{\epsilon_0 c_0} \chi^{(3)}} \quad (8.29)$$

Nun noch eine kurze Einheitenbetrachtung: Aus Gleichung 8.10 folgt für die Einheit von $\chi^{(3)}$:

$$[\chi^{(3)}] = \frac{[P^{(NL)}]}{[\epsilon_0] \cdot [\varepsilon^3]} = \frac{\text{As} \cdot \text{Vm} \cdot \text{m}^3}{\text{m}^2 \cdot \text{As} \cdot \text{V}^3} = \frac{\text{m}^2}{\text{V}^2} \quad (8.30)$$

Aus Gleichung 8.28 folgt für die Einheit von n_2 :

$$[n_2] = \frac{1}{[I]} = \frac{\text{m}^2}{\text{W}} \quad (8.31)$$

8.5 Selbstfokussierung

8.5.1 Grundlagen

Mit dem intensitätsabhängigen Brechungsindex kann nun der Effekt der Selbstfokussierung behandelt werden. Zunächst eine qualitative Beschreibung: In Bereichen hoher Intensität ist auch der Brechungsindex höher. Nach der klassischen Optik werden aber Lichtstrahlen immer zum optisch dichteren Medium hin gebrochen. Bei einem Strahl mit GAUSS'schem Profil wird also immer mehr Licht zum Zentrum des Strahls hingebrochen und es kommt zur Selbstfokussierung. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung 8.6 veranschaulicht.

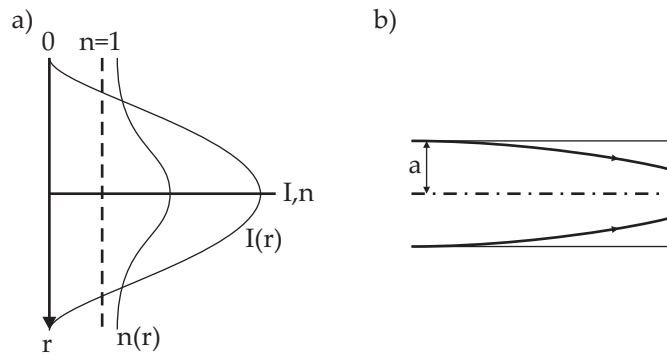


Abbildung 8.6: a) Intensitätsprofil eines realen Strahls und zugehöriges Brechungsindexprofil (schematisch); b) Verlauf der Halbwertsbreite des Strahles mit Selbstfokussierung (schematisch)

Für eine quantitative Beschreibung gehen wir von der Wellengleichung im isotropen Medium (Gleichung 1.21) aus:

$$\nabla^2 E - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0 \quad (8.32)$$

Für den intensitätsabhängigen Brechungsindex gilt:

$$n^2 = (n_0 + n_2 I)^2 \approx n_0^2 + 2n_0 n_2 I \quad (8.33)$$

Den Nabla-Operator kann man schreiben als:

$$\nabla^2 = \underbrace{\nabla_{\perp}^2}_{\text{Transversaler Anteil}} + \underbrace{2ik \frac{\partial}{\partial z} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}}_{\text{Longitudinaler Anteil (verschwindet bei SVEA)}} \quad (8.34)$$

Zusammen mit dem Feld

$$E = \frac{1}{2} [\varepsilon e^{-i(\omega t - k_{\omega} z)} + \text{c.c.}] \quad (8.35)$$

wird dann aus Gleichung 8.32 unter Annahme konstanter Intensität ($\frac{\partial I}{\partial t} = 0$):

$$0 = \nabla_{\perp}^2 \varepsilon + 2ik_{\omega} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} - k_{\omega}^2 + \frac{n_0^2 \omega^2}{c^2} \varepsilon + \frac{2\omega^2 n_0 n_2 I}{c^2} \cdot \varepsilon \quad (8.36)$$

Mit $\frac{n_0 \omega}{c} \equiv k_{\omega}$ wird daraus:

$$\nabla_{\perp}^2 \varepsilon + 2ik_{\omega} \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} + 2k_{\omega}^2 \frac{n_2}{n_0} I \cdot \varepsilon = 0 \quad (8.37)$$

Der erste Term sorgt hier für eine Aufweitung des Strahls durch Beugung. Wenn der Strahl auf den Radius a eingeschnürt ist, so wird er an diesem Radius gebeugt. Die Größenordnung dieses Terms ist:

$$\nabla_{\perp}^2 \varepsilon \approx \frac{1}{a^2} \varepsilon \quad (8.38)$$

Dieser Term arbeitet gegen den dritten Term, der die Selbstfokussierung beschreibt. Ein Gleichgewicht stellt sich also ein, wenn beide Terme ungefähr die selbe Größe erreichen. Dies bedeutet:

$$\frac{1}{a^2} \approx 2k_{\omega}^2 \frac{n_2}{n_0} I \quad (8.39)$$

Mit der Definition der Leistung $P = \pi I a^2$ erkennt man, dass die Leistung der einzige Parameter ist. Es existiert also eine kritische Laserleistung für die Selbstfokussierung²:

$$P_{crit} = \pi \frac{n_0}{2k_{\omega}^2 n_s} \stackrel{k_{\omega} = \frac{2\pi}{\lambda}}{=} \frac{n_0 \lambda^2}{8\pi n_2} \quad (8.40)$$

²In der Literatur findet man in der Literatur verschiedene Vorfaktoren, es gilt jedoch $P_{crit} \propto \frac{n_0 \lambda^2}{n_2}$.

8.5.2 Alternative Herleitung

Man kann auch eine alternative, klassische Herleitung anwenden, die ein ähnliches Ergebnis liefert. Eine Skizze dazu ist in Abbildung 8.7 gezeigt. Für die Brechung wird in die klassische Brechungsformel der Intensitäts-

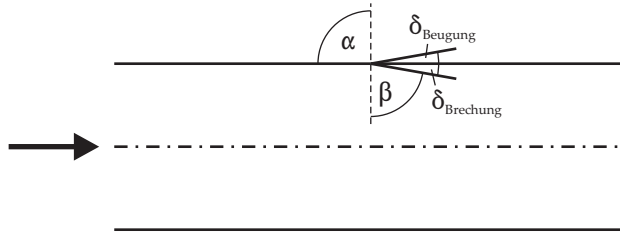


Abbildung 8.7: Skizze zur klassischen Herleitung. Gleichgewicht liegt vor, wenn der Beugungswinkel δ_{Beug} und der Brechungswinkel δ_{Brech} gleich groß sind.

abhängige Brechungsindex eingesetzt:

$$\frac{\sin \alpha}{\sin \beta} = \frac{n_0 + n_2 I}{n_0} = 1 + \frac{n_2}{n_0} I \quad (8.41)$$

Des weiteren gilt mit $\alpha = 90^\circ$:

$$\frac{\sin \alpha}{\sin \beta} = \frac{1}{\sin(\frac{\pi}{2} - \delta_{Brech})} \quad (8.42)$$

Es gilt aber auch:

$$\sin(\frac{\pi}{2} - \delta_{Brech}) = \sin \frac{\pi}{2} \cos \delta_{Brech} - \cos \frac{\pi}{2} \sin \delta_{Brech} = \cos \delta_{Brech} \quad (8.43)$$

Für kleine Brechungswinkel gilt:

$$\cos \delta_{Brech} \approx 1 - \frac{\delta_{Brech}^2}{2} \quad (8.44)$$

Daraus folgt:

$$1 + \frac{n_2}{n_0} I \approx 1 + \frac{\delta_{Brech}^2}{2} \quad (8.45)$$

Und:

$$\delta_{Brech}^2 \approx \frac{2n_2 I}{n_0} \quad (8.46)$$

Für die Beugung gilt näherungsweise:

$$\delta_{Beug} \approx \frac{\lambda}{2a} \quad (8.47)$$

Also:

$$\delta_{Beug}^2 \approx \frac{\lambda^2}{4a^2} \quad (8.48)$$

Für das Gleichgewicht gilt nun:

$$\delta_{Beug}^2 = \delta_{Brech}^2 \quad (8.49)$$

Also:

$$\frac{\lambda^2}{4a^2} = \frac{2n_2 I}{n_0} \quad (8.50)$$

Daraus folgt für die kritische Leistung:

$$P_{crit} = \pi I a^2 = \frac{\pi \lambda^2 n_0}{8n_2} \quad (8.51)$$

Dies ist bis auf einen Faktor von π^2 das selbe Ergebnis wie oben.

Hier nun ein paar Zahlenbeispiele:

- Quarz: $n_2 \approx 2 \cdot 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$, $n_0 = 1,5$. Bei einer Wellenlänge $\lambda = 800 \text{ nm}$ ergibt sich eine kritische Leistung von:

$$P_{crit} \approx \frac{1,5 \cdot 0,64 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2}{25 \cdot 2 \cdot 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}} \approx 2 \cdot 10^6 \text{ W}$$

- Luft: $n_2 \approx 3 \cdot 10^{-19} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$, $n_0 = 1$, $\lambda = 800 \text{ nm}$:

$$P_{crit} \approx \frac{0,64 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^2}{25 \cdot 3 \cdot 10^{-19} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}} \approx 10^9 \text{ W}$$

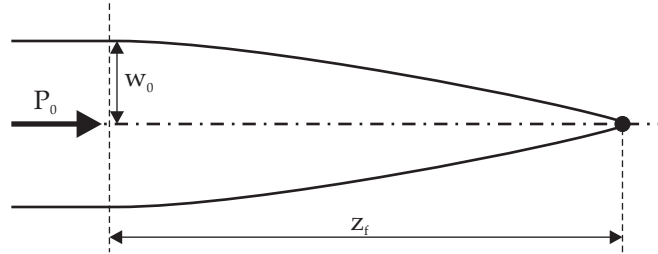


Abbildung 8.8: Katastrophale Selbstfokussierung: Nach der Länge z_f ist der Strahl mit Anfangsdurchmesser w_0 und Leistung P_0 auf den Radius Null fokussiert.

8.5.3 Katastrophale Selbstfokussierung

Als katastrophale Selbstfokussierung bezeichnet man konvergierende Selbstfokussierung, die bei Leistungen größer als P_{crit} auftritt. Nach einer Länge z_f hätte der Strahl theoretisch einen beliebig kleinen Radius und damit eine beliebig große Energiedichte. Die genaue Herleitung für die Länge z_f ist im Shen (S. 307ff) zu finden. Hier soll nur das Ergebnis notiert werden:

$$z_f = \frac{n_0 \pi w_0^2}{\lambda} \cdot \left(\frac{P_0}{P_{crit}} - 1 \right)^{-Halb} \quad (8.52)$$

(Variablen siehe auch Abbildung 8.8)

8.6 Selbstphasenmodulation

Wie in Abschnitt 1.3 schon kurz behandelt, verändert sich durch einen veränderlichen Brechungsindex auch das Spektrum und damit die zeitliche Form eines Pulses (Abbildung 8.9). Dies soll nun in diesem Abschnitt mittels des intensitätsabhängigen Brechungsindex näher behandelt werden.

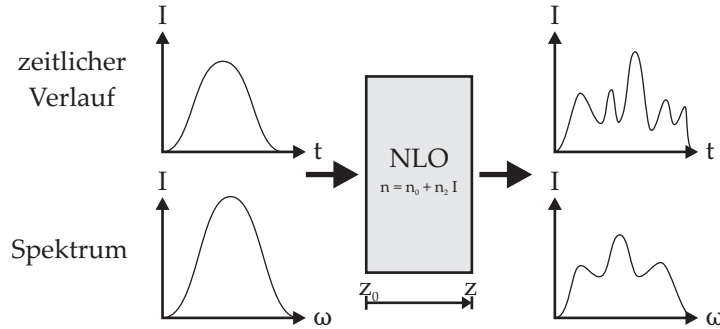


Abbildung 8.9: Ein GAUSS-förmiger Puls propagiert durch ein NLO-Medium. Nach der Länge $z - z_0$ hat sich sowohl seine zeitliche Form als auch sein Spektrum durch selbstphasenmodulation stark verändert.

Für die einfallende Strahlung gilt die Wellengleichung:

$$E_{in}(z_0, t) = E_0(t) e^{i(\omega t - k n z_0)} \quad (8.53)$$

Dabei gilt in dem umgebenden Gas $n = 1$. Nach der Propagation durch das NLO-Medium hat die Welle die Form:

$$E_{out}(z, t) = E_0(t) e^{i(\omega t - k n_0 z - k n_2 I z)} =: E_0(t) \phi(t) \quad (8.54)$$

Die Zeitabhängigkeit von $\phi(t)$ kommt dabei neben dem expliziten Term ωt aus der zeitabhängigen Intensität $I(t)$. Damit ergibt sich eine effektive Wellenzahl:

$$\omega_{eff} = \frac{d\phi}{dt} = \omega - k z \frac{dn}{dt} = \omega - k z n_2 \frac{dI}{dt} \quad (8.55)$$

Dies bedeutet, dass sich die effektive Frequenz des Lichtes über die Zeit ändert. Dies ist in Abbildung 8.10 dargestellt.

Wenn Licht durch ein Medium mit nicht vernachlässigbarer Intensitätsabhängigkeit propagiert, ändert es sowohl seine

- Räumliche Struktur (Selbstfokussierung) als auch seine
- Zeitliche Struktur (Selbstphasenmodulation)

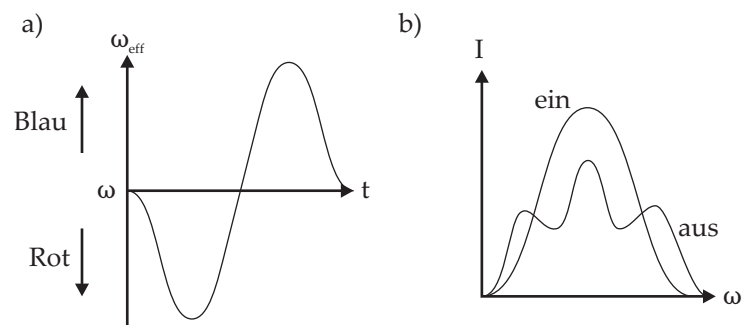


Abbildung 8.10: a) Zeitlicher Verlauf der effektiven Frequenz ω_{eff} bei Selbstphasenmodulation; b) Ein- und Ausgangsspektrum (schematisch)

Kapitel 9

Multiphotonenprozesse und Feldionisation

9.1 Zweiphotonenabsorption

Zunächst soll noch einmal die Zweiphotonenabsorption behandelt werden. Das Niveauschema zur Zweiphotonenabsorption ist in Abbildung 9.1 dargestellt. Die Nichtlineare Polarisation hat die Form:

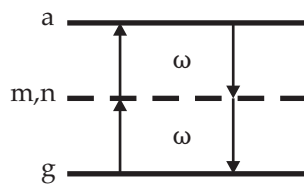


Abbildung 9.1: Energieniveauschema zur Zweiphotonenabsorption

$$P_{(\omega)}^{(NL)} = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi(-\omega, \omega, -\omega, \omega) |\varepsilon(\omega)|^2 \varepsilon(\omega) \quad (9.1)$$

Mit der Suszeptibilität:

$$\chi \approx \frac{2n_e}{\epsilon_0 \hbar^3} \sum_{m,w} \frac{\mu_{gm} \mu_{ma} \mu_{an} \mu_{ng}}{(\omega_{gm} - \omega)(\omega_{ag} - 2\omega)(\omega_{ng} - \omega)} \quad (9.2)$$

Anders ausgedrückt:

$$\chi \approx \frac{1}{\omega_{ag} - 2\omega} \cdot B \quad (9.3)$$

Nahe der Resonanz $2\omega \approx \omega_{ag}$ muss noch die Absorption berücksichtigt werden:

$$\omega_{ag} - 2\omega \rightarrow \omega_{ag} - 2\omega - i\beta_{ag} \quad (9.4)$$

Dann kann man für die Suszeptibilität schreiben:

$$\chi = \frac{B}{\omega_{ag} - 2\omega - i\beta_{ag}} = \underbrace{\frac{(\omega_{ag} - 2\omega)B}{(\omega_{ag} - 2\omega)^2 + \beta_{ag}^2}}_{\chi_r} + i \underbrace{\frac{\beta_{ag}B}{(\omega_{ag} - 2\omega)^2 + \beta_{ag}^2}}_{\chi_i} \quad (9.5)$$

Setzt man dies in Gleichung 8.12 ein, so erhält man:

$$\frac{d\varepsilon(\omega)}{dz} = \frac{3i\omega}{8cn(\omega)} (\chi_r + i\chi_i) |\varepsilon(\omega)|^2 \varepsilon(\omega) \quad (9.6)$$

Analog zu den Rechnungen zu den MANLEY-ROWE-Relationen erhält man:

$$\frac{d}{dz} |\varepsilon(\omega)|^2 = -\frac{3\omega}{4cn(\omega)} \chi_i |\varepsilon(\omega)|^4 \quad (9.7)$$

Anders ausgedrückt bedeutet dies:

$$\boxed{\frac{d}{dz} I = -\alpha_2 I^2} \quad (9.8)$$

Hierbei ist die Intensität wieder:

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c |\varepsilon(\omega)|^2 \quad (9.9)$$

Und der Zweiphotonenabsorptionskoeffizient α_2 lautet:

$$\boxed{\alpha_2 = \frac{3\omega \chi_i}{2\epsilon_0 c^2 n(\omega)^2}} \quad (9.10)$$

Wie groß ist nun die Intensität nach Propagation durch ein Medium der Dicke z ? Dazu muss die Intensitätsgleichung durch Integration gelöst werden:

$$-\int_{I(0)}^{I(z)} \frac{dI}{I^2} = \alpha_2 z = \frac{1}{I(z)} - \frac{1}{I(0)} \quad (9.11)$$

Daraus folgt:

$$I^{(2)}(z) = \frac{I(0)}{1 + \alpha_2 I(0)z} \quad (9.12)$$

Vergleicht man dies mit dem linearen Absorptionsgesetz,

$$I^{(1)} = I(0)e^{-\alpha_1 z} \quad (9.13)$$

so erkennt man, dass die Absorption durch Zweiphotonenprozesse schwächer ist als die einfache Absorption (Abbildung 9.2).

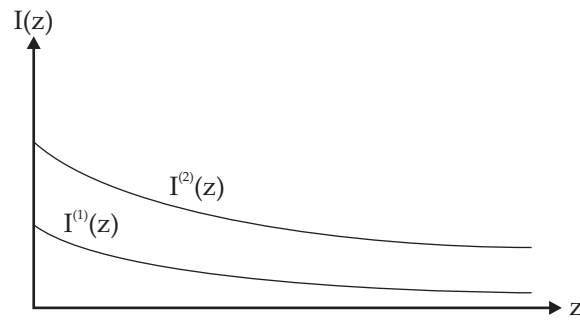


Abbildung 9.2: Vergleich von linearer Absorption und Zweiphotonenabsorption.

9.2 Multiphotonenabsorption und Multiphotonenionisation

Analog zur Zweiphotonenabsorption kann man nun die Multiphotonenabsorption betrachten (Abbildung 9.3). Bei ihr werden $n \gg 2$ Photonen absorbiert. Gleichung 9.8 erhält dann die Form:

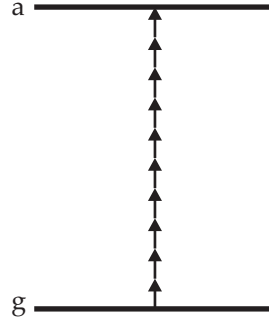


Abbildung 9.3: Vereinfachtes Energieschema der Multiphotonenabsorption

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_n I^n \quad (9.14)$$

Der Intensitätsverlauf hat dann die Form:

$$I(z) = \frac{I(0)}{\left(1 + \frac{I(0)^{n-1}}{n-1} \alpha_n z\right)^{\frac{1}{n-1}}} \quad (9.15)$$

Wenn der Endzustand im Kontinuum des Atoms oder Moleküls liegt, so werden durch die Multiphotonenabsorption Elektronen aus der Atomhülle gelöst. Man spricht dann von der Multiphotonenionisation. Dabei werden freie Elektronen erzeugt, die einen Beitrag zum Brechungsindex liefern. (Siehe auch Abschnitt 1.3) Dieser hat die Form:

$$n_p = \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (9.16)$$

Mit der Plasmafrequenz:

$$\omega_p^2 = \frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e} \quad (9.17)$$

n_e ist dabei die freie Elektronendichte. Im Allgemeinen ist die Plasmafrequenz klein gegen die Frequenz des eingestrahlt Lichtes, und man kann entwickeln:

$$n_p \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (9.18)$$

Mit steigender Elektronendichte sinkt demnach der Brechungsindex. Da die Ionisation mit der Intensität korreliert, wirkt dieser Effekt der Selbstfokussierung entgegen (Abbildung 9.4). Für den Brechungsindex bei Selbstfokussierung in Gasen ($n_0 \approx 1$) gilt:

$$n_s = 1 + n_2 I \quad (9.19)$$

Für die Veränderung der Elektronendichte mit der Zeit gilt:

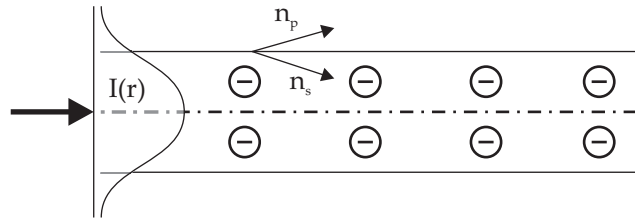


Abbildung 9.4: Ein Strahl mit GAUSS'schem Profil $I(r)$ propagiert durch ein Gas. Dabei erniedrigt sich zum einen der Brechungsindex durch Feldionisation. Zum Anderen steigt der Brechungsindex durch den Effekt der Selbstionisation.

$$\frac{dn_e}{dt} = NR \left(\frac{I}{I_0} \right)^n \quad (9.20)$$

N bezeichnet hierbei die Atomdichte. Wenn die Stoßdauern kurz gegenüber der Pulslänge τ_L ist, die Rekombinationszeit jedoch viel länger ist, so ergibt sich eine annähernd konstante freie Elektronendichte von:

$$n_e \approx NR \left(\frac{I}{I_0} \right)^n \tau_L \quad (9.21)$$

Wenn sich diese beiden Einflüsse gerade aufheben, so kann sich ein stabiler Kanal für den Laserstrahl bilden. Das ist der Fall, wenn:

$$\frac{\omega_p^2}{\omega^2} \approx n_2 I \approx \frac{NR\tau_L}{\omega^2} \left(\frac{I}{I_0} \right)^n \quad (9.22)$$

Dies bedeutet dass es eine kritische Intensität gibt, bei der Kanalbildung stattfindet:

$$I_{crit} = \left(\frac{n_2 I_0^n \omega^2}{N R \tau_L} \right)^{\frac{1}{n-1}} \quad (9.23)$$

In Luft und bei $\lambda \approx 800$ nm gilt:

$$I_{crit} \approx 4 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$$

Durch die Absorption im Zuge der Feldionisation ist die Reichweite eines solchen kanalisiertes Strahles recht gering. Tatsächlich bildet sich allerdings kein konstanter Kanal aus. Stattdessen oszilliert die Dicke des Strahles entlang seines Weges (Abbildung 9.5). Zunächst wird der Strahl

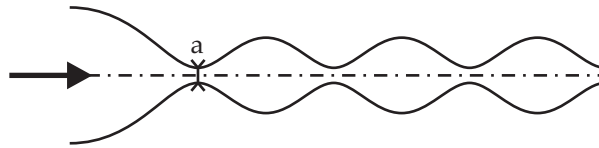


Abbildung 9.5: Ein Strahl wird durch Selbstfokussierung bis auf einen Radius a komprimiert, bei dem die Intensität hoch genug für Feldionisation wird. Daraufhin weitet er sich wieder auf, um sich daraufhin wieder zu fokussieren

bis auf den kritischen Radius a , bei dem die kritische Intensität erreicht wird, fokussiert. Durch die dann stattfindende Feldionisation wird der Strahl wieder aufgeweitet, um sich danach wieder auf den kritischen Radius zu verengen. Dadurch findet signifikante Absorption nur in den eingegengten Bereichen statt und der Strahl kann sehr viel länger propagieren. Ein Foto eines solchen Versuches ist in Abbildung 9.6 abgebildet. Der Strahl erreichte dabei eine Höhen von mehreren Kilometern!



Abbildung 9.6: Versuch zur Kanalisierung an der FSU Jena.