

# Nichtlineare Optik

Claus Zimmermann

January 23, 2012

# Contents

<b>1</b>	<b>Nichtlineare Schwingungen in optischen Medien</b>	<b>2</b>
1.1	Lineare und Nichtlineare Optik . . . . .	2
1.2	Anharmonischer Oszillator und $\chi^{(2)}$ -Suszeptibilität . . . . .	3
<b>2</b>	<b>Wellengleichungen mit <math>\chi^{(2)}</math>-Suszeptibilität</b>	<b>11</b>
2.1	Ableitung der Wellengleichung . . . . .	11
2.2	Gekoppelte Gleichungen für Summenmischung . . . . .	14
2.3	Parametrische Verstärkung und Differenz-Mischung . . . . .	18
2.4	Frequenzverdopplung im einfachen Durchgang . . . . .	21
2.5	Phasenanpassungsmethoden . . . . .	23
<b>3</b>	<b>Nichtlineare Optik mit Gaußstrahlen</b>	<b>33</b>
3.1	Gaußstrahlen . . . . .	33
3.2	Frequenzverdopplung mit Gaußstrahlen . . . . .	35
3.3	Resonante Überhöhung der Fundamentalen . . . . .	41
3.4	Resonante Überhöhung der Harmonischen . . . . .	47
3.5	Dynamische Gleichungen für Resonatoren: . . . . .	51
<b>4</b>	<b>Nichtlineare Effekte aufgrund von <math>\chi^{(3)}</math></b>	<b>56</b>
4.1	Materialien mit Inversionssymmetrie . . . . .	56
4.2	Intensitätsabhängiger Brechungsindex . . . . .	59
4.3	Optische Phasenkonjugation: . . . . .	61
4.4	Selbstfokussierung von Licht . . . . .	63
4.5	Optische Bistabilität . . . . .	67
4.6	Zweistrahlkopplung . . . . .	71
4.7	Pulse . . . . .	76
4.8	Nichtlineare Optik mit Atomen . . . . .	89
<b>5</b>	<b>Anhang</b>	<b>92</b>
	Anhang A: Formale Beschreibung der nichtlinearen Suszeptibilität . . . . .	92
	$\chi^{(2)}$ -Suszeptibilität . . . . .	93
	Anhang B: Vereinfachte Notation im Fall von Kleinman Symmetrie . . . . .	95

# Chapter 1

## Nichtlineare Schwingungen in optischen Medien

### 1.1 Lineare und Nichtlineare Optik

- Nichtlineare Medien

Nichtlineare Optik betrachtet Licht in optischen Medien. Dies können Gase und Flüssigkeiten sein, die einigermaßen transparent sind. Am wichtigsten sind jedoch Kristalle, die meist synthetisch hergestellt werden. Wir betrachten hier ausschließlich Kristalle. Welche Effekte treten auf?

- Lineare Optik (kleine Intensitäten):

- Absorption

Die Lichtleistung ist hinter dem Kristall um einen bestimmten Prozentsatz reduziert. Dieser Prozentsatz ist unabhängig von der Eingangsintensität.

- Dispersion

Die Lichtwelle ist gegenüber einer Welle, die nicht durch den Kristall läuft phasenverschoben. Der Brechungsindex im Kristall ist von 1 verschieden. Bei Ein- und Austritt aus dem Kristall tritt Brechung auf. Der Brechungsindex ist ebenfalls intensitätsunabhängig.

- Nichtlineare Optik (große Intensitäten):

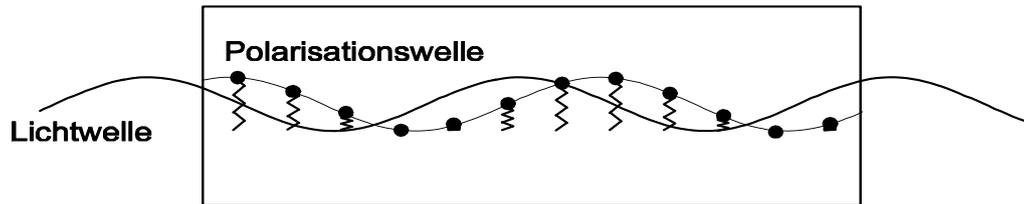
- Absorption wird intensitätsabhängig.

Das Medium bleicht aus und wird transparenter. Die Absorption sättigt.

- Sättigungsspektroskopie
- Mehrphotonenspektroskopie
- Nichtklassisches Licht
- optische Bistabilität in Resonatoren: optische Schalter.
- Dispersion wird intensitätsabhängig.  
Der Brechungsindex wird durch die lokale Lichtintensität moduliert.
- Solitonen
- Zweistrahlkopplung
- phasenkonjugierte Spiegel
- optische Bistabilität in Resonatoren
- Nichtlineare Frequenzkonversion.  
Energieübertrag zwischen Wellen verschiedener Frequenzen
- Frequenzverdopplung
- Summenfrequenzmischung
- Parametrischer Oszillator
- Die Entwicklung der nichtlinearen Optik
  - Zwischen 1960 und 1980 wurde durch den Laser stark gefördert, mit dem Labor- experimente bei hoher Intensität durchgeführt werden können. Dafür gab es 1981 den Nobelpreis für N. Blombergen.
  - Heute findet die nichtlineare Optik vielfache Anwendung in der Spektroskopie und der Entwicklung von Laserquellen (Frequenzverdoppelte YAG-Laser, Verdoppelte kompakte Diodenlaser, Parametrische Oszillatoren).
- Nichtlineare Absorptionseffekte  
werden in dieser Vorlesung kaum eine Rolle spielen. Wir interessieren uns hier nicht für Vorgänge bei denen Licht in Wärme umgewandelt wird sondern wollen solche Verluste möglichst vermeiden.

## 1.2 Anharmonischer Oszillator und $\chi^{(2)}$ -Suszeptibilität

- klassisches Modell
  - Elektronen im Coulombpotential ortsfester Kerne
  - Licht ist elektromagnetische Welle und regt die Elektronen zu Schwingungen an.
  - Elektronen bilden Polarisationswelle
  - Elektronen sind kleine Hertzsche Dipole und wirken wie Antennen
  - Die abgestrahlten Felder überlagern sich und bilden neue Lichtwellen mit bestimmten Frequenzen und Richtungen.



Nichtlineare Schwingungen kommen bei der Erzeugung der Polarisationswelle ins Spiel.

- Linearer Resonator mit Antrieb

Man kann die erregende Kraft in Fourierkomponenten zerlegen und jede Komponente einzeln behandeln

$$\ddot{x} + \omega_0^2 x = F_\omega \cos(\omega t),$$

mit der Kreisfrequenz

$$\omega_0^2 = \frac{k}{m}$$

und der rücktreibenden Kraft

$$F_L = -k \cdot x.$$

Die Lösung lautet

$$x(t) = x_\omega \cos(\omega t + \varphi),$$

Unterhalb der Resonanz kann man die Absorption vernachlässigen und die Phase lautet

$$\varphi = 0 \text{ für } \omega < \omega_0$$

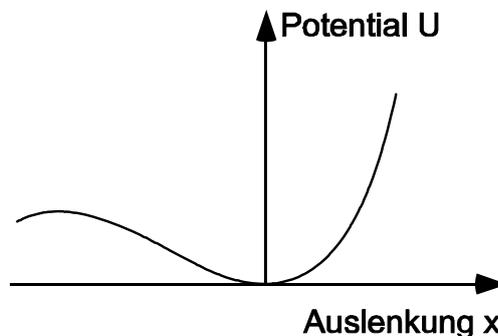
Entscheidend ist, dass

$$x_\omega \sim F_\omega.$$

Besteht die antreibende Kraft aus mehreren Frequenzkomponenten, so überlagern sich die jeweiligen Lösungen linear. Es gibt keine gegenseitige Beeinflussung, keinen Energieaustausch oder sonst eine Kopplung.

- Große Auslenkungen

Abweichungen vom Hook'schen Gesetz.



Das Potential ist anharmonisch. Bei einer harmonischen antreibenden Kraft ist die Schwingung verzerrt. Die Fourier-Zerlegung enthält höhere Harmonische.

- Hooksches Gesetz plus quadratische Korrektur

$$F = -m\omega_o^2 x - m \cdot a \cdot x^2$$

Potential hat keine definierte Symmetrie

$$U = - \int F dx = \underbrace{\frac{1}{2} m \cdot \omega_o^2 \cdot x^2}_{\text{symmetrisch}} + \underbrace{\frac{1}{3} m \cdot a \cdot x^3}_{\text{antisymmetrisch}}$$

keine definierte Symmetrie

Bewegungsgleichung mit antreibenden Lichtfeld  $E(t)$

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} + \omega_o^2 x + ax^2 = -\frac{e}{m} E(t).$$

- Lösung durch Störungsrechnung.

Einführen eines Parameters  $\lambda$  mit dem man die Stärke des Antriebs einstellt (also die Lichtstärke)

$$E(T) \rightarrow \lambda \cdot E(t)$$

Für die Elektronenbewegung macht man den Ansatz:

$$x(t) = \lambda^1 \cdot x^{(1)} + \lambda^2 \cdot x^{(2)} + \lambda^3 \cdot x^{(3)} + \dots$$

Für schwaches Lichtfelder ist  $\lambda \ll 1$  und nur der erste Term spielt eine Rolle. Je stärker das Licht umso größer ist der Beitrag der weiteren Terme. Für jeden Wert von  $\lambda$  soll der Ansatz oben eine Lösung ergeben, wobei die  $x^{(1)}, x^{(2)}, \dots$  nicht von  $\lambda$  abhängen sollen. Das geht nur, wenn alle Terme mit gleicher Potenz in  $\lambda$  sich gegenseitig aufheben. Denn wenn  $\lambda$  groß ist, tragen nur hohe  $x^{(n)}$  bei und umgekehrt.

Einsetzen des Ansatzes ergibt

$$\begin{aligned} & \lambda^1 \ddot{x}^{(1)} + \lambda^2 \ddot{x}^{(2)} + \dots \\ & + 2\gamma \lambda^1 \dot{x}^{(1)} + 2\gamma \lambda^2 \dot{x}^{(2)} + \dots \\ & + \omega_o^2 (\lambda^1 x^{(1)} + \lambda^2 x^{(2)} + \dots) \\ & + a (\lambda^2 \cdot x^{(1)2} + \lambda^3 \cdot x^{(1)} \cdot x^{(2)} + \lambda^4 (x^{(2)2} + x^{(1)} \cdot x^{(3)}) + \dots) \\ = & -\frac{e}{m} \lambda E(t) \end{aligned}$$

Sortieren nach Potenzen von  $\lambda$  führt zu:

$$\begin{aligned}\ddot{x}^{(1)} + 2\gamma\dot{x}^{(1)} + \omega_o^2 x^{(1)} &= -e/m \cdot E(t) \\ \ddot{x}^{(2)} + 2\gamma\dot{x}^{(2)} + \omega_o^2 x^{(2)} &= -a (x^{(1)})^2 \\ \ddot{x}^{(3)} + 2\gamma\dot{x}^{(3)} + \omega_o^2 x^{(3)} &= -2ax^{(1)} \cdot x^{(2)} \\ &\vdots\end{aligned}$$

Die erste Gleichung ist der getriebene gedämpfte harmonische Oszillator. Der Treiberterm der höheren Komponenten besteht aus dem Produkt der Lösungen der niedrigeren Komponenten.

- Lösung mit zwei Antriebsfrequenzen:

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

Die eingeschwungene Lösung zur ersten Gleichung:

$$x^{(1)}(t) = -\frac{e}{m} \left( \frac{E_1 \cdot e^{-i\omega_1 t}}{\omega_o^2 - \omega_1^2 - 2i\omega_1 \gamma} + \frac{E_2 \cdot e^{-i\omega_2 t}}{\omega_o^2 - \omega_2^2 - 2i\omega_2 \gamma} \right)$$

oder mit der Abkürzung

$$D(\omega) = \omega_o^2 - \omega^2 - 2i\omega\gamma$$

und

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

$$x^{(1)}(t) = x^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} + x^{(1)}(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} + c.c.$$

Zweite Gleichung liefert Summenfrequenzen

Für  $(x^{(1)})^2$  erhält Exponentialterme der Form

$$\begin{aligned}e^{-i\omega_1 t} \cdot e^{-i\omega_2 t}, \\ e^{i\omega_1 t} \cdot e^{-i\omega_2 t}, \\ e^{i\omega_1 t} \cdot e^{i\omega_2 t} \dots\end{aligned}$$

also die Frequenzen  $\pm 2\omega_1, \pm 2\omega_2, \pm(\omega_1 + \omega_2), \pm(\omega_1 - \omega_2)$ . Die Amplitude  $x^{(2)}$  besteht also aus der Summe all dieser Komponenten. Um z. B. die Amplitude der Schwingung mit  $2\omega_1$  zu bestimmen, muss man die Gleichung

$$\ddot{x}^{(2)} + 2\gamma\dot{x}^{(2)} + \omega_o^2 x^{(2)} = -a \left( \frac{e}{m} E_1 \right)^2 \frac{e^{-2i\omega_1 t}}{D^2(\omega_1)}$$

lösen. Man erhält wieder die Lösung eines getriebenen, gedämpften, harmonischen Oszillators

$$x^{(2)}(t) = x^{(2)}(2\omega_1) \cdot e^{-2i\omega_1 t}$$

wobei jetzt

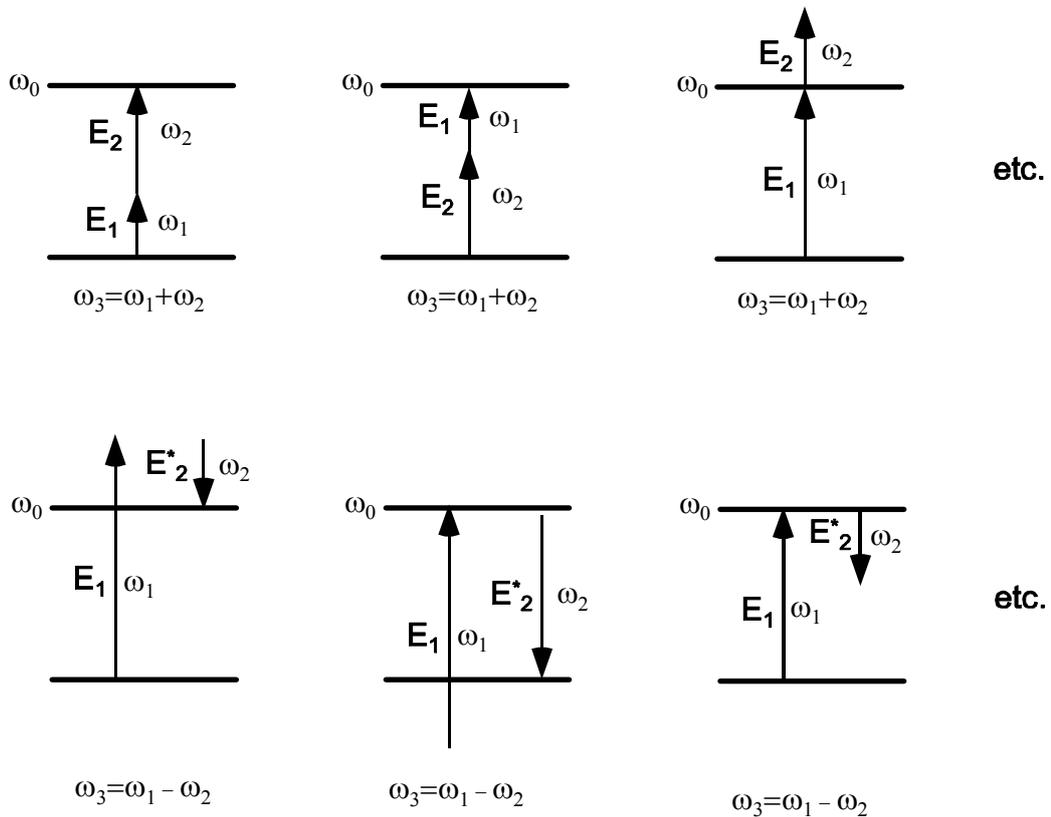
$$x^{(2)}(2\omega_1) = \frac{-a(\frac{e}{m}E_1)^2}{D(2\omega_1) \cdot D^2(\omega_1)}$$

Entsprechend lauten die anderen Amplituden:

$$\begin{aligned} x^{(2)}(2\omega_2) &= \frac{-a(\frac{e}{m}E_2)^2}{D(2\omega_2) \cdot D^2(\omega_2)} \\ x^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) &= \frac{-2a(\frac{e}{m})^2 E_1 \cdot E_2}{D(\omega_1 + \omega_2) \cdot D(\omega_1) \cdot D(\omega_2)} \\ x^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) &= \frac{-2a(\frac{e}{m})^2 E_1 \cdot E_2^*}{D(\omega_1 - \omega_2) \cdot D(\omega_1) \cdot D(-\omega_2)} \\ x^{(2)}(0) &= \frac{-2a(\frac{e}{m})^2 E_1 \cdot E_1^*}{D(0) \cdot D(\omega_1) \cdot D(-\omega_1)} + \frac{-2a(\frac{e}{m})^2 E_2 \cdot E_2^*}{D(0) \cdot D(\omega_2) \cdot D(-\omega_2)} \end{aligned}$$

Resonanzen treten immer dann auf, wenn eine der beteiligten Frequenzen in der Nähe von  $\omega_o$  zu liegen kommt.

$\chi^{(2)}$



- Suszeptibilität.

Die Polarisation eines Ensembles mit der Atomdichte  $N$  lautet:

$$P = -N \cdot e \cdot x.$$

Und entsprechend kann man die Polarisation zerlegen

$$P^{(j)}(\omega) = -N \cdot e \cdot x^{(j)}(\omega)$$

Mit

$$P^{(1)}(\omega_i) = \chi^{(1)}(\omega_i) \cdot E(\omega_i)$$

folgt dann

$$P^{(1)}(\omega_i) = -N \cdot e \cdot x^{(1)}(\omega_i)$$

und damit

$$\chi^{(1)}(\omega_i) = \frac{N \cdot e^2 / m}{D(\omega_i)}.$$

Entsprechend erhält man aus

$$P^{(2)}(2\omega_1) = \chi^{(2)}(2\omega_1, \omega_1, \omega_1) \cdot E^2(\omega_1)$$

mit

$$x^{(2)}(2\omega_1) = \frac{-a \left(\frac{e}{m} E\right)^2}{D(2\omega_1) \cdot D^2(\omega_1)}$$

die nichtlineare Suszeptibilität

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

Das lässt sich interessanterweise schreiben als

$$\chi^{(2)}(2\omega_1, \omega_1, \omega_1) = \frac{m \cdot a}{N^2 e^3} \chi^{(1)}(2\omega_1) \cdot (\chi^{(1)}(\omega_1))^2.$$

Die anderen Suszeptibilitäten lauten:

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) &= \frac{N(e^3/m^2) \cdot a}{D(\omega_1 + \omega_2) D(\omega_1) D(\omega_2)} \\ &= \frac{m \cdot a}{N^2 e^3} \chi^{(1)}(\omega_1 + \omega_2) \cdot \chi^{(1)}(\omega_1) \cdot \chi^{(1)}(\omega_2) \end{aligned}$$

und schließlich:

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

- Millers Regel

Empirisch ist für alle Kristalle der Ausdruck

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

konstant. Dies ist nach dem obigen der Fall, wenn  $\frac{m \cdot a}{N^2 \cdot e^3}$  für alle Kristalle gleich ist.  $N$  ist in allen Kristallen etwa gleich. Abschätzung für  $a$ : lineare und der quadratischer Term etwa gleich, wenn die Auslenkung  $d$  etwa einer Atomgröße entspricht, also

$$\begin{aligned} m\omega_o^2 d &= m \cdot a \cdot d^2 \\ a &= \frac{\omega_o^2}{d} \end{aligned}$$

Da  $\omega_o$  und  $d$  auch in etwa gleich ist für alle Kristalle, ist auch  $a$  eine konstante Größe und Millers Regel ist plausibel. W

- Zahlen

Wie groß ist

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

Für den nichtresonanten Fall gilt  $\omega \ll \omega_o$  und damit

$$D(\omega) = \omega_o^2 - \omega^2 - 2i\omega\gamma \sim \omega_o^2 \quad \text{wenn } \omega \ll \omega_o.$$

Außerdem ist

$$N \sim \frac{1}{d^3}$$

und mit

$$a \sim \frac{\omega_o^2}{d}.$$

gilt

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

Also

$$\begin{aligned} \omega_o &\sim 1 \cdot 10^{16} \frac{1}{s}, \quad d = 3\text{\AA}, \quad e = 4.8 \cdot 10^{-10} \text{esu} \\ m &= 9.1 \cdot 10^{-28} g \\ \chi^{(2)} &\simeq 3 \cdot 10^{-8} \text{esu} \end{aligned}$$

In SI-Einheiten gilt

$$\chi^{(2)} = \frac{4\pi}{3 \cdot 10^4} \chi^{(2)} [\text{esu}] = 4\pi \cdot 10^{-12} \frac{m}{V}.$$

- Suszeptibilitätstensor

Die Suszeptibilität zweiter Ordnung verbindet zwei elektrische Feldvektoren zu einem Polarisationsvektor. Er ist also ein Tensor zweiter Stufe, also ein Objekt mit 3 Indizes mit Werten 1, 2 und 3.

$$\begin{aligned}\vec{P}(\omega) &= \chi^{(2)} \cdot \vec{E}_1(\omega_1) \cdot \vec{E}_2(\omega_2) \\ P_i(\omega) &= \sum_{jk} \sum_{nm} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) \cdot E_k(\omega_m)\end{aligned}$$

Die insgesamt 27 Koeffizienten (bei nur zwei einfallenden Frequenzen) reduzieren sich bei einer gegebenen Strahlgeometrie und Polarisation der einfallenden Felder zu einer einzigen Zahl  $d_{eff}$ , die dann die Amplitude der Polarisationswelle mit den Amplituden der Felder verbindet.

$$P(\omega) = d_{eff} \cdot E_1(\omega_1) \cdot E_2(\omega_2)$$

Wie man  $d_{eff}$  aus den kristallographischen Daten und aus der Geometrie des Lichtfeldes bestimmt ist im Anhang A und B beschrieben.

# Chapter 2

## Wellengleichungen mit $\chi^{(2)}$ -Suszeptibilität

- Physikalisches Bild

Dipole werden durch das einfallende Feld zu nichtlinearen Schwingungen z. B. bei der doppelten Frequenz angeregt. Die von den Dipolen abgestrahlten Wellen haben eine feste Phasenlage, die durch das einfallende Feld bestimmt ist. Optimale Lichtleistung bekommt man, wenn alle abgestrahlten Wellen konstruktiv interferieren, d.h. "Phasen Anpassung" erfüllt ist. Wie groß ist dann die abgestrahlte Lichtleistung?

### 2.1 Ableitung der Wellengleichung

- Maxwell Gleichungen

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= 4\pi\rho \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{1}{c}\dot{\vec{B}} \\ \vec{\nabla} \times \vec{B} &= \frac{1}{c}\dot{\vec{D}} + \frac{4\pi}{c}\vec{J}.\end{aligned}$$

Ohne äußere Ströme und Ladungen und in nichtmagnetischen Materialien gilt

$$\begin{aligned}\rho &= 0, \vec{j} = 0, \\ \vec{B} &= \vec{H}, \\ \vec{D} &= \vec{E} + 4\pi\vec{P}.\end{aligned}$$

Es bleibt also

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{1}{c} \dot{\vec{B}} \\ \vec{\nabla} \times \vec{B} &= \frac{1}{c} \dot{\vec{D}}.\end{aligned}$$

Wir bilden die Wellengleichung nach dem üblichen Muster:

$$\underbrace{\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{E}}_{-\nabla^2 \vec{E} + \nabla(\nabla \cdot \vec{E})} = -\frac{1}{c} \vec{\nabla} \times \dot{\vec{B}} = -\frac{1}{c^2} \ddot{\vec{D}} = -\frac{1}{c^2} (\ddot{\vec{E}} + 4\pi \ddot{\vec{P}})$$

$$-\nabla^2 \vec{E} + \frac{1}{c^2} \ddot{\vec{E}} = -\frac{4\pi}{c^2} \ddot{\vec{P}}$$

Hier haben wir angenommen, daß  $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$ . Das gilt nur für lineare Medien denn aus

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0$$

folgt

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot (\vec{E} + 4\pi \vec{P}) &= 0 \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{E} &= -4\pi \vec{\nabla} \cdot \vec{P}.\end{aligned}$$

Für den Fall, dass die Polarisierung linear vom elektrischen Feld abhängt, also dass

$$\vec{P} = \chi^{(1)} \cdot \vec{E},$$

folgt

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = -4\pi \chi^{(1)} \vec{\nabla} \cdot \vec{E}$$

was nur erfüllt ist falls

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0.$$

Für nichtlineare Medien wird der Term  $\vec{\nabla} \cdot \vec{E}$  im allgemeinen also nicht verschwinden. Er ist aber klein und kann vernachlässigt werden. Für ebene Wellen verschwindet er sowieso.

- Nichtlineare Polarisation

Zerlegen der Polarisierung in einen linearen und einen nichtlinearen Term:

$$\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(nl)}.$$

Entsprechend kann man das  $D$ -Feld in einen linearen und einen nichtlinearen Teil zerlegen:

$$\begin{aligned}\vec{D} &= \vec{E} + 4\pi\vec{P} \\ &= \underbrace{\vec{E} + 4\pi\vec{P}^{(1)}}_{:=\vec{D}^{(1)}} + 4\pi\vec{P}^{(nl)}.\end{aligned}$$

Mit dieser Definition für  $\vec{D}^{(1)}$  erhält man

$$4\pi\vec{P}^{(1)} = \vec{D}^{(1)} - \vec{E}$$

und

$$4\pi\vec{P} = \vec{D}^{(1)} - \vec{E} + 4\pi\vec{P}^{(nl)}.$$

Eingesetzt in die Wellengleichung ergibt

$$\begin{aligned}-\nabla^2\vec{E} + \frac{1}{c^2}\ddot{\vec{E}} &= -\frac{1}{c^2}\ddot{\vec{D}^{(1)}} + \frac{1}{c^2}\ddot{\vec{E}} - \frac{4\pi}{c^2}\ddot{\vec{P}^{(nl)}} \\ -\nabla^2\vec{E} + \frac{1}{c^2}\ddot{\vec{D}^{(1)}} &= -\frac{4\pi}{c^2}\ddot{\vec{P}^{(nl)}}.\end{aligned}$$

Den linearen Teil von  $D$  kann man durch den linearen Teil der dielektrischen Funktion

$$\varepsilon^{(1)} = 1 + 4\pi\chi^{(1)}$$

mit dem Feld  $E$  in Verbindung bringen:

$$\vec{D}^{(1)} = \varepsilon^{(1)}\vec{E}.$$

Im allgemeinen ist  $\varepsilon$  ein Tensor, der allerdings nur in doppelbrechenden Kristallen von der Einheitsmatrix abweicht. In homogenen Materialien ist  $\varepsilon^{(1)}$  eine Zahl und man erhält:

$$-\nabla^2\vec{E} + \frac{\varepsilon^{(1)}}{c^2}\ddot{\vec{E}} = -\frac{4\pi}{c^2}\ddot{\vec{P}^{(nl)}}$$

In isotropen nichtmagnetischen Medien ist  $\mu = 1$  und damit  $\varepsilon^{(1)} = n^2$  d. h. man kann dann die lineare Polarisierung in den Brechungsindex absorbieren.

- Moden-Gleichungen

Abkoppeln der Zeitabhängigkeit durch den Ansatz

$$\begin{aligned}\vec{E}(\vec{r}, t) &= \sum_n \vec{E}_n(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_n t} + c.c. \\ \vec{D}^{(1)}(\vec{r}, t) &= \sum_n \vec{D}_n^{(1)}(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_n t} + c.c. \\ \vec{P}(\vec{r}, t) &= \sum_n \vec{P}_n(\vec{r}) \cdot e^{-i\omega_n t} + c.c.\end{aligned}$$

Die Frequenzkomponenten von  $D$  und  $E$  hängen über die frequenzabhängige dielektrische Funktion  $\varepsilon^{(1)}(\omega)$  zusammen

$$\vec{D}^{(1)}(\vec{r}) = \varepsilon^{(1)}(\omega_n)\vec{E}_n(\vec{r}),$$

die im Falle von Verlusten auch komplex sein kann. Als Ergebnis erhält man für die Moden:

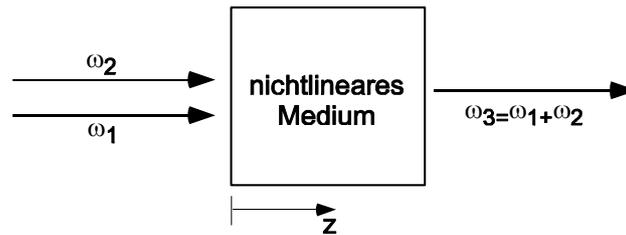
$$-\nabla^2 \vec{E}_n(\vec{r}) - \frac{\omega_n^2}{c^2} \varepsilon^{(1)}(\omega_n) \vec{E}_n(\vec{r}) = \frac{4\pi\omega_n^2}{c^2} \vec{P}_n^{(nl)}(\vec{r}).$$

Die nichtlineare Polarisation wirkt also als Quelle für die elektromagnetische Welle der entsprechenden Frequenz.

## 2.2 Gekoppelte Gleichungen für Summenmischung

- Szenario

Zwei ebene Wellen mit der Frequenz  $\omega_1$  und  $\omega_2$  werden überlagert und in einen Kristall geschickt. Im Kristall entsteht eine dritte ebene Welle mit der Frequenz  $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$



Für jede Welle erhält man eine Differentialgleichung mit der entsprechenden Polarisation als Treiberterm. Für die neu erzeugte Welle mit der Frequenz  $\omega_3$  machen wir den Ansatz

$$E_3(z, t) = A_3(z)e^{i(k_3z - \omega_3t)} + cc$$

wobei die Wellenzahl

$$k_3 = \frac{n_3 \cdot \omega_3}{c}$$

und der Brechungsindex

$$n_3 = \sqrt{\varepsilon^{(1)}(\omega_3)}.$$

Für alle drei Frequenzkomponenten haben wir ebene Wellen angenommen, was später sicher noch verfeinert und auf Laserstrahlen angepasst werden muss. Zunächst betrachten wir aber Wellen, die in  $x$ - und  $y$ -Richtung unendlich ausgedehnt sind. Wie ändert sich die Amplitude  $A_3(z)$  mit dem Ort  $z$  ?

- Quelle

Wir benötigen hierzu die Polarisierung als Quelle in der Wellengleichung.

$$\vec{P}_3(z, t) = \vec{P}_3(z)e^{i\omega_3 t} + c.c.$$

Bei festgelegter Richtung der Feldstärkevektoren relativ zu den Kristallachsen kann man einen effektiven nichtlinearen Koeffizienten  $d$  bestimmen und man erhält für die Amplitude der Felder

$$\begin{aligned} P_3 &= 4d \cdot E_1 \cdot E_2 \\ &= 4dA_1(z)A_2(z)e^{i(k_1+k_2)z} \end{aligned}$$

wobei wie oben

$$E_i(z, t) = E_i e^{-i\omega_i t} + c.c.$$

und

$$E_i = A_i(z)e^{ik_i z}.$$

(Der Index  $i$  ist entweder 1, 2 oder 3.)

- Amplitudengleichung

Alles in die Wellengleichung einsetzen:

$$\begin{aligned} &\left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} A_3 + 2ik_3 \frac{\partial A_3}{\partial z} - k_3^2 A_3 + \frac{\varepsilon^{(1)}(\omega_3)\omega_3^2 A_3}{c^2} \right) e^{i(k_3 z - \omega_3 t)} + c.c. \\ &= \frac{-16\pi\omega_3^2 d}{c} \cdot A_1 A_2 e^{i(k_1+k_2)z - \omega_3 t} + c.c. \end{aligned}$$

Da

$$k_3^2 = \varepsilon^{(1)}(\omega_3) \cdot \frac{\omega_3^2}{c^2},$$

fallen die beiden letzten Terme in der Klammer raus. Außerdem gilt die Gleichung auch unter Streichung der komplex konjugierten Terme auf beiden Seiten. Unter Kürzen von  $e^{-i\omega_3 t}$  erhält man schließlich:

$$\frac{d^2 A_3}{dz^2} + 2ik_3 \frac{dA_3}{dz} = \frac{-16\pi\omega_3^2 d}{c^2} \cdot A_1 A_2 e^{-\Delta k z}$$

mit

$$\Delta k := k_1 + k_2 - k_3.$$

- Langsam veränderliche Amplitude

Da  $A_3$  nur langsam in  $z$  variieren soll, können wir den ersten Term vernachlässigen. Die schnelle räumliche Oszillation ist schon im Exponentialterm enthalten. Die Bedingung lautet:

$$\left| \frac{d^2 A_3}{dz^2} \right| \ll \left| k_3 \frac{dA_3}{dz} \right|.$$

Schließlich erhält man:

$$\frac{dA_3}{dz} = \frac{8\pi id\omega_3^2}{k_3 c^2} A_1 \cdot A_2 \cdot e^{i\Delta k z}$$

Genauso kann man die Wellengleichung für die beiden anderen Wellen umschreiben:

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= \frac{8\pi id\omega_1^2}{k_1 c^2} A_3 \cdot A_2^* \cdot e^{-i\Delta k z} \\ \frac{dA_2}{dz} &= \frac{8\pi id\omega_2^2}{k_2 c^2} A_3 \cdot A_1^* \cdot e^{-i\Delta k z} \end{aligned}$$

Die erste Gleichung beschreibt die Erzeugung der Summenfrequenz-Komponente. Die beiden letzten Gleichungen beschreiben die Dämpfung der Amplituden der eingestrahlten Wellen aufgrund der Umwandlung in die dritte Komponente.

- Näherung für schwache Konversion

Falls der Kristall kurz oder die Lichtleistung gering ist, wird nur wenig Licht umgewandelt und man kann vernünftigerweise annehmen, daß die beiden eingestrahlten Komponenten  $A_1$  und  $A_2$  nur wenig gedämpft werden. Für räumlich konstante Amplituden  $A_1$  und  $A_2$  lautet die Lösung für  $A_3$ :

$$\begin{aligned} A_3(L) &= \frac{8\pi id\omega_3^2 A_1 A_2}{k_3 c^2} \int_0^L e^{i\Delta k z} dz \\ &= \frac{8\pi id\omega_3^2 A_1 A_2}{k_3 c^2} \cdot \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k}. \end{aligned}$$

Uns interessiert die Intensität mehr als das Feld. Mit der Verbindung von Feld und Intensität:

$$I = \frac{nc}{2\pi} |A|^2$$

erhält man

$$I_3 = \frac{32\pi d^2 \omega_3^4 |A_1|^2 |A_2|^2 n_3}{k_3^2 c^3} \left| \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right|^2.$$

Der letzte Term wird umgeformt:

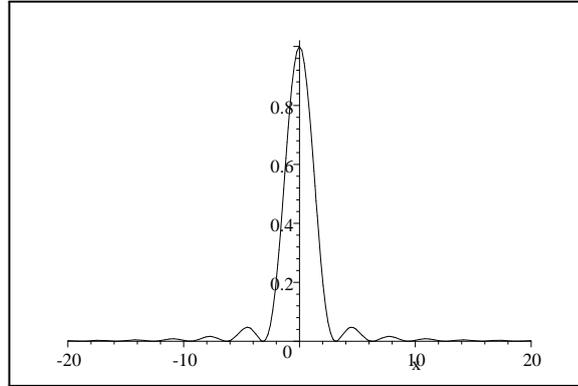
$$\begin{aligned} \left| \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k} \right|^2 &= L^2 \left( \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{\Delta k L} \right) \left( \frac{e^{-i\Delta k L} - 1}{\Delta k L} \right) \\ &= 2L^2 \frac{1 - \cos \Delta k L}{(\Delta k L)^2} \\ &= L^2 \frac{\sin^2 \Delta k L / 2}{(\Delta k L / 2)^2} = L^2 \cdot \text{sinc}^2 \left( \Delta k \frac{L}{2} \right) \end{aligned}$$

und schließlich:

$$I_3 = \frac{512\pi^5 d^2 I_1 I_2}{n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2 c} L^2 \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right)$$

- Phasenanpassung

Die Intensität als Funktion von  $\Delta k L$  sieht etwa so aus:



Die sinc-Funktion

Das Maximum erhält man also für  $\Delta k = 0$  oder  $k_3 = k_1 + k_2$ . In diesem Fall spricht man von Phasenanpassung.

- Impulserhaltung

Interpretiert man den Vorgang als die Vereinigung zweier Photonen zu einem dritten, so erhält man gerade die Impulserhaltung

$$\hbar k_3 = \hbar k_1 + \hbar k_2.$$

Die Energieerhaltung ist sowieso oben gegeben durch

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

Die beiden Bedingungen unterscheiden sich, da die Impulserhaltung im Kristall gilt und dabei der Brechungsindex bei der jeweiligen Frequenz berücksichtigt werden muß. Je länger der Kristall ist, umso besser muss die Impulserhaltung erfüllt sein. Als Maß für die Unschärfe  $\Delta k_{1/2}$  mit der die Impulserhaltung erfüllt sein muss, bietet sich der Wert an, bei dem  $\frac{L\Delta k_{1/2}}{2} = 1$  (Abfall der Intensität auf 70 %). Die Länge des Kristalls kann man als Ortsunschärfe betrachten, da man nicht sagen kann, wo im Kristall der 3-Photonenprozess stattgefunden hat,  $\Delta x = \frac{L}{2}$ . Damit erhält man die Orts-Impuls-Unschärfebeziehung:

$$\Delta k_{1/2} \cdot \Delta x = 1$$

- Die Manley-Rowe Relationen

Wir betrachten statt der Felder die räumliche Änderung der Intensitäten. Aus

$$I = \frac{nc}{2\pi} AA^*$$

folgt

$$\frac{dI}{dz} = \frac{nc}{2\pi} \left( A^* \frac{dA}{dz} + A \cdot \frac{dA^*}{dz} \right).$$

Benutzen wir die obige Dgl. für  $\frac{dA}{dz}$  und setzen sie ein, erhält man:

$$\begin{aligned} \frac{dI_1}{dz} &= \frac{n_1 c}{2\pi} \frac{8\pi\omega_1^2}{k_1 c^2} d (iA_1^* A_3 A_2^* e^{i\Delta kz} + c.c.) \\ &= 4\omega_1 d (iA_3 A_1^* A_2^* e^{-i\Delta kz} + c.c.) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{dI_1}{dz} &= -8\omega_1 d \operatorname{Im} (A_3 A_1^* A_2^* e^{-i\Delta kz}) \\ \frac{dI_2}{dz} &= -8\omega_2 d \operatorname{Im} (A_3 A_1^* A_2^* e^{-i\Delta kz}) \\ \frac{dI_3}{dz} &= 8\omega_3 d \operatorname{Im} (A_3 A_1^* A_2^* e^{-i\Delta kz}) \end{aligned}$$

Aus den Gleichungen folgt:

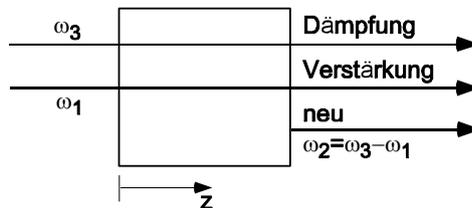
$$\frac{d}{dz} \left( \frac{I_1}{\omega_1} \right) = \frac{d}{dz} \left( \frac{I_2}{\omega_2} \right) = -\frac{d}{dz} \left( \frac{I_3}{\omega_3} \right)$$

Der Ausdruck  $\frac{I}{\omega}$  beschreibt die Anzahl der Photonen in der Lasermode. Es wird also gleichzeitig jeweils ein Photon aus der Mode 1 und eines aus der Mode 2 entfernt und dabei ein Photon in der Mode 3 erzeugt.

## 2.3 Parametrische Verstärkung und Differenz-Mischung

- Szenario

Die Manley-Rowe Gleichung zeigt, dass die Mode mit der höchsten Frequenz (Mode 3) Energie an die beiden anderen Frequenzen abgeben kann. Wenn man Komponenten mit den Frequenzen  $\omega_3$  und  $\omega_1$  einstrahlt, erhält man Verstärkung auf  $\omega_1$ , Dämpfung auf  $\omega_3$  und es bildet sich eine neue Komponente bei der Frequenz  $\omega_2$ .



- Amplitudengleichungen

Die Dämpfung der eingestrahlten Komponente bei  $\omega_3$  wird vernachlässigt, d.h.  $A_3$  sei konstant:

$$\begin{aligned}\frac{dA_1}{dz} &= \frac{8\pi i \omega_1^2 d}{k_1 c^2} A_3 A_2^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{dA_2}{dz} &= \frac{8\pi i \omega_2^2 d}{k_2 c^2} A_3 A_1^* e^{i\Delta k z}\end{aligned}$$

wobei

$$\Delta k = k_3 - k_1 - k_2.$$

(Achtung:  $\Delta k$  ist hier gerade das negative des  $\Delta k$  bei der Summenfrequenzmischung). Nach ableiten der zweiten Gleichung und einsetzen der ersten erhält man für  $\Delta k = 0$ :

$$\frac{d^2 A_2}{dz^2} = \frac{64\pi^2 i \omega_1^2 \omega_2^2 d^2}{k_1 k_2 c^4} A_3 A_3^* A_2 = K^2 A_2$$

oder

$$\frac{d^2 A_2}{dz^2} = K^2 A_2$$

wobei die Pumpintensität und alle fixen Größen in den Koeffizienten  $K$  absorbiert werden können.

$$K^2 := \frac{64\pi^2 d^2 \omega_1^2 \omega_2^2}{k_1 k_2 c^4} |A_3|^2.$$

Die Lösung der Differentialgleichung lautet

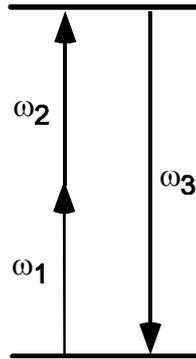
$$A_2(z) = C \cdot \sinh(Kz) + D \cdot \cosh(Kz).$$

Mit dieser Lösung kann man jetzt auch die DGL für  $A_1(z)$  integrieren. Mit den Randbedingung  $A_2(z=0)$  d.h.  $D=0$  und  $A_1(z=0) = A_1(0)$  erhält man

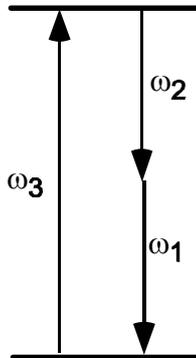
$$\begin{aligned}A_1(z) &= A_1(0) \cosh(Kz) \\ A_2(z) &= i \sqrt{\frac{n_1 \omega_2}{n_2 \omega_1}} \cdot \frac{A_3}{|A_3|} A_1^*(0) \sinh(Kz)\end{aligned}$$

- Photonenbild

Im Photonenbild kann man die Vernichtung eines Photons als Pfeil nach oben und die Erzeugung als Pfeil nach unten auftragen (nicht verwechseln mit den Pfeildiagrammen in Zusammenhang mit der Suszeptibilität). Bei der Summenmischung werden  $\omega_1, \omega_2$  vernichtet und  $\omega_3$  wird erzeugt.

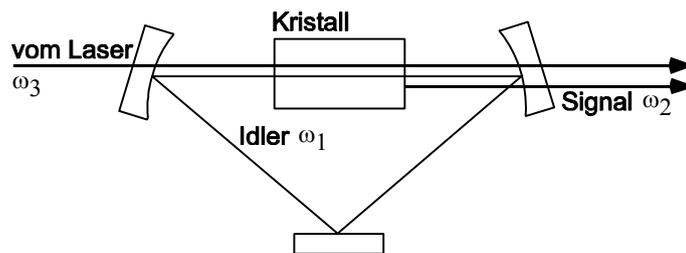


Differenzmischung:  $\omega_3$  wird vernichtet, Paare von  $\omega_1, \omega_2$  werden erzeugt.



Die Frequenzen  $\omega_1, \omega_2$  werden durch Phasen Anpassung festgelegt.

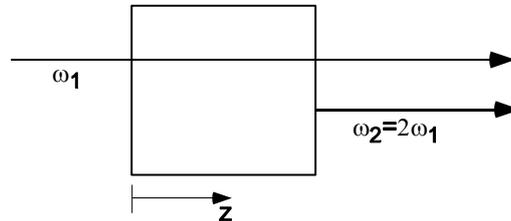
- Parametrischer Oszillator



Im parametrischen Oszillator wird die Welle mit  $\omega_1$  in einem Resonator aufgebaut. Da für diese Welle Verstärkung vorliegt, entsteht sie ähnlich wie im Laser, wenn die Verluste pro Umlauf kleiner sind als die Verstärkung. Es existiert also ein Schwelle, d.h. eine minimale Leistung der Welle mit  $\omega_3$  ab der der parametrische Oszillator anspringt. Oberhalb der Schwelle ist die Umwandlung von  $\omega_3$  nach  $\omega_2$  sehr effizient. Man erhält eine breit durchstimmbare kohärente Lichtquellen im Infraroten.

## 2.4 Frequenzverdopplung im einfachen Durchgang

- Szenario



Es gibt ein Fundamentalfeld bei der Frequenz  $\omega_1$  und ein Harmonisches Feld bei  $\omega_2 = 2\omega_1$ :

$$\begin{aligned} E(z, t) &= E_1(z, t) + E_2(z, t) \\ &= A_1(z)e^{i(k_1z - \omega_1t)} + A_2(z)e^{i(k_2z - \omega_2t)} \end{aligned}$$

mit den Wellenzahlen

$$k_j = \frac{n_j \omega_j}{c}$$

und den Brechungsindizes

$$n_j = \sqrt{\varepsilon^{(1)}(\omega_j)}.$$

- Lösung der Amplitudengleichung

Nach Einsetzen in die Wellengleichung erhält man die gekoppelten Amplitudengleichungen:

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dz} &= \frac{8\pi i \omega_1 d}{k_1 c^2} A_2 A_1^* e^{-i\Delta k z} \\ \frac{dA_2}{dz} &= \frac{4\pi i \omega_2^2 d}{k_2 c^2} A_1^2 e^{i\Delta k z} \end{aligned}$$

mit

$$\Delta k = 2k_1 - k_2$$

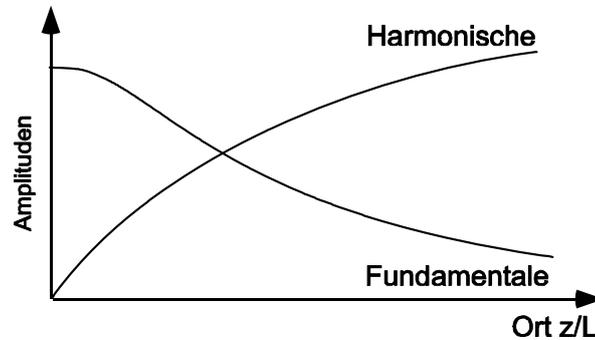
Die Gleichungen können gelöst werden (siehe Boyd Seite 79 ff) mit dem Ergebnis für den phasenangepassten Fall ( $\Delta k = 0$ ):

$$\begin{aligned} I_2 &= I_{in} \cdot \tanh^2\left(\frac{z}{l}\right) \\ I_1 &= I_{in} \cdot \operatorname{sech}^2\left(\frac{z}{l}\right) \end{aligned}$$

mit

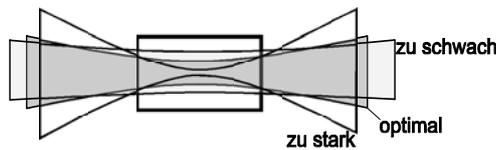
$$l := \frac{\sqrt{n_1 n_2} c}{8\pi \omega_1 d |A_1(0)|}.$$

Die Gesamtintensität wird mit  $I_{in} = I_1 + I_2 = I_1(z = 0)$  bezeichnet. Wegen der Energieerhaltung ist sie unabhängig von  $z$  und damit gleich der eingestrahelten Intensität  $I_1(z = 0)$ .



- Abschätzung der Konversionseffizienz

Welche Leistungen kann man erwarten? Für beliebig hohe Felder  $A_1(0)$  ist  $l$  beliebig kurz und damit die Konversion beliebig effizient. Welche Felder man erreichen kann hängt vom Fokus ab. Der Fokus ist so gewählt, dass über die Länge des Kristalls  $L$  die Intensität maximal ist.



Die Länge des Fokus wird durch den konfokalen Parameter  $b = k \cdot w_0^2$  beschrieben, wobei  $w_0$  der Strahlradius im Fokus ist. Mit  $b = L$  erhält man etwa das Optimum (Begründung später ausführlich). Die über das Strahlprofil gemittelte Intensität ist dann

$$I = \frac{P}{\pi w_0^2}.$$

Mit

$$I_1 = \frac{nc}{2\pi} A_1^2,$$

$$A_1 = \sqrt{\frac{4\pi P}{c\lambda_1 L}},$$

ergibt sich für das Verhältnis

$$\frac{L}{l} = \sqrt{\frac{1024\pi^5 d^2 LP}{n_1 n_2 c \lambda_1^3}}$$

Zahlen: Für

$$\begin{aligned} d &= 1 \cdot 10^{-8} \text{esu}, \\ L &= 1 \text{cm} \\ P &= 1 \text{W} = 1 \cdot 10^7 \text{erg/sec} \\ \lambda &= 0.5 \cdot 10^{-4} \text{cm} \sim 500 \text{nm} \text{ (grün)} \\ n &= 2 \end{aligned}$$

erhält man

$$\frac{L}{l} = 0.14.$$

Für die Effizienz ergibt sich daraus

$$\frac{I_2}{I_1} = \frac{\tanh^2 \frac{L}{l}}{\text{sech}^2 \left( \frac{0}{l} \right)} \approx 2\%$$

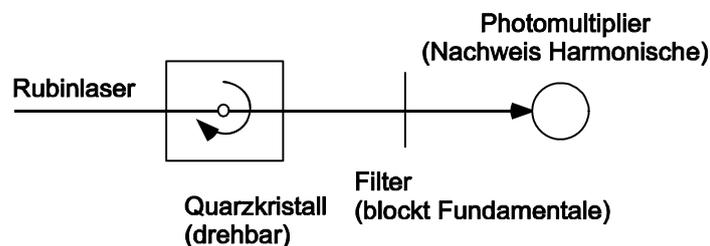
## 2.5 Phasen Anpassungsmethoden

- Maker fringes

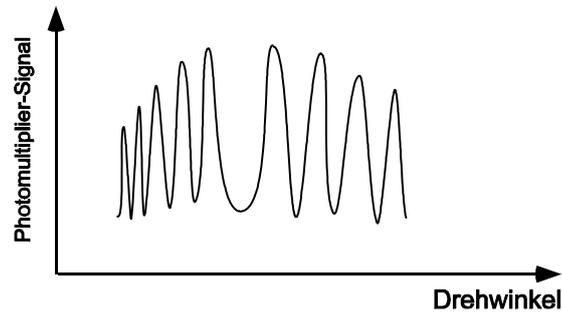
Wir haben gesehen, dass z. B. bei der Summenfrequenzmischung die Ausgangsleistung von der Phasen Anpassung abhängt

$$I_3 = I_{3\omega \max} \cdot \left( \frac{\sin(\frac{1}{2}\Delta kl)}{\frac{1}{2}\Delta kl} \right)^2.$$

Experimentell wurde dieser Effekt von P. D. Maker 1962 zum ersten Mal für Frequenzverdopplung beobachtet:



Durch die Drehung ändert sich die effektive Länge des Kristalls und damit  $l$ :



”Maker”-fringes (”Maker”-Interferenzen). Optimalerweise hätte man gerne perfekte Phasenanpassung, d.h.  $\Delta k = 0$ . bzw.

$$k_3 = k_1 + k_2.$$

In Frequenzen ausgedrückt lautet die Bedingung

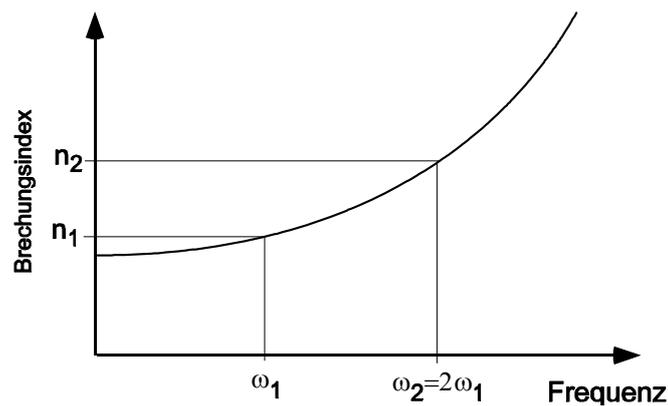
$$n_3\omega_3 = n_1\omega_1 + n_2\omega_2,$$

wobei die Frequenzen festgelegt sind

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2.$$

- Normale Dispersion

In optischen Kristallen steigt der Brechungsindex mit der Frequenz an (normale Dispersion).



Im Fall der Frequenzverdopplung sieht man sofort, dass es Probleme gibt, denn aus

$$\Delta k = 0$$

folgt

$$k_2 = 2k_1$$

und

$$n_2\omega_2 = 2n_1\omega_1.$$

Mit

$$\omega_2 = 2\omega_1$$

ist obige Gleichung nur erfüllt, wenn

$$n_2 = n_1 \quad \text{bzw.} \quad n(\omega_2) = n(\omega_1).$$

Bei Dispersion ist die Phasenanpassungsbedingung also nicht erfüllbar. Auch für Summenfrequenzmischung ist keine Phasenanpassung möglich. Aus

$$\Delta k = 0$$

folgt

$$n_3 = \frac{n_1\omega_1 + n_2\omega_2}{\omega_3}.$$

Wir bilden den Ausdruck  $n_3 - n_2$  und verwenden obige Form der Phasenanpassung:

$$\begin{aligned} n_3 - n_2 &= \frac{n_1\omega_1 - n_2\omega_2}{\omega_3} - n_2 = \frac{n_1\omega_1 + n_2\omega_2 - n_2\omega_3}{\omega_3} \\ &= \frac{n_1\omega_1 - n_2(\omega_3 - \omega_2)}{\omega_3} = \frac{n_1\omega_1 - n_2\omega_1}{\omega_3} \quad \text{oder} \\ n_3 - n_2 &= ((n_1 - n_2)\frac{\omega_1}{\omega_3}) \end{aligned}$$

da  $n_3 > n_2 > 1$  ist der linke Ausdruck positiv und der rechte negativ. Damit kann die Gleichung nicht erfüllt werden. In doppelbrechenden Kristallen ist das allerdings doch möglich.

- doppelbrechende Kristalle, Indikatrix

Abhängig von der Polarisation des Lichts kann der Brechungsindex verschieden sein. Das Verhalten wird durch die Indikatrix beschrieben. Sie beruht auf der Tatsache, daß sich die Energiedichte  $W_e$  in einem anisotropen Medium schreiben lässt als

$$8\pi W_e = \frac{D_x^2}{\epsilon_x} + \frac{D_y^2}{\epsilon_y} + \frac{D_z^2}{\epsilon_z}.$$

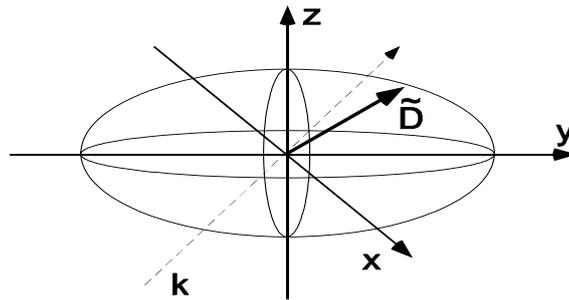
Der Vektor  $\vec{D}$  ist die dielektrische Verschiebung und  $\epsilon$  ist der dielektrische Tensor, der sich diagonalisieren lässt. Die Diagonalelemente lauten dann  $\epsilon_x, \epsilon_y,$  und  $\epsilon_z$ . Führt man den Vektor

$$\tilde{D} = \frac{1}{\sqrt{8\pi W_e}} D$$

ein, so schreibt sich die Energiegleichung als

$$\frac{\tilde{D}_x^2}{n_x^2} + \frac{\tilde{D}_y^2}{n_y^2} + \frac{\tilde{D}_z^2}{n_z^2} = 1.$$

Die Länge des Vektors  $\tilde{D}$  ist unabhängig von der Lichtintensität und liegt auf einem Ellipsoid, wobei die Längen der drei Hauptachsen gerade durch die drei Brechungsindizes gegeben sind. Der Vektor  $\tilde{D}$  verknüpft also die Polarisation des Lichtfeldes mit dem Brechungsindex.

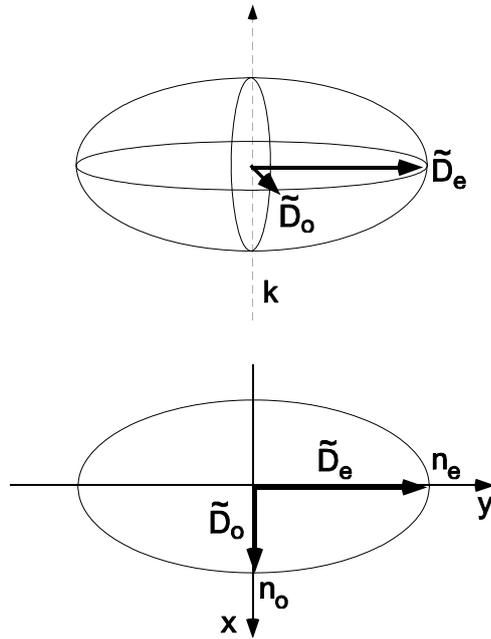


- Ordentliche und Außerordentliche Polarisation

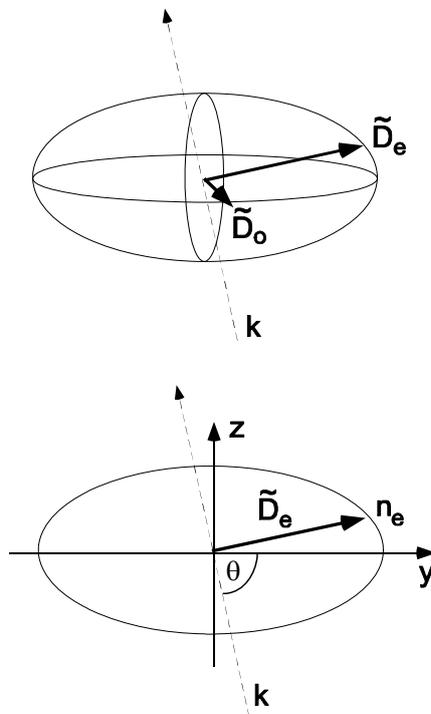
Löst man die Wellengleichung im anisotropen Medium erhält man zwei Lösungen mit zueinander rechtwinklig stehenden Polarisationen und verschiedenen Brechungsindizes. Eine einfallende Lichtwelle mit beliebiger Polarisation muss im Kristall in eine Überlagerung dieser beiden Lösungen zerlegt werden. Beide Komponenten breiten sich unabhängig mit verschiedenem Brechungsindex aus und überlagern sich nach Austritt aus dem Kristall wieder. Man definiert die "optische Achse" als die Richtung des  $k$ -Vektors der Welle für die der Brechungsindex unabhängig von der Polarisation des Lichts ist. Der dazugehörige Brechungsindex ist der "ordentliche" Brechungsindex. Für eine Indikatrix mit gleichem  $n_x$  und  $n_z$  ist die optische Achse gerade die  $y$ -Achse. Kristalle mit zwei gleichen Brechungsindizes (z.B.  $n_x = n_z$ ) haben nur eine solche optische Achse und heißen deshalb "uniaxial". Für Kristalle mit drei verschiedenen Brechungsindizes,  $n_x \neq n_y \neq n_z$ , gibt es zwei optische Achsen ("biaxiale" Kristalle).

- Uniaxiale Kristalle

Wir betrachten hier nur uniaxiale Kristalle. Im einfachsten Fall liegt der  $k$ -Vektor des Lichts in der Ebene mit gleichen Brechungsindizes also in unserem Beispiel parallel zur  $z$ -Achse:



Die Polarisationsrichtung mit ordentlichem Brechungsindex  $n_0$  liegt dann parallel zur  $x$ - Achse. Die außerordentliche Polarisation liegt parallel zur  $y$ -Achse und erfährt den außerordentlichen Brechungsindex  $n_e$ . Das Licht kann aber auch unter einem Winkel  $\theta$  relativ zur optischen Achse einfallen.



Der ordentliche Brechungsindex bleibt unverändert aber der außerordentliche Brechungsindex ändert sich jetzt gemäß

$$\frac{1}{n_e(\theta)^2} = \frac{1}{n_e^2} \sin^2 \theta + \frac{1}{n_o^2} \cos^2 \theta .$$

Man unterscheidet zwei Typen von uniaxialen Kristallen:

$$\begin{aligned} n_e < n_o & \quad \text{negativ uniaxial} \\ n_e > n_o & \quad \text{positiv uniaxial.} \end{aligned}$$

- Phasenanpassung in doppelbrechenden Kristallen

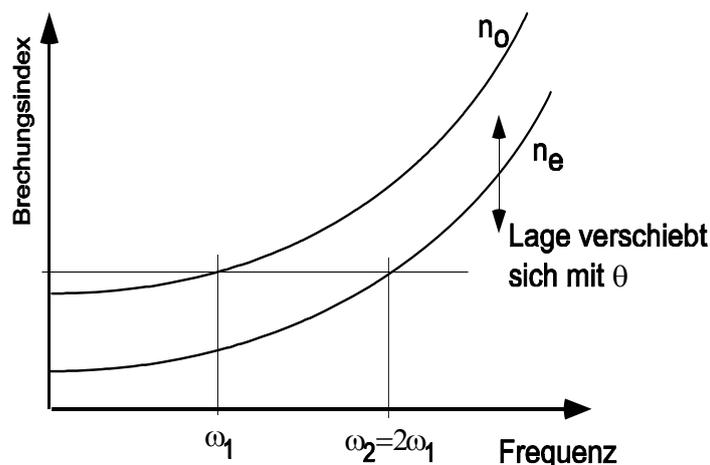
Im Fall der Summenfrequenzmischung können die Eingangsstrahlen und der Ausgangsstrahl verschiedene Polarisierungen haben. Man unterscheidet daher zwei Typen von Phasenanpassung:

- Typ 1 Eingangsstrahlen haben gleiche Polarisation
- Typ 2 Eingangsstrahlen haben unterschiedliche Polarisation

Im Fall der Frequenzverdopplung gilt die Unterscheidung auch. Typ 2 hat man dann, wenn der Eingangsstrahl im Kristall in einen ordentlichen und einen außerordentlichen Strahl zerfällt.

- Verdopplung und Typ I Anpassung

Wählt man für die Verdopplung die Typ 1-Phasenanpassung mit Fundamentalpolarisation entlang  $x$  in einem negativ uniaxialen Kristall ( $\vec{k} \parallel z$ ), so kann man einen verdoppelten Strahl mit Polarisationsrichtung entlang  $y$  genau bei einer bestimmten Frequenz phasenanpassen.



- Phasenanpassungswinkel

Möchte man eine andere Frequenz verdoppeln kann man den Kristall bei konstanter Lichtgeometrie um die  $x$ -Achse drehen. Dabei verändert sich der Brechungsindex für die Harmonische gemäß

$$\frac{1}{n_2(\theta)^2} = \frac{1}{n_e^2} \sin^2 \theta + \frac{1}{n_o^2} \cos^2 \theta .$$

Phasenanpassung ist erreicht, wenn

$$n_2(2\omega, \theta) = n_0(\omega),$$

oder:

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

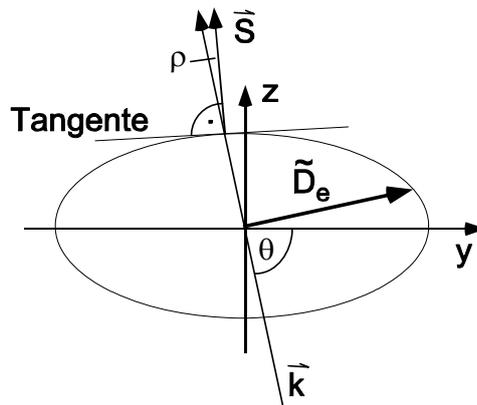
und damit eine Bedingung für den Phasenanpassungswinkel  $\theta$  :

$$\sin^2 \theta = \frac{1/n_o^2(\omega) - 1/n_o^2(2\omega)}{1/n_e^2(2\omega) - 1/n_o^2(2\omega)}.$$

Auf ähnliche Art kann man auch biaxiale Kristalle verwenden. Dort ist die Situation etwas komplizierterer (Details bei Zernike und Midwinter: Applied nonlinear optics, Wiley, New York (1984)).

- "walk off"

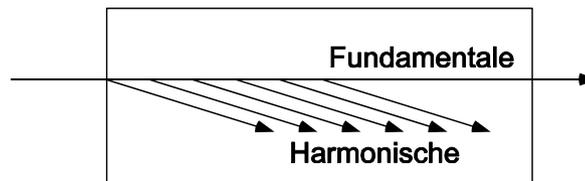
Die Verwendung doppelbrechender Kristalle führt zum sogenannten "walk off"-Problem. In doppelbrechenden Materialien fließt die Energie des außerordentlichen Strahls nicht entlang des  $\vec{k}_2$ -Vektors. Berechnet man den Poyntingvektor, so stellt man einen Winkel  $\rho$  zwischen  $\vec{k}$  und  $\vec{s}$  fest, den man geometrisch aus der Indikatrix ermitteln kann.



Oder als Formel:

$$\tan \rho = \left( \frac{n_o}{n_e} \right)^2 \tan \theta.$$

Selbst wenn der ordentliche Strahl keinen walk off hat (Typ 1), so laufen doch der Fundamentalstrahl und der verdoppelte Strahl auseinander.



- Effizienzminderung durch walk off

walk off mindert Effizienz da das harmonische Feld, das vorne erzeugt wird, hinten nicht mehr mit dem Fundamentalfeld überlappt. Dazu betrachten wir den Energieübertrag an einer Stelle im Kristall. Die nichtlineare Polarisation erzeugt ein kleines Feld  $\Delta E$ , das sich dem schon vorhandenen  $E$  überlagert:

$$E + \Delta E$$

Die Intensität lautet nach der Überlagerung

$$I \sim (E + \Delta E)^2 = E^2 + \Delta E^2 + E \cdot \Delta E$$

$E^2$  entspricht der schon vorhandenen Intensität,  $\Delta E^2$  entspricht der Intensität, die die Polarisation abstrahlen würde, wenn sonst kein Feld da ist,  $E \cdot \Delta E$  ist der zusätzlicher Beitrag bei vorhanden sein eines Feldes! In Gegenwart eines bereits erzeugten harmonischen Feldes wird der nichtlinearen Polarisation mehr Leistung entzogen und die Verdopplungseffizienz verbessert sich. Im Falle eines walk offs ist der Überlapp mit dem bereits erzeugtem Feld schlecht.

- Temperaturanpassung

Ordentlicher und außerordentlicher Brechungsindex können verschieden von der Temperatur abhängen. Für bestimmte Kristalle findet man "nicht kritische" 90°-Phasen Anpassung ohne "walk off" bei der gewünschten Frequenz in einem realistischen Temperaturbereich zwischen  $-30^\circ C$  und  $+300^\circ C$ . Temperaturanpassung ist die einfachste Methode optimale Anpassung zu bekommen. Sie ist aber nur in bestimmten Kristallen und nur in einem begrenzten Wellenlängenbereich machbar.

- Periodisches Polen

Die Intensität der konvertierten Leistung ist laut oben proportional zum Betragsquadrat:

$$\begin{aligned}
 A_3 A_3^* &= K^2 \cdot d^2 |(e^{i\Delta k L} - 1)|^2 \\
 &= K^2 \cdot d^2 (\cos \Delta k L - 1)^2 + \sin^2 \Delta k L \\
 &= -K^2 \cdot d^2 \cdot 2(1 - \cos \Delta k L) \\
 &= -K^2 \cdot d^2 \cdot 4 \sin^2 (\Delta k L / 2) \\
 &= -K^2 \cdot d^2 \cdot 4 \sin^2 \left( \frac{\pi L}{2 l_c} \right)
 \end{aligned}$$

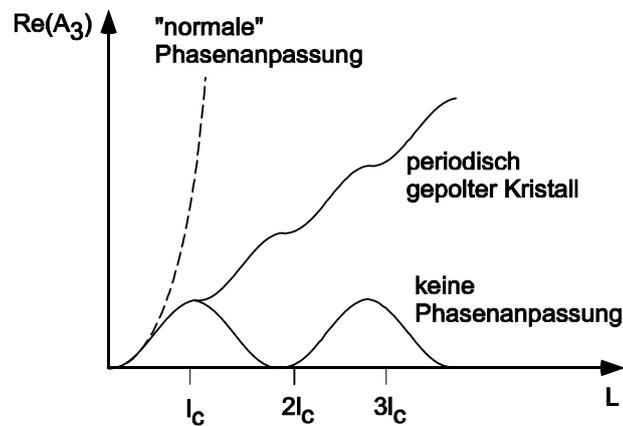
Mit der "Kohärenzlänge"  $l_c$  :

$$\Delta k \cdot l_c = \pi$$

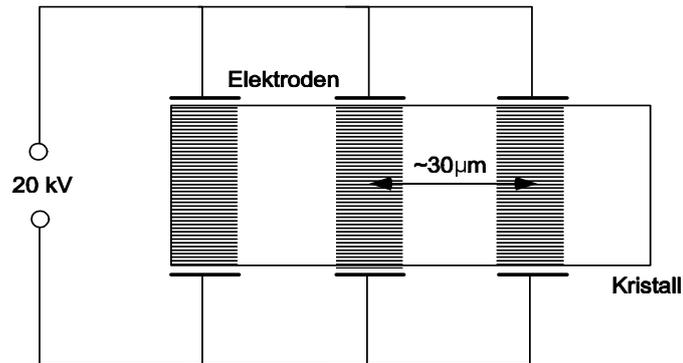
bzw.

$$l_c = \frac{\pi}{\Delta k}.$$

Bis zu einer Länge  $l_c$  baut sich das Summenfeld auf, danach aber wieder ab: Energie fließt zurück zu den Feldern  $A_1$  und  $A_2$ . Der Energieübertrag bliebe positiv, wenn sich genau nach  $l_c$  das Vorzeichen von  $d$  umkehren würde! Die Polarisationswelle ändert dann das Vorzeichen, was einem Phasensprung von  $\pi$  zwischen Polarisationswelle und erzeugtem Feld entspricht. Für eine weitere Strecke der Länge  $l_c$  schwingen dann Polarisation und Feld mit einer Phase, bei der die Energie ins Feld fließt.



Dies gelingt bei bestimmten Materialien wie z. B.  $LiNbO_3$  durch Anlegen eines Feldes:



Das Material zwischen den Elektroden wird "umgepolt" d. h.  $d$  ändert das Vorzeichen. Der Abstand der Elektroden beträgt dabei etwa  $30\mu$ . Vorteil der Methode: starke Nichtlinearitäten können ausgenutzt werden, die sonst nicht phasenangepasst sind. Für  $LiNbO_3$  ist z.B.  $d_{33} = 98esu$ ! sonstige Werte sind typischerweise  $10esu$ . Aufgrund der quadratischen Abhängigkeit der Ausgangsleistung von  $d$  ist der Unterschied beträchtlich. Die Verwendung von  $d_{33}$  erfordert, dass alle Felder parallel stehen, d. h. man kann keine Doppelbrechung ausnutzen.

# Chapter 3

## Nichtlineare Optik mit Gaußstrahlen

### 3.1 Gaußstrahlen

Frequenzkonversion erfordert hohe Intensität auf möglichst großer Länge. Laserstrahlen lassen sich aber nur über eine begrenzte Länge stark fokussieren. Wie beschreibt man Laserstrahlen?

- Wellengleichung.

Ausgangspunkt ist die übliche Wellengleichung

$$\nabla^2 \vec{E} - \left(\frac{n}{c}\right)^2 \ddot{\vec{E}} = \frac{4\pi}{c^2} \ddot{\vec{P}}$$

mit Ansatz für die elektrischen Felder und die Polarisationswellen

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{A}_n(\vec{r}) e^{i(k_n z - \omega_n t)} + c.c.$$

$$\vec{P}(r, t) = \vec{P}_n(\vec{r}) \cdot e^{i(k'_n z - \omega_n t)} + c.c.$$

Polarisation und Feld können verschiedene  $k$ 's haben. Im Fall der Frequenzverdopplung stammt die nichtlineare Polarisation bei der Frequenz der Harmonischen von der Fundamentalen ab und hat daher auch deren Wellenzahl.

- Paraxiale Näherung.

Ansatz in Wellengleichung einsetzen und Terme der Form  $\frac{d^2 A}{dz^2}$  vernachlässigen, ergibt

$$2ik_n \frac{\partial \vec{A}_n}{\partial z} + \nabla_T^2 \vec{A}_n = -\frac{4\pi\omega_n^2}{c^2} \vec{P}_n e^{i\Delta k z},$$

wobei

$$\Delta k := k'_n - k_n,$$

und

$$\nabla_T^2 := \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}.$$

Die Näherung ist gut solange sich das Feld  $E$  hauptsächlich in  $z$ -Richtung bewegt und damit die schnelle räumliche Oszillation im Ansatz bereits erfasst ist.

- Gaußstrahl.

Ohne Polarisations-term, also im außerhalb des Kristalls ist die Lösung der sogenannte Gaußstrahl:

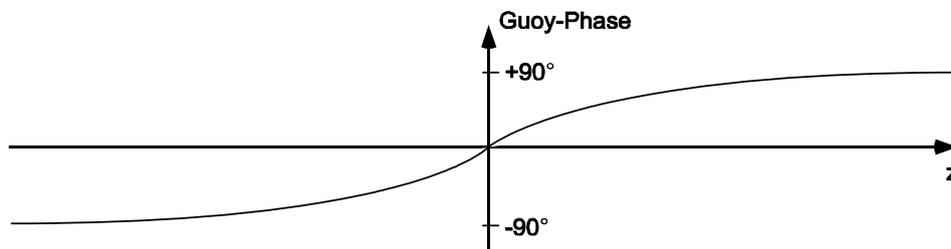
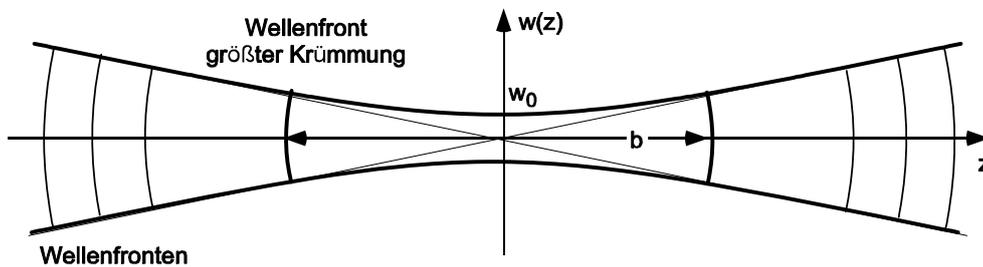
$$\vec{A}(r, z) = \vec{A} \cdot \frac{w_o}{w(z)} \cdot e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} \cdot e^{ik\frac{r^2}{2R(z)}} \cdot e^{i\phi(z)},$$

wobei

$$w(z) = w_o \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_o}\right)^2}$$

mit

$w_o$	Strahltaile (beam waist)
$z_o$	Rayleigh-Länge
$2z_o = b = k \cdot w_o^2$	konfokaler Parameter
$R(z) = z \cdot \left(1 + \left(\frac{z_o}{z}\right)^2\right)$	Krümmungsradius der Wellenfronten
$\phi(z) = -\arctan\left(\frac{z_o}{z}\right)$	Guoy-Phase



Der Krümmungsradius ist maximal für  $z = z_0$  :

$$R(z_0) = R_{\max}.$$

Im Fernfeld kann man den Öffnungswinkel definieren:

$$\begin{aligned} \tan \theta &= \frac{w_o}{z_0} = \frac{w_o}{b/2} = \frac{w_o}{\frac{1}{2}k \cdot w_0^2} = \frac{2}{k \cdot w_o} \\ \tan \theta &= \frac{\lambda}{\pi \cdot w_o} \end{aligned}$$

Manchmal verwendet man die kompaktere komplexe Schreibweise:

$$\vec{A}(r, z) = \frac{\vec{A}}{1 + i\xi} e^{-\frac{r^2}{w_0^2(1+i\xi)}}$$

mit

$$\xi := \frac{z}{z_0}.$$

Mit der Intensität

$$I = \frac{nc}{2\pi} \cdot |\vec{A}(r, z)|^2$$

ergibt sich die Leistung als Integral über den Querschnitt:

$$\begin{aligned} P &= \int_0^\infty I \cdot 2\pi r dr \\ &= \frac{1}{4} nc w_0^2 |\vec{A}|^2 \end{aligned}$$

## 3.2 Frequenzverdopplung mit Gaußstrahlen

- Amplitudengleichung

In der paraxialen Wellengleichung für die harmonische Amplitude  $A_2$

$$2ik_2 \frac{\partial \vec{A}_2}{\partial z} + \nabla_T^2 \vec{A}_2 = -\frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} \vec{P}_2 e^{i\Delta kz},$$

ersetzen wir die elektrische Polarisation durch die Amplitude der Fundamentalen,

$$P_2 = 2d_{eff} \cdot A_1^2,$$

und erhalten eine Gleichung für die skalaren Amplituden,

$$2ik_2 \frac{\partial A_2}{\partial z} + \nabla_T^2 A_2 = -\frac{4\pi\omega_2^2}{c^2} 2d_{eff} \cdot A_1^2 e^{i\Delta kz}.$$

Der Vektorcharakter der Größen  $\vec{A}$  und  $\vec{P}$  steckt im  $d_{eff}$ .

- Lösung mit Gaußstrahlen

Für  $A_1$  und  $A_2$  setzen wir zwei Gaußstrahlen mit gleichem konfokalem Parameter  $b$  an:

$$A_1(r, z) = \frac{A_1}{1 + i\xi} \exp\left(-\frac{r^2}{w_o^2(1 + i\xi)}\right)$$

$$A_2(r, z) = \frac{A_2(z)}{1 + i\xi} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_o^2(1 + i\xi)}\right).$$

Der Faktor 2 im Argument der e-Funktion in der letzten Gleichung entsteht durch den Zusammenhang  $b = kw_o^2$ : Für die Harmonische ist  $k_2 = 2k_1$ . Die harmonische Amplitude  $A_2(z)$  darf langsam wachsen,  $A_1$  ist fix. Einsetzen führt zur Gleichung für die Amplitude  $A_2(z)$

$$\frac{dA_2(z)}{dz} = \frac{i2\pi2\omega_1}{nc} 2d_{eff} \cdot A_1^2 \frac{e^{i\Delta kz}}{(1 + i\xi)},$$

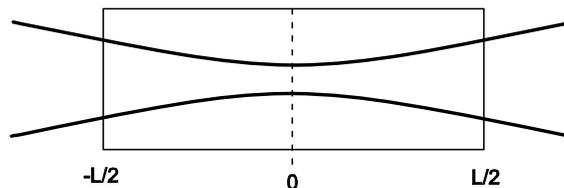
was man direkt integrieren kann:

$$A_2(z) = \frac{i2\pi2\omega_1}{n_2c} 2d_{eff} \cdot A_1^2 \cdot F(\Delta k, z_{in}, z).$$

- Das Integral

$$F(\Delta k, z_{in}, z) = \int_{z_{in}}^z \frac{e^{i\Delta kz'}}{(1 + i\frac{z'}{z_o})} dz'.$$

muss man numerisch lösen. Für eine optimale Verdopplung muß man die Funktion  $F(\Delta k, z_{in}, z)$  maximieren. Es zeigt sich, dass man dazu den Fokus am besten in der Mitte des Kristalls plaziert (was wir hier nicht zeigen).



Die Integrationsgrenzen laufen dann von  $-\frac{L}{2}$  nach  $+\frac{L}{2}$ . Mit der Substitution:

$$x := \frac{z'}{z_o}$$

und

$$\beta := \Delta k \cdot z_o$$

lautet das Integral:

$$F = z_o \int_{-\frac{1}{2} \frac{L}{z_o}}^{\frac{1}{2} \frac{L}{z_o}} \frac{e^{i\beta x}}{1 + ix} dx.$$

Den Integranden kann man zerlegen:

$$\begin{aligned} \frac{e^{i\beta x}}{1 + ix} &= \frac{(1 - ix)e^{i\beta x}}{(1 + ix)(1 - ix)} = \frac{(1 - ix)(\cos \beta x + i \sin \beta x)}{1 + x^2} \\ &= \frac{1}{1 + x^2}(\cos \beta x + i \sin \beta x) + \frac{x}{1 + x^2}(\sin \beta x - i \cos \beta x). \end{aligned}$$

Nur die symmetrischen Terme überleben das Integral. Man erhält also

$$\begin{aligned} F &= z_o \int_{-\frac{1}{2} \frac{L}{z_o}}^{\frac{1}{2} \frac{L}{z_o}} \frac{1}{1 + x^2}(\cos \beta x + x \sin \beta x) dx \\ &= b \cdot \int_0^{\frac{1}{2} \frac{L}{z_o}} \frac{1}{1 + x^2}(\cos \beta x + x \sin \beta x) dx \end{aligned}$$

- Leistung

Bevor wir das Integral betrachten, berechnen wir die Leistung. Mit

$$P = \frac{1}{4} n c w_o^2 |A|^2,$$

also

$$\begin{aligned} P_1 &= \frac{1}{4} n_1 c w_o^2 |A_1|^2 \\ P_2 &= \frac{1}{4} n_2 c \cdot \frac{w_o^2}{2} |A_2|^2, \end{aligned}$$

wird aus der obigen Gleichung für das Feld:

$$\underbrace{\frac{1}{4} n_2 c \cdot \frac{w_o^2}{2} |A_2|^2}_{P_2} = \frac{1}{4} n_2 c \cdot \frac{w_o^2}{2} \left( \frac{2\pi 2\omega_1}{n_2 c} 2d_{eff} \right)^2 \cdot \frac{P_1^2}{\left( \frac{1}{4} n_1 c w_o^2 \right)^2} \cdot |F|^2$$

$$\begin{aligned} P_2 &= \frac{n_2 c w_o^2 4\pi^2 4\omega_1^2 4d_{eff}^2}{4 \cdot 2 \cdot n_2^2 c^2 \frac{1}{4} n_1^2 c^2 w_o^4} \cdot P_1^2 \cdot |F|^2 \\ &= \frac{128\pi^2 \omega_1^2 d_{eff}^2}{n_2 \cdot n_1^2 \cdot c^3 \cdot w_o^2} \cdot P_1^2 \cdot |F|^2 \end{aligned}$$

und mit

$$b = \omega_o^2 \cdot k_1 \quad k_1 = n_1 \cdot \frac{\omega_1}{c}$$
$$\frac{1}{w_o^2} = \frac{n_1 \omega_1}{c \cdot b}$$

erhält man

$$P_2 = \frac{128\pi^2 \omega_1^3 d_{eff}^2}{n_1 \cdot n_2 \cdot c^4} \cdot P_1^2 \cdot \frac{1}{b} \cdot |F|^2,$$

bzw.

$$P_2 = K \cdot h \cdot P_1^2.$$

mit

$$K := \frac{128\pi^2 \omega_1^3 d_{eff}^2}{n_1 \cdot n_2 \cdot c^4} \cdot L$$

und einem Term  $h$ , der dimensionslos ist.

$$h := \frac{L}{b} \cdot \left| \frac{1}{L} F \right|^2.$$

- Die  $h$ -Funktion

Wir betrachten  $h$  genauer:

$$h = \alpha \cdot \left( \frac{1}{\alpha} \cdot \int_0^\alpha \frac{1}{1+x^2} (\cos \beta x + x \sin \beta x) dx \right)^2$$
$$= \frac{1}{\alpha} \left( \int_0^\alpha \frac{1}{1+x^2} (\cos \beta x + x \sin \beta x) dx \right)^2$$

mit den dimensionslosen Größen

$$\alpha : = \frac{L}{2z_0}$$
$$\beta : = \Delta k \cdot z_0.$$

Dieser Ausdruck muss durch Variation von  $\alpha$  und  $\beta$  optimiert werden. Numerisch erhält man

$$\alpha_{opt} = 2,82 \quad \beta_{opt} = 0,58$$

und

$$h_{max} = 1,067.$$

- Interpretation

In der Praxis haben die Kristalle einen Wert für  $K$  zwischen  $10^{-5} \frac{1}{W}$  und  $10^{-2} \frac{1}{W}$ . Im Gegensatz zur Rechnung mit ebenen Wellen steigt  $P_2$  jetzt nur noch linear mit der Kristalllänge an. Die Konstante  $h_{\max} \sim 1$  und hat das Maximum bei

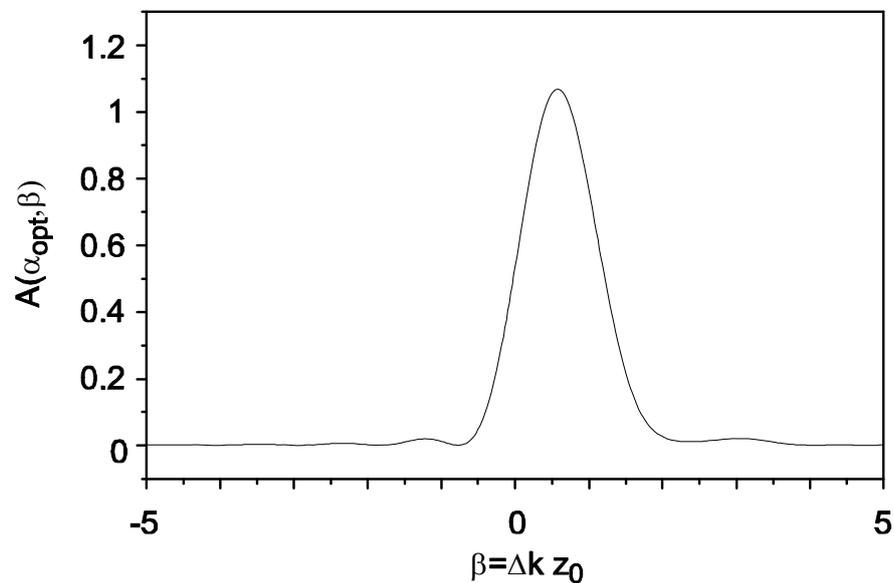
$$b = \frac{L}{2.8}$$

und

$$\frac{\Delta k}{z_0} = 0.58$$

Zusammen erhält man:

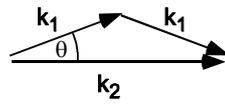
$$\Delta k \cdot L = 2\alpha \cdot \beta = 3,27 \sim \pi.$$



Die beste Leistung bekommt man also bei Phasenfehlانpassung von  $3.27 \text{rad} \sim \pi$  über der Länge des Kristalls. Die Ursache liegt in den gekrümmten Wellenfronten des Gaußstrahls:



Im Gaußstrahl gibt es ein Bündel von  $k$ -Vektoren und deshalb Diagramme der Art

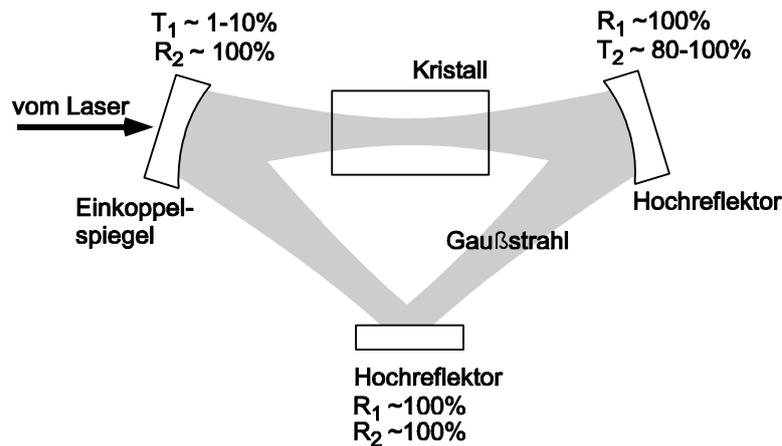


Ein etwas längerer Wellenvektor der Fundamentalten führt damit zu einer besseren mittleren Anpassung. Mit walk off ist die Sache etwas komplizierter und man erhält ein etwas anderes Integral. Siehe: Boyd and Kleinman, J. Appl. Phys. 39, 3597 (1968)

### 3.3 Resonante Überhöhung der Fundamentalen

- Szenario

Einen Resonator erhält man, wenn man einen Gaußstrahl mit einem gekrümmten Spiegel in sich zurückspiegelt.



Der Abstand zwischen den Spiegeln und deren Krümmungsradien bestimmen die Form des Gaußstrahls, der im Resonator umlaufen kann, d.h. nach einem Umlauf in sich selber übergeht. Ein solcher Strahl heißt Resonatormode. Manchmal benutzt man das Wort Mode auch ganz allgemein für Laserstrahlen. Dahinter steckt die Vorstellung, dass jeder normale Laserstrahl aus dem Resonator des Lasers kommt und damit die Laser-Resonatormode über den Auskoppelspiegel hinaus fortsetzt. In diesem Sinn haben wir es bei nichtlinearen in Kristallen mit einer "Kopplung von Moden" zu tun, d.h. es wird Energie zwischen den Moden ausgetauscht.

- Überhöhung

Im Prinzip kann man jede der beteiligten Moden in einem Resonator überhöhen. Wir betrachten zunächst Frequenzverdopplung mit resonanter Überhöhung der Fundamentalen. Im Resonator wird die Leistung der Fundamentalen um einen Faktor  $E$  überhöht. Die harmonische Leistung ist damit:

$$P_2 = K(EP_1)^2$$

Die Konversionseffizienz

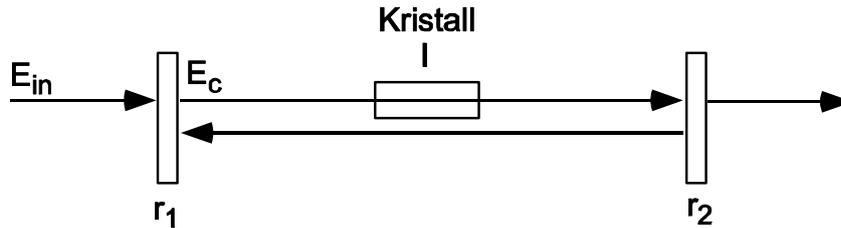
$$\frac{P_2}{P_1} = K \cdot P_1 \cdot E^2$$

hängt linear von der Eingangsleistung und quadratisch von der Überhöhung ab.

- Leistungsabhängige Verluste

Die Verluste können passiver Natur sein, d.h. Streuung an den Spiegeln oder Absorption im Kristall. Bei effizienter Verdopplung besteht aber ein nicht zu vernachlässigender Anteil aus den Verlusten, die durch die nichtlineare Konversion selbst zustande kommt. Diese Konversionsverluste bestimmen aber wiederum die Überhöhung. Eine geschlossene Lösung ist nicht bekannt. Wir müssen hier also einige Näherungen machen um auf einen praktikablen Ausdruck zu kommen.

- Modell



$r_1, r_2$  sind die Feldreflektivitäten der Spiegel. Die Feldverluste durch nichtlineare Konversion sind mit  $l$  bezeichnet. Sonstige Verluste vernachlässigen wir zunächst.

- Selbstkonsistente Lösung

Wir fordern Selbstkonsistenz für die Feldamplitude im Resonator nach einem Umlauf. Für das Feld unmittelbar hinter dem Einkoppelspiegel gilt dann:

$$E_c = t_1 E_{in} + E_c \cdot r_1 \cdot r_2 \cdot \sqrt{1 - l^2} \cdot e^{i\varphi}$$

oder

$$E_c = \frac{t_1 E_{in}}{1 - r_1 \cdot r_2 \sqrt{1 - l^2} e^{i\varphi}}$$

Der Exponentialfaktor enthält die auf dem Umlauf akkumulierte Phase. Maximale Feldstärke im Resonator erhält man in Resonanz d.h. für  $\varphi = 0$ . Die Feldtransmission  $t_1$  ist mit der Feldreflektivität  $r_1$  durch die Energieerhaltung verknüpft:

$$R = r^2 \quad T = t^2$$

$R$  und  $T$  sind die leistungsbezogenen Größen. Energieerhaltung erfordert also (ohne Verluste im Spiegel)

$$R + T = 1,$$

d. h.

$$t = \sqrt{1 - r^2}.$$

(Achtung: es gibt keinen Erhaltungssatz für elektrische Felder  $r+t \neq 1$ !). Entsprechend ist die Transmission durch den Kristall  $\sqrt{1 - l^2}$ .

- Konversionsverluste

Wie groß sind die Konversionsverluste  $l$ ? Durch die nichtlineare Konversion erhält man harmonische Leistung  $P_{SH}$ , die der umlaufenden Leistung der Fundamentalen  $P_c$  entzogen wird.

$$\begin{aligned} P_{SH} &= K \cdot P_c^2 = \Delta P_c \\ l^2 &= \frac{\Delta P_c}{P_c} = K \cdot P_c = \frac{K \cdot P_c}{E_c^2} E_c^2 = \kappa \cdot E_c^2 \end{aligned}$$

wobei

$$\kappa := \frac{K \cdot P_c}{E_c^2}.$$

Da die Konversionsverluste bei einem Durchgang klein sind können wir den Ausdruck  $\sqrt{1-l^2}$  nach  $l$  entwickeln:

$$\sqrt{1-l^2} = 1 - l^2/2$$

- Kubische Gleichung für das Feld

Einsetzen in oben ergibt für den resonanten Fall ( $\varphi = 0$ ):

$$E_c = \frac{t_1 \cdot E_{in}}{1 - r_1 \cdot r_2 + r_1 \cdot r_2 \cdot l^2/2} = \frac{t_1 \cdot E_{in}}{1 - r_1 \cdot r_2 + r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2 \cdot E_c^2}$$

$$E_c(1 - r_1 \cdot r_2) + E_c^3 \cdot r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2 - \sqrt{1 - r_1^2} \cdot E_{in} = 0$$

Die allgemeine Lösung dieser kubischen Gleichung für  $E_c$  ist sehr unübersichtlich. Wir suchen deshalb eine Lösung unter der Nebenbedingung der optimalen Wahl des Einkoppelspiegels.

- Optimale Einkopplung

Fassen wir das umlaufende Feld als Funktion der Einkoppelspiegel-Feldreflektivität auf, so ist die Einkopplung optimal wenn:

$$E_c' := \frac{dE_c}{dr_1} = 0.$$

Um diese Bedingung zu verwenden bilden wir die Ableitung der kubischen Gleichung:

$$\frac{d}{dr_1} \left( E_c^3 + \frac{1 - r_1 \cdot r_2}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} \cdot E_c - \frac{\sqrt{1 - r_1^2}}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} \cdot E_{in} \right) = 0$$

oder

$$\begin{aligned} & 3E_c^2 \cdot E_c' + \\ & \frac{-r_2}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} E_c - \frac{1 - r_1 \cdot r_2}{r_1^2 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} E_c + \frac{1 - r_1 \cdot r_2}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} E_c' \\ & - \frac{1}{2} \frac{-2r_1}{\sqrt{1 - r_1^2} \cdot r_1 r_2 \kappa/2} E_{in} + \frac{\sqrt{1 - r_1^2}}{r_1^2 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} \cdot E_{in} \\ & = 0 \end{aligned}$$

Für optimaler Anpassung ( $E'_c = 0$ ) erhält man:

$$\frac{E_c}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} \left( -r_2 - \frac{1 - r_1 \cdot r_2}{r_1} \right) + \frac{E_{in}}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} \left( \frac{\sqrt{1 - r_1^2}}{r_1} + \frac{r_1}{\sqrt{1 - r_1^2}} \right) = 0$$

Die erste Klammer reduziert sich freundlicherweise zu:

$$-r_2 - \frac{1 - r_1 \cdot r_2}{r_1} = \frac{-r_1 \cdot r_2 - (1 - r_1 \cdot r_2)}{r_1} = -\frac{1}{r_1},$$

und für die zweite Klammer erhält man

$$\frac{\sqrt{1 - r_1^2}}{r_1} + \frac{r_1}{\sqrt{1 - r_1^2}} = \frac{1 - r_1^2 + r_1^2}{r_1 \sqrt{1 - r_1^2}} = \frac{1}{r_1 \sqrt{1 - r_1^2}}.$$

Damit ergibt sich:

$$-E_c \frac{1}{r_1} + E_{in} \frac{1}{r_1 \sqrt{1 - r_1^2}} = 0$$

und schließlich:

$$E_c = E_{in} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 - r_1^2}}.$$

Für die Leistung erhält man mit

$$\frac{E_c^2}{P_c} = \frac{E_{in}^2}{P_{in}}$$

den Ausdruck

$$P_c = \frac{P_{in}}{1 - R_1}.$$

- Reflektivität des Einkoppelspiegels

Die Reflektivität des Einkoppelspiegels ist allerdings kein freier Parameter sondern muß so gewählt sein, dass die Einkopplung optimal ist! Wie groß muss also  $R_1$  sein, damit  $\frac{dE_c}{dr_1} = 0$ ? Dazu setzen wir die Lösung  $E_{in} = E_c \cdot \sqrt{1 - r_1^2}$  wieder in die kubische Gleichung ein:

$$E_c^3 + E_c \frac{1 - r_1 \cdot r_2}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} - \frac{\sqrt{1 - r_1^2}}{r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2} \cdot E_c \sqrt{1 - r_1^2} = 0$$

und lösen nach  $r_1$  auf:

$$E_c^2 r_1 \cdot r_2 \cdot \kappa/2 + \underbrace{(1 - r_1 r_2) - (1 - r_1^2)}_{-r_1 r_2 + r_1^2} = 0$$

oder

$$E_c^2 r_2 \frac{\kappa}{2} - r_2 + r_1 = 0.$$

Auflösen nach  $r_1$  :

$$r_1 = r_2 - \frac{\kappa}{2} \cdot E_c^2 r_2$$

und quadrieren ergibt

$$R_1 = R_2 \left(1 - \frac{K}{2} \cdot P_c\right)^2.$$

Einsetzen in den Ausdruck für die Resonatorleistung  $P_c$  ergibt schließlich:

$$P_c = P_{in} \frac{1}{1 - R_2 \left(1 - \frac{1}{2} K P_c\right)^2}$$

Obwohl wir immer noch keinen funktionalen Zusammenhang zwischen  $P_c(P_{in})$  haben, können wir mit diesen Ausdrücken schon etwas anfangen:

- Impedanzanpassung

Ohne Konversionsverluste gilt  $\kappa = 0$  und damit  $R_1 = R_2$  bzw.  $T_1 = T_2$ . Es muss also genauso viel Leistung pro Umlauf durch den Einkoppelspiegel nachgeliefert werden, wie durch den Auskoppelspiegel verloren geht. Passive Verluste  $L$ , etwa durch Absorption im Kristall oder durch Streuung an den optischen Flächen kann man in die effektive Reflektivität  $R_2^{eff}$  hineinnehmen:  $R_2^{eff} = R_2(1 - L)$ .

- Kubische Gleichung für  $r_1$

Typischerweise kennt man  $P_{in}$  aber nicht  $P_c$ . Um einen Ausdruck für  $P_c$  als Funktion von  $P_{in}$  zu erhalten, benutzen wir

$$P_c = P_{in} \frac{1}{1 - R_1}$$

und setzen  $P_c$  in den Ausdruck für die optimale Wahl von  $R_1$  ein:

$$\sqrt{\frac{R_1}{R_2}} = 1 - \frac{1}{2} \frac{K \cdot P_{in}}{1 - R_1}$$

$$(1 - R_1) \sqrt{\frac{R_1}{R_2}} = 1 - R_1 - \frac{K}{2} P_{in}$$

oder

$$\sqrt{R_1} \cdot \frac{1}{\sqrt{R_2}} - \sqrt{R_1^3} \cdot \frac{1}{\sqrt{R_2}} + R_1 - 1 + \frac{K}{2} P_{in} = 0$$

bzw.

$$r_1^3 - r_2 r_1^2 - r_1 + r_2 \left(1 - \frac{K}{2} P_{in}\right) = 0$$

Die Gleichung ist wieder ein kubische Gleichung und damit unschön.

- Näherung für fast angepasste Einkopplung

Bei nicht zu großen Konversionsverluste kann man aber weiter nähern. Dann sind nämlich die Reflektivitäten  $r_1$  und  $r_2$  im optimal angepassten Fall immer noch sehr ähnlich. Wir setzen also an  $r_1 = r_2 + \Delta r$ . Einsetzen in kubische Gleichung bei vernachlässigen aller Terme mit  $\Delta r^2, \Delta r^3 \dots$  ergibt:

$$r_2^3 + 3r_2^2\Delta r - r_2(r_2^2 + 2r_2\Delta r) - (r_2 + \Delta r) + r_2\left(1 - \frac{K}{2}P_{in}\right) = 0$$

$$\Delta r(r_2^2 - 1) - r_2 + r_2 - r_2 \cdot K \cdot P_{in} = 0$$

$$\Delta r = -\frac{1}{2} \frac{r_2 \cdot K \cdot P_{in}}{1 - r_2^2}.$$

Damit erhält man für  $r_1$

$$\begin{aligned} r_1 &= r_2 - \frac{1}{2} \frac{r_2 \cdot K \cdot P_{in}}{1 - r_2^2} \\ &= r_2 \left(1 - \frac{1}{2} \frac{K \cdot P_{in}}{1 - r_2^2}\right). \end{aligned}$$

Die Leistungsreflektivität  $R_1$  lautet dann

$$r_1^2 = R_1 = R_2 \left(1 + \left(\frac{1}{2} \frac{K \cdot P_{in}}{1 - R_2}\right)^2 - \frac{K \cdot P_{in}}{1 - R_2}\right).$$

Der mittlere Term in der Klammer kann vernachlässigt werden denn laut obigem Ergebnis für  $\Delta r$  kann man schreiben:

$$\frac{K \cdot P_{in}}{1 - R_2} = -\frac{\Delta r}{r_2} \ll 1,$$

da  $r_2 \sim 1$  und  $\Delta r \ll 1$ . In dieser Näherung erhält man:

$$R_1 \simeq R_2 \left(1 - \frac{K \cdot P_{in}}{1 - R_2}\right)$$

Nimmt man die passiven Verluste in  $R_2$  auf, also  $1 - R_2 = L$ , so lautet das einfache Ergebnis für  $R_1$

$$R_1 \simeq (1 - L)(1 - V)$$

wobei

$$V := \frac{K \cdot P_{in}}{L}.$$

Es kommt also auf das Verhältnis  $V$  an. Sobald die "single pass" -Konversion für den einfallenden Lichtstrahl  $K \cdot P_{in}$  größer wird als die Verluste  $L$ , erhält man Sättigungseffekte:

$$\begin{aligned}
 P_c &= P_{in} \frac{1}{1 - R_1} = \frac{P_{in}}{1 - R_2(1 - \frac{K \cdot P_{in}}{1 - R_2})} \\
 &= \frac{P_{in}}{1 - (1 - L)(1 - V)} = \frac{P_{in}}{1 - (1 - V + VL)} \\
 &= \frac{P_{in}}{L + V - VL}
 \end{aligned}$$

Damit haben wir das gewünschte Ergebnis.

- Stehwellen- versus Ringresonator

Wir können uns noch fragen ob ein Stehwellenresonator besser ist als ein Ringresonator. Ein Stehwellenresonator erzeugt bei gleicher umlaufender Resonatorleistung  $P_c$  8 mal mehr harmonisches Licht wie ein Ringresonator: In der Stehwelle ist das Feld in den Knoten verdoppelt. Die fundamentale Intensität ist vervierfacht und die harmonische Intensität versechzehnfacht. Allerdings wird wegen der Stehwelle nur das halbe Volumen ausgenutzt:

$$\frac{P_{sw}}{P_{sp}} = \left( \frac{(2E_{sp})^2}{E_{sp}^2} \right)^2 \cdot \underbrace{\frac{1}{2}}_{\text{Volumen in Stehwelle}} = 8$$

sw: Stehwelle, sp: einfacher Durchlauf (single pass). Allerdings erzeugt der doppelte Durchgang durch den Kristall auch die doppelten passiven Verluste und reduzieren damit  $P_c$  um einen Faktor 2. Die erzeugte harmonische Leistung sinkt dadurch um einen Faktor 4. Die generierte harmonische Leistung ist in beiden Situationen daher nur um einen Faktor 2 verschieden, vorausgesetzt daß die passiven Verluste hauptsächlich durch den Kristall zustande kommen. Im Stehwellenresonator wird zwar die doppelte Menge Licht erzeugt, allerdings in Form von zwei Strahlen, die in entgegengesetzten Richtungen den Resonator verlassen. Meistens kann man aber nur einen Strahl verwenden, so daß ein Ringresonator nicht wirklich von Nachteil ist. Der Vorteil eines Ringresonators besteht darin, daß er das eingestrahlte Licht nicht in den Laser zurückreflektiert. Die meisten Laser sind empfindlich auf Rückreflektion.

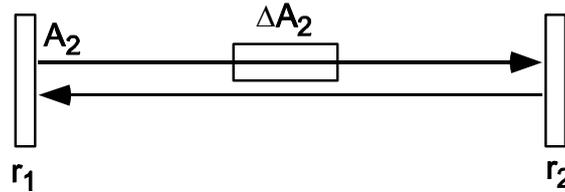
### 3.4 Resonante Überhöhung der Harmonischen

- Selbstkonsistente Gleichung

Was geschieht, wenn beide Moden im Resonator überhöht werden? Beim Durchgang durch den Kristalle wird das harmonische Feld pro Umlauf um einen bestimmten

Beitrag erhöht. Er entspricht gerade dem Wert, den wir für den einfachen Durchgang ohne Resonator oben ausgerechnet haben:

$$\Delta A_2 = \underbrace{\frac{i2\pi2\omega_1}{n_1 c} \chi^{(2)} \cdot F(\Delta k, b)}_{:=\eta} \cdot A_1^2$$



Die Gleichung für selbstkonsistenten Umlauf lautet jetzt:

$$A_2 = A_2 \cdot r_2 \cdot r_1 \cdot e^{i\varphi} + \Delta A_2$$

mit

$$\varphi = \Delta k_2 \cdot L$$

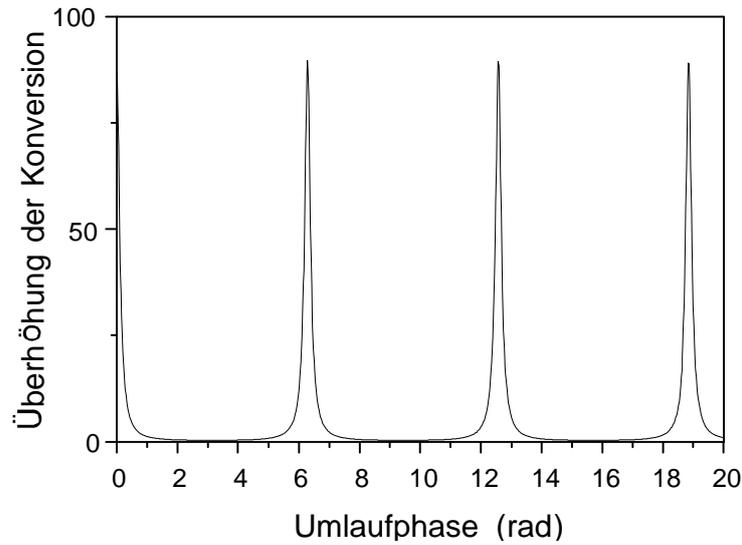
$$A_2 = \frac{\eta \cdot A_1^2}{1 - r_1 \cdot r_2 \cdot e^{-i\varphi}}$$

$$A_2 \cdot A_2^* = |\eta|^2 \cdot |A_1|^4 \cdot \frac{1}{\underbrace{(1 - r_1 \cdot r_2 \cdot e^{i\varphi})(1 - r_1 \cdot r_2 \cdot e^{-i\varphi})}_{1 + (r_1 \cdot r_2)^2 - 2r_1 \cdot r_2 \cos \varphi}}$$

$$P_2 = K \cdot P_1^2 \cdot \frac{1}{1 + R_1 \cdot R_2 - 2\sqrt{R_1 R_2} \cdot \cos \varphi}$$

wobei analog zu oben

$$K := |\eta|^2 \frac{|A_1|^2}{P_1}$$



- Resonante Überhöhung

Man erhält ein resonantes Verhalten jetzt auch für die Harmonische. Die maximale harmonische Leistung im Resonator ist

$$P_2^{max} = K \cdot P_1^2 \frac{1}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2}.$$

Die nutzbare Ausgangsleistung beträgt

$$P_2^{out} = T_2 \cdot P_2^{max} = K \cdot P_1^2 \frac{1 - R_2}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2}.$$

- Optimales Auskopplung

Für welches  $R_2$  ist  $P_2^{out}$  maximal? Ableiten nach  $R_2$  und Nullsetzen ergibt:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dR_2} \left( \frac{1 - R_2}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2} \right) &= \frac{-1}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2} + 2 \frac{1 - R_2}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^3} \cdot \frac{1}{2} \frac{\sqrt{R_1}}{\sqrt{R_2}} = 0 \\ \frac{1 - R_2}{1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2}} \cdot \frac{1}{\sqrt{R_1 \cdot R_2}} R_1 &= 1 \\ \frac{1 - R_2}{\sqrt{R_1 \cdot R_2} - R_1 \cdot R_2} \cdot R_1 &= 1 \\ R_1 - R_2 \cdot R_1 &= \sqrt{R_1 \cdot R_2} - R_1 \cdot R_2 \\ R_1 &= \sqrt{R_1 \cdot R_2} \\ R_1 &= R_2 \end{aligned}$$

Die Resonatorverluste sind hier in ein effektives  $R_1$  mit aufgenommen. Der Faktor  $E$ , um den die harmonische Ausgangsleistung durch den Resonator verbessert wird beträgt also

$$\begin{aligned} E &= \frac{1 - R_2}{1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2}} \\ &= \frac{1 - R_1}{(1 - R_1)^2} \\ E &= \frac{1}{1 - R_1} \end{aligned}$$

Die Überhöhung ist also jetzt nur noch proportional zu den inversen Verlusten.

- Schwelle?

Wenn das rückgekoppelte harmonische Licht die Konversion erhöht, wieso verhält sich dann der Resonator nicht wie ein Laser mit einer entsprechenden Schwelle? Betrachten wir die Verstärkung im einfachen Durchgang und überlegen uns wie groß der Verstärkungsfaktor ist. Der Feldbetrag der Harmonischen wird um  $\Delta A$  erhöht:

$$\begin{aligned} A_{out} &= (A_{in} + \Delta A) \\ A_{out}^2 &= A_{in}^2 + \Delta^2 A + 2\Delta A \cdot A_{in} \end{aligned}$$

Damit erhält man für die Leistung

$$P_{out} = P_{in} + q^2 \Delta A^2 + 2q\Delta A \sqrt{P_{in}}$$

wobei  $q$  der Proportionalitätsfaktor zwischen Feld und Leistung ist:

$$P = q^2 \cdot A^2.$$

Für das Verhältnis der Leistungen erhält man:

$$\frac{P_{out}}{P_{in}} \simeq 1 + \underbrace{2q\Delta A \cdot \frac{1}{\sqrt{P_{in}}}}_{\text{Verstärkung } g}$$

Hier wurde der zweite Term gegenüber dem dritten vernachlässigt. Beim Laser ist  $g$  zunächst nur von der Pumpleistung abhängig nicht aber von der im Resonator umlaufenden Leistung  $P_{in}$ . Laserbetrieb erhält man, wenn  $g \geq L$  (Verluste) also ab einer ganz bestimmten Pumpleistung. Bei der Verdopplung ist im Gegensatz dazu  $g \sim 1/\sqrt{P_{in}}$  und wächst für kleine Leistungen im Resonator gegen unendlich. Die Schwelle liegt also immer bei 0 und man erhält immer "Laserbetrieb". Beim parametrischen Oszillator ist dagegen ( $a$  ist ein Proportionalitätsfaktor)

$$\begin{aligned} \Delta A &\sim A_3 A_3^* \cdot A_{in} = a \cdot A_{in} \\ (A_{in} + \Delta A)^2 &= A_{in}^2 + (\Delta A)^2 + 2A_{in} \cdot aA_{in} \sim A_{in}^2 (1 + 2a) \end{aligned}$$

$$\frac{P_{out}}{P_{in}} = 1 + \underbrace{2a}_g$$

Die Verstärkung  $g$  ist jetzt unabhängig von  $P_{in}$  und man erhält Laserverhalten.

### 3.5 Dynamische Gleichungen für Resonatoren:

- Feldänderung nach einem Umlauf

Nach einem Umlauf lautet das Feld:

$$E(t + \tau) = E(t) \cdot r_1 \cdot r_2 + t_1 \cdot E_{in}(t + \tau).$$

Für die Felder machen wir den üblichen Ansatz

$$\begin{aligned} E(t) &= A(t)e^{i\omega t} \\ E_{in}(t) &= A_{in}e^{i\omega t}. \end{aligned}$$

Die Frequenz  $\omega$  ist die des eingekoppelten Lichts. Die Amplitude des eingekoppelten Lichts ist konstant. Mit diesem Ansatz erhält man

$$\begin{aligned} A(t + \tau)e^{i\omega(t+\tau)} &= A(t)e^{i\omega t} \cdot r_1 \cdot r_2 + t_1 \cdot A_{in}e^{i\omega(t+\tau)}. \\ A(t + \tau) &= A(t)e^{-i\omega\tau} \cdot r_1 \cdot r_2 + t_1 \cdot A_{in} \end{aligned}$$

- Resonanzfrequenz

Von der Phase  $\omega\tau$  ziehen wir  $2\pi$  so oft ab, bis der Rest im Bereich zwischen 0 und  $2\pi$  liegt. Die Anzahl der  $2\pi$  sei  $n$ . Wir definieren jetzt die Resonanzfrequenz durch die Bedingung

$$\omega_c\tau = n \cdot 2\pi, \quad n \in \mathbb{N}$$

und ersetzen die Phase  $\omega\tau$  durch  $\omega\tau - n \cdot 2\pi = (\omega - \omega_c)\tau$ , was an der Exponentialfunktion  $e^{-i\omega\tau}$  nichts ändert

$$e^{-i\omega\tau} = e^{-i(\omega - \omega_c)\tau}.$$

- Näherung für langsame Amplitudenänderung

Welche Differentialgleichung beschreibt die Feldamplitude in einem Resonator? Wir suchen zunächst die zeitliche Änderung des Feldes in einem leeren Resonator und betrachten dazu das Feld vor und nach einem Umlauf und identifizieren den Differenzenquotienten mit dem Differentialquotienten:

$$\dot{A} \simeq \frac{A(t + \tau) - A(t)}{\tau},$$

$\tau$  ist die Umlaufzeit. Diese Näherung entspricht der Taylor-Entwicklung von  $A(t)$  bis zur ersten Ordnung:

$$A(t + \tau) = A(t) + \tau\dot{A} + \dots$$

In dieser Näherung kann man alle Amplitudenänderungen beschreiben, die langsamer sind als eine Umlaufzeit  $\tau$ . Mit

$$\tau = \frac{L}{c} \sim \frac{1m}{3 \cdot 10^8 \frac{m}{s}} = 3,3ns = \frac{1}{300MHz}$$

ist die Näherung auch noch für sehr schnelle Vorgänge gut. Also mit

$$A(t + \tau) \simeq A(t) + \tau \dot{A}$$

und (siehe oben)

$$A(t + \tau) = A(t) e^{i(\omega_c - \omega)\tau} \cdot r_1 \cdot r_2 + t_1 \cdot A_{in}$$

erhält man

$$\dot{A} = A \frac{(-1 + e^{i(\omega_c - \omega)\tau} \cdot r_1 \cdot r_2)}{\tau} + \frac{t_1}{\tau} \cdot A_{in}$$

- Näherung hoher Güte

Bei guten Resonatoren ist das Feld nur für kleine Verstimmungen von Null verschieden und man kann nähern  $(\omega_c - \omega) \ll \frac{1}{\tau}$  :

$$r_1 \cdot r_2 \cdot e^{i(\omega_c - \omega)\tau} \simeq r_1 \cdot r_2 \cdot (1 + i(\omega_c - \omega)\tau),$$

Damit erhält man schließlich als Resultat

$$\dot{A} = (-\gamma + i\Delta) A + \gamma_{inc} A_{in}$$

mit

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2}}{\tau} \\ \gamma_{inc} &= \frac{\sqrt{1 - R_1}}{\tau} \\ \Delta &= r_1 \cdot r_2 \cdot (\omega_c - \omega) \simeq (\omega_c - \omega). \end{aligned}$$

- Resonanzkurve

Die Lösung lautet

$$A(t) = A_o \cdot e^{(-\gamma + i\Delta)t} + A_{in} \cdot \frac{\gamma_{inc}}{-\gamma + i\Delta}.$$

Im Gleichgewicht ( $\dot{A} = 0$ ) gilt

$$A = A_{in} \frac{\gamma_{inc}}{-\gamma + i\Delta}$$

und für das Leistungsverhältnis

$$\begin{aligned} \frac{P}{P_{in}} &= \frac{\gamma_{inc}^2}{|-\gamma + i\Delta|^2} = \frac{\gamma_{inc}^2}{\gamma^2 + \Delta^2} \\ &= \frac{1 - R_1}{\tau^2} \cdot \frac{\tau^2}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2 + \tau^2 \Delta^2} \\ &= \frac{1 - R_1}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2 + \tau^2 \Delta^2} \end{aligned}$$

Dies ist eine Lorentzkurve bezüglich der Verstimmung  $\Delta$ .

- Resonanzüberhöhung

In Resonanz ( $\Delta = 0$ ) erhält man

$$\frac{P_{\max}}{P_{in}} = \frac{1 - R_1}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2}.$$

Dies entspricht der Lösung, die wir auch oben mit dem Ansatz der selbstkonsistenten Amplitude gefunden haben. Das Maximum liegt bei  $R_1 = R_2$ , und man erhält als Überhöhung

$$\frac{P}{P_{in}} = \frac{1 - R_1}{(1 - R_1)^2} = \frac{1}{1 - R_1}.$$

- Linienbreite

Wie groß ist die Linienbreite? Die Halbwertsbreite erfüllt die Gleichung

$$P(\Delta_{1/2}) = \frac{1}{2} P_{\max},$$

also

$$\begin{aligned} \frac{1 - R_1}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2 + \tau^2 \Delta_{1/2}^2} &= \frac{1}{2} \frac{P_{\max}}{P_{in}} = \frac{1}{2} \frac{1 - R_1}{(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2} \\ (1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2 + \tau^2 \Delta_{1/2}^2 &= 2(1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2 \\ \tau^2 \Delta_{1/2}^2 &= (1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2})^2 \\ \Delta_{1/2} &= \frac{1}{\tau} (1 - \sqrt{R_1 \cdot R_2}) = \gamma \\ \Delta_{1/2} &= \gamma \end{aligned}$$

Die volle Breite bei halbem Maximum ist damit

$$\Delta_{FWHM} = 2\gamma := \gamma_P$$

gegeben.

- Zerfallskurve

Füllt man den Resonator in Resonanz und schaltet dann  $A_{in}$  plötzlich ab, so zerfällt das Feld mit  $A_o \cdot e^{-\gamma t}$  und die Leistung entsprechend mit  $P_o \cdot e^{-\gamma_p t}$  ! Aus der Zerfallskurve lassen sich für Resonatoren hoher Güte die Verluste genau bestimmen. Wichtige Technik.

- Differentialgleichung mit Kristall

Wir setzen jetzt einen Kristall ein und betrachten nur den resonanten Fall. Den Feldverlust durch Konversion erhält man aus der gekoppelten Amplitudengleichung. Die Harmonische erhält pro Umlaufzeit das Feld

$$\Delta A_2 = \kappa \cdot A_1^2.$$

Die Fundamentale verliert das Feld

$$\Delta A_1 = \frac{1}{2} \kappa \cdot A_2 \cdot A_1^*.$$

Der Faktor  $\frac{1}{2}$  stammt von der Manley Rowe Gleichung. Damit lautet die dynamischen Resonatorgleichung für den doppelt resonanten Fall zweier gekoppelter Moden:

$$\begin{aligned} \dot{A}_1 &= \gamma_{inc} A_{in} - \gamma_1 \cdot A_1 - \frac{1}{2} \kappa \cdot A_2 \cdot A_1^* \\ \dot{A}_2 &= -\gamma_2 \cdot A_2 + \kappa \cdot A_1^2 \end{aligned}$$

Diese Gleichungen zeigen eine interessante nichtlineare Dynamik und sind nur für nicht zu hohe Felder und Konversionen stabil. Bei starker Kopplung und kleinen Verlusten können Schwingungen spontan auftreten bis hin zu einer chaotischen Dynamik.

- Rauschunterdrückung

Als weiteres interessantes Phänomen wird ein mögliches Rauschen auf  $A_1$  gedämpft. Um dies zu sehen, nehmen wir an, dass wir noch im stabilen Bereich sind und die Harmonische der Fundamentalen adiabatisch folgen kann. Gleichung 2 soll also immer im Gleichgewicht sein. Damit gilt  $\dot{A}_2 = 0$  oder

$$A_2 = \frac{\kappa}{\gamma_2} \cdot A_1^2.$$

Eingesetzt in die erste Gleichung ergibt

$$\dot{A}_1 = +\gamma_{inc} A_{in} - \gamma_1 \cdot A_1 - \frac{1}{2} \frac{\kappa^2}{\gamma_2} \cdot A_1^2 \cdot A_1^*.$$

Falls  $A_1$  reell ist erhält man:

$$\dot{A}_1 = -\underbrace{\left(\gamma_1 + \frac{1}{2} \frac{\kappa^2}{\gamma_2} A_1 A_1^*\right)}_{\Gamma(I_1)} \cdot A_1 + \gamma_{inc} A_{in}$$

Man erhält eine exponentielle Dämpfung für Abweichungen vom Gleichgewichtswert. Die Dämpfungskonstante  $\Gamma(I_1)$  wächst offenbar mit  $I_1$  an, d. h. kleine Amplituden werden weniger gedämpft als große. Fluktuationen werden so unterdrückt (eine Art Dolby-Verfahren). Dieser Effekt kann so effizient sein, dass sogar das Quantenrauschen ausgeregelt werden kann. Immer wenn zwei Photonen gemeinsam ankommen werden sie durch Konversion entfernt. Im verbleibenden Licht sind die Photonen regelmäßiger verteilt als für kohärentes Licht üblich. Die Photonen im Resonator gehorchen dann keiner Poisson-Statistik mehr und das Schrotrauschen ist unterdrückt. Ein solches Licht heißt gequetschtes Licht, englisch "squeezed light".

# Chapter 4

## Nichtlineare Effekte aufgrund von $\chi(3)$

### 4.1 Materialien mit Inversionsymmetrie

- kubische Korrektur

Wir betrachten wieder das Lorentzmodell und eine rüchtreibende Kraft mit einer kubischen Korrektur:

$$F = -m\omega_0^2 x + mbx^3.$$

Das Potential lautet dann

$$U = \int F(x)dx = \frac{1}{2}m\omega_0^2 x^2 - \frac{1}{4}mbx^4$$

Das Potential ist jetzt spiegelsymmetrisch  $U(x) = U(-x)$ . Die Struktur des Kristalls muss dann ebenfalls spiegelsymmetrisch sein. Beispiele sind Gase, Gläser und Flüssigkeiten. Mögliche  $\chi^{(2)}$ -Beiträge mitteln sich hier heraus. Höhere spiegelsymmetrische Beiträge  $\sim x^6$  können vernachlässigt werden, da sie nur bei großen Auslenkungen zum Tragen kommen, bei denen das Material bereits zerstört wird.

- Beitrag von  $\chi^{(1)}$

Als Beispiel betrachten wir ein isotropes Material in drei Dimensionen. Die rüchtreibende Kraft ist

$$\vec{F} = -m\omega_0^2 \vec{r} + mb(\vec{r} \cdot \vec{r}) \cdot \vec{r}.$$

Kraft und Auslenkung sind parallel ( $\vec{F} \parallel \vec{r}$ ) was bei isotropen Materialien so sein muss. Die Schwingungsgleichung lautet jetzt:

$$\ddot{\vec{r}} + 2\gamma\dot{\vec{r}} + \omega_0^2 \vec{r} - b(\vec{r} \cdot \vec{r}) \cdot \vec{r} = -\frac{e}{m} \vec{E}(t).$$

Als treibendes Feld betrachten wir eine Summe aus drei Frequenzkomponenten:

$$\vec{E}(t) = \sum_n \vec{E}(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \quad n = 1, 2, 3$$

Der Störungsansatz

$$\vec{r}(t) = \lambda^0 \vec{r}^{(1)}(t) + \lambda^1 \vec{r}^{(2)}(t) + \lambda^2 \vec{r}^{(3)}(t) + \dots$$

wird eingesetzt und die Potenzen werden sortiert.

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \vec{r}^{(1)}}{dt^2} + 2\gamma \frac{d\vec{r}^{(1)}}{dt} + \omega_0^2 \vec{r}^{(1)} &= -\frac{e}{m} \vec{E}(t) \\ \frac{d^2 \vec{r}^{(2)}}{dt^2} + 2\gamma \frac{d\vec{r}^{(2)}}{dt} + \omega_0^2 \vec{r}^{(2)} &= 0 \\ \frac{d^2 \vec{r}^{(3)}}{dt^2} + 2\gamma \frac{d\vec{r}^{(3)}}{dt} + \omega_0^2 \vec{r}^{(3)} &= b(\vec{r}^{(1)} \cdot \vec{r}^{(1)}) \cdot \vec{r}^{(1)} \end{aligned}$$

Die Lösung für  $\vec{r}^{(1)}$  ist

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

wobei

$$\vec{r}^{(1)}(\omega_n) = \frac{-e/m}{D(\omega_n)} \vec{E}(\omega_n)$$

mit

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

Aus der Auslenkung erhält man die Polarisierung

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

Die Suszeptibilität, definiert gemäß

$$\vec{P}_i^{(1)}(\omega_n) = \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) \cdot E_j(\omega_n),$$

lautet dann

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

denn dann gilt

$$\vec{P}^{(1)}(\omega_n) = \chi^{(1)}(\omega_n) \vec{E}(\omega_n).$$

Durch Vergleich mit oben ergibt sich

$$\chi^{(1)}(\omega_n) = \frac{N e^2}{D(\omega_n)},$$

oder

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega_n) = \frac{N e^2}{D(\omega_n)} \cdot \delta_{ij}.$$

Für isotrope Medien ist die Matrix diagonal. Der quadratische Beitrag  $\chi^{(2)}$  verschwindet, da wegen dem fehlenden Antriebsterm spätestens nach einer Dämpfungszeit  $\vec{r}^{(2)} = 0$ .

- Beitrag von  $\chi^{(3)}$

Einsetzen der Lösung von  $\vec{r}^{(1)}(\omega_n)$  in die Dgl. für  $\vec{r}^{(3)}$ :

$$\frac{d^2\vec{r}^{(3)}}{dt^2} + 2\gamma\frac{d\vec{r}^{(3)}}{dt} + \omega_0^2\vec{r}^{(3)} = -\frac{be^3}{m^3}\sum_{mnp}\frac{(\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n))\vec{E}(\omega_p)}{D(\omega_m)D(\omega_n)D(\omega_p)}\cdot e^{-i(\omega_m+\omega_n+\omega_p)t}$$

Hier wurde der 3-Komponentenansatz für  $\vec{E}(t)$  eingesetzt. Man erhält alle möglichen Frequenzkombinationen

$$\omega_q = \omega_m + \omega_n + \omega_p,$$

die wir mit  $q$  durchnummerieren. Die Lösung kann man dann schreiben als

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

die wir in die Differentialgleichung einsetzen mit dem Resultat

$$(-\omega_q^2 - i\omega_q 2\gamma + \omega_0^2)\vec{r}^{(3)}(\omega_q) = -b\frac{e^3}{m^3}\sum_{mnp}\frac{(\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n))\vec{E}(\omega_p)}{D(\omega_m)\cdot D(\omega_n)\cdot D(\omega_p)},$$

bzw:

$$\vec{r}^{(3)}(\omega_q) = -\frac{be^3}{m^3}\sum_{mnp}\frac{(\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n))\vec{E}(\omega_p)}{D(\omega_m)\cdot D(\omega_n)\cdot D(\omega_p)\cdot D(\omega_q)}$$

wobei die Summe über  $m, n, p$  nur über diejenigen Indizes geht für die gilt  $\omega_q = \omega_m + \omega_n + \omega_p$ . Aus der Auslenkung berechnen wir die Polarisation als Dichte der Dipolmomente

$$\begin{aligned}\vec{P}^{(3)}(\omega_q) &= -Ne\cdot\vec{r}^{(3)}(\omega_q) \\ &= \frac{Ne^4b}{m^3}\sum_{mnp}\frac{(\vec{E}(\omega_m)\cdot\vec{E}(\omega_n))\vec{E}(\omega_p)}{D(\omega_m)\cdot D(\omega_n)\cdot D(\omega_p)\cdot D(\omega_q)}\end{aligned}$$

Dies vergleichen wir mit dem Ansatz

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

Die Indizes  $m, n$  und  $p$  laufen von 1..3, da wir drei Felder angenommen haben. Welches Feld welche Nummer bekommt ist willkürlich. Damit ist die Summe  $m, n, p$  redundant. Wir können daher verschiedene Formen für  $\chi$  ansetzen und wählen etwas willkürlich

$$\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_q, \omega_m, \omega_n, \omega_p) = \frac{Ne^4b\cdot\delta_{jk}\cdot\delta_{il}}{m^3D(\omega_q)\cdot D(\omega_m)\cdot D(\omega_n)\cdot D(\omega_p)}.$$

- Abschätzung der Stärke

Eine Abschätzung für die Größe von  $\chi^{(3)}$  erhält man wie bei  $\chi^{(2)}$  durch die Annahme, dass bei einer Auslenkung von einem typisch atomaren Abstand  $d$ , die lineare und die nichtlineare Rückstellkraft gleich sind. Also

$$m\omega_0^2 d = mbd^3$$

oder

$$b = \frac{\omega_0^2}{d^2}$$

Im nicht resonanten Fall ist  $D(\omega) \sim \omega_0^2$  und man erhält aus oben

$$\chi^{(3)} = \frac{Nbe^4}{3m^3(\omega_0^2)^4} = \frac{e^4}{m^3\omega_0^6 d^5}$$

mit  $d = 3\text{\AA}$  und  $\omega_0 = 1 \cdot 10^{16} \frac{1}{s}$  ergibt sich

$$\begin{aligned} \chi^{(3)} &\simeq 3 \cdot 10^{-15} \text{esu} \\ &= \frac{4\pi}{(3 \cdot 10^4)^2} \chi^{(3)} [\text{esu}] \\ &= 4 \cdot 10^{-23} \frac{\text{m}^2}{\text{V}^2} \end{aligned}$$

## 4.2 Intensitätsabhängiger Brechungsindex

Bei Vorgängen dritter Ordnung wirken drei Felder zusammen und erzeugen zusätzliche Polarisationswellen bei allen möglichen Mischfrequenzen.

- $\chi^{(3)}$ - Korrektur zum Brechungsindex

Wir betrachten hier nur den Fall, in dem alle drei Felder dieselbe Frequenz haben, also aus einem Lasersrahl entnommen wird. Außerdem interessieren wir uns nicht für Frequenzverdreifung sondern nur für die zusätzliche elektrische Polarisation, die bei der Frequenz der Lichtwelle entsteht:

$$\chi^{(3)}(\omega = \omega + \omega - \omega).$$

Die Polarisationswelle lautet also

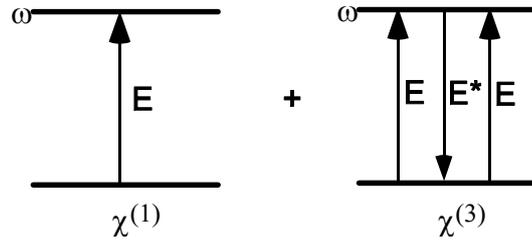
$$P^{nl}(\omega) = 3\chi^{(3)}(\omega = \omega + \omega - \omega)E \cdot E^* \cdot E.$$

Dazu kommt die Polarisation aufgrund von  $\chi^{(1)}$

$$P_{total} = \chi^{(1)} \cdot E(\omega) + 3\chi^{(3)}|E(\omega)|^2 \cdot E(\omega) = \chi_{eff}E(\omega)$$

mit

$$\chi_{eff} = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} \cdot |E(\omega)|^2.$$



Mit der allgemein gültigen Beziehung

$$n^2 = 1 + 4\pi \cdot \chi_{eff}$$

ergibt sich

$$n^2 = \underbrace{1 + 4\pi \cdot \chi^{(1)}}_{n_o^2} + 12\pi\chi^{(3)} |E(\omega)|^2$$

wobei  $n_o^2$  der normale lineare Brechungsindex ist.

- Der  $n_2$ -Koeffizient

Wir definieren den Koeffizienten  $n_2$  für den nichtlinearen Brechungsindex durch den allgemeinen Ansatz

$$n = n_o + n_2 \cdot I,$$

den wir quadrieren und bis zur 1. Ordnung in  $I$  entwickeln:

$$\begin{aligned} n^2 &= n_o^2 + n_2^2 \cdot I^2 + 2n_o n_2 \cdot I \\ &\sim n_o^2 + 2n_o \cdot n_2 \cdot I \end{aligned}$$

Der Vergleich mit oben ergibt:

$$2n_o \cdot n_2 \cdot I = 12\pi\chi^{(3)} |E|^2$$

Mit dem Zusammenhang der zeitlich gemittelten Intensität und dem Feld:

$$I = \frac{n_o c}{2\pi} |E(\omega)|^2$$

erhält man

$$2n_o n_2 \cdot I = 12\pi\chi^{(3)} \cdot \frac{2\pi}{n_o c} \cdot I$$

oder

$$n_2 = \frac{12\pi^2 \chi^{(3)}}{n_o^2 c}.$$

Rechnet man in SI-Einheiten um, so gilt

$$n_2 \left( \frac{cm^2}{W} \right) = \frac{12\pi^2}{n_o^2 c} 10^7 \chi^{(3)} (esu) = \frac{0.0395}{n_o^2} \chi^{(3)} (esu)$$

- Zahlenwerte

$$\chi^{(3)} = 10^{-14} \text{esu} - 10^{-4} \text{esu}$$

$$n_2 = 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}} - 10^{-6} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$$

Diese Werte erscheinen klein, können aber zu drastischen Effekten führen

### 4.3 Optische Phasenkongjugation:

- Phasenkongjugation und Zeitumkehr

Gesucht ist ein "Spiegel" mit einer Feldreflektivität  $r$ , der eine Welle

$$\vec{E}_s(\vec{r}, t) = \vec{E}_s e^{-i\omega t} + c.c.$$

in eine Welle

$$\vec{E}_c(\vec{r}, t) = r \cdot (\vec{E}_s^* e^{-i\omega t} + c.c.)$$

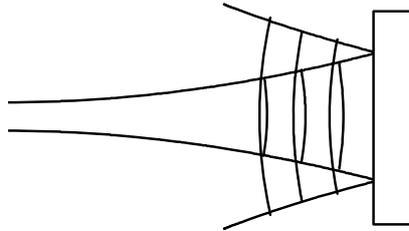
überführt, d. h. die Feldamplitude in ihre komplex konjugierte überführt,  $\vec{E}_s \rightarrow \vec{E}_s^*$ . Eine solche "Reflexion" entspricht einer Zeitumkehr:

$$\vec{E}_s(\vec{r}, -t) = \vec{E}_s \cdot e^{i\omega t} + \vec{E}_s^* \cdot e^{-i\omega t} = \frac{1}{r} \cdot \vec{E}_c(\vec{r}, t)$$

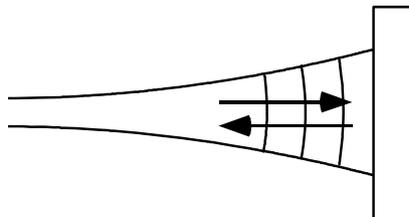
d. h.

$$\vec{E}_c(\vec{r}, t) = r \cdot \vec{E}_s(\vec{r}, -t)$$

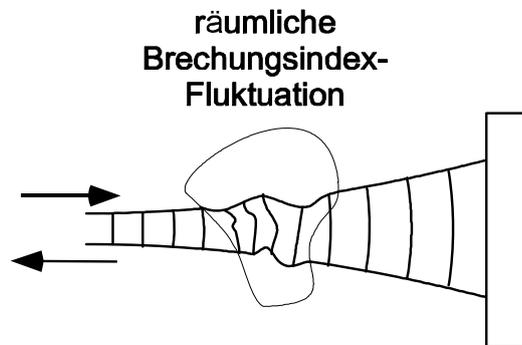
Die reflektierte Feldamplitude  $\vec{E}_c(\vec{r}, t)$  sieht also genauso aus wie eine Filmaufnahme des einfallenden Lichts, die man rückwärts ablaufen lässt! Für einen normalen Spiegel sieht ein reflektierter Gaußstrahl etwa so aus:



Ein phasenkongjugierter Spiegel reflektiert den Strahl in sich zurück:



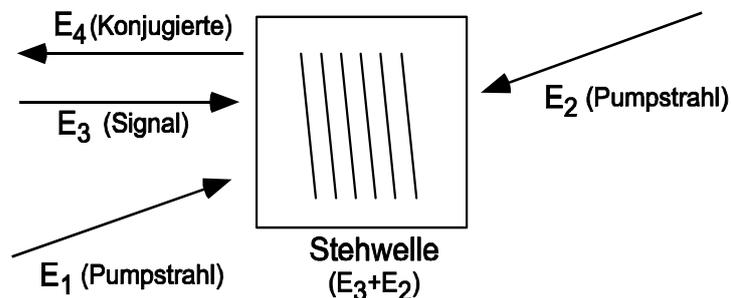
Da derselbe optische Weg auf Hin- und Rückweg durchlaufen wird, gleichen sich Störungen der Übertragungsstrecke wieder aus.



Man erhält einen ungestörten Strahl zurück.

- Phasenkongjugation mit Hilfe von  $\chi^{(3)}$

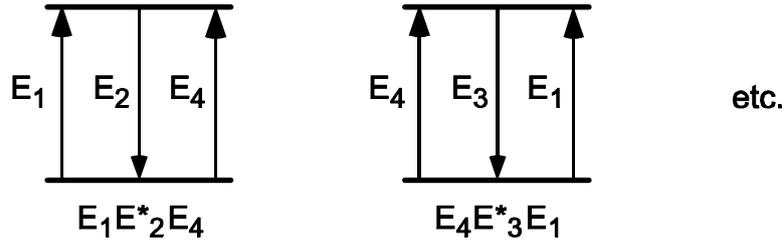
Einen solchen phasenkongjugierten Spiegel kann man mit einem nichtlinearen  $\chi^{(3)}$  Prozess erzeugen, der sogenannten entarteten Vierwellenmischung.



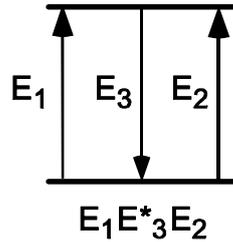
Alle Wellen haben dieselbe Frequenz. Die Signalwelle  $E_3$  interferiert mit der Pumpwelle  $E_2$ . Das auftretende Interferenzmuster prägt dem Kristall ein entsprechendes Brechungsindexmuster ein. An diesem Muster wird der Pumpstrahl  $E_1$  gebeugt. Der Bragg-Reflex von  $E_1$  bildet den auslaufenden Strahl  $E_4$ . Das ganze funktioniert wie ein Hologramm, wo bei  $E_2$  die Referenzwelle ist und der nichtlineare Brechungsindex wie die Photoplatte wirkt. Ausgelesen wird mit Hilfe des "Beleuchtungslichts"  $E_1$ .

- relevanter Prozess

Formal sieht man das ganze folgendermaßen. Die elektrische Polarisation bei der Frequenz  $\omega$  kann durch viele verschiedene Kombinationen zustande kommen.



Unter diesen verschiedenen Möglichkeiten betrachten wir den speziellen Fall  $E_1 E_2 E_3^*$



Die Wellen  $E_2$  (Referenzlicht) und  $E_3$  (Signal) bilden ein Stehwellenmuster, das die Polarisierbarkeit im Kristall moduliert. Durch die Pumpwelle  $E_1$  entsteht dann durch diese Polarisierbarkeitsverteilung eine Polarisationswelle:

$$\begin{aligned} P^{NL} &= 6\chi^{(3)} E_1 E_2 E_3^* \\ &= 6\chi^{(3)} A_1 A_2 A_3^* \cdot e^{i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3)\vec{r}} \cdot e^{i(\omega + \omega - \omega)t}. \end{aligned}$$

Die Wellen  $E_1$  und  $E_2$  sollen entgegengesetzte Wellenvektoren haben, d. h.  $\vec{k}_1 = -\vec{k}_2$

$$P^{NL} = 6\chi^{(3)} A_1 \cdot A_2 \cdot A_3^* \cdot e^{-i\vec{k}_3\vec{r}} \cdot e^{-i\omega t} = 6\chi^{(3)} A_1 \cdot A_2 \cdot E_3^*$$

Diese Polarisationswelle erzeugt eine elektrische Welle  $E_4 \sim P^{NL}$ , die damit zu  $E_3$  konjugiert ist:

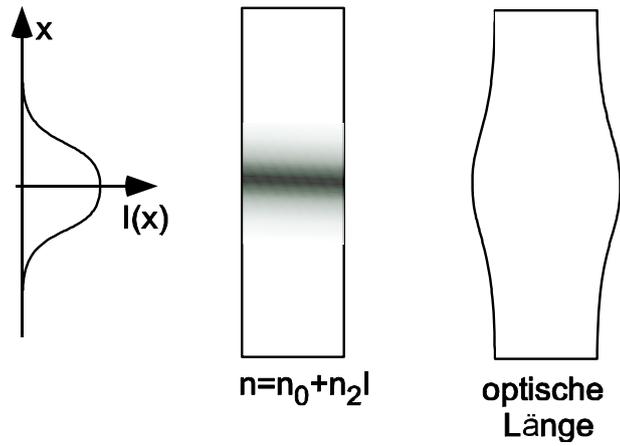
$$E_4 \sim P^{NL} \sim E_3^*$$

Der Reflexionskoeffizient  $r$  hängt von  $\chi^{(3)}$  und dem Produkt  $A_1 \cdot A_2$  ab. Die Leistungsreflektivität ist damit propotional zum Produkt  $(\chi^{(3)})^2 \cdot P_1 \cdot P_2$ .

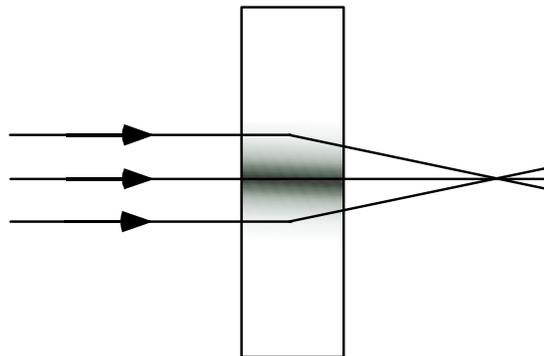
## 4.4 Selbstfokussierung von Licht

- Kerrlinse

Der intensitätsabhängige Brechungsindex ist im Zentrum eines Strahls höher als am Rand:

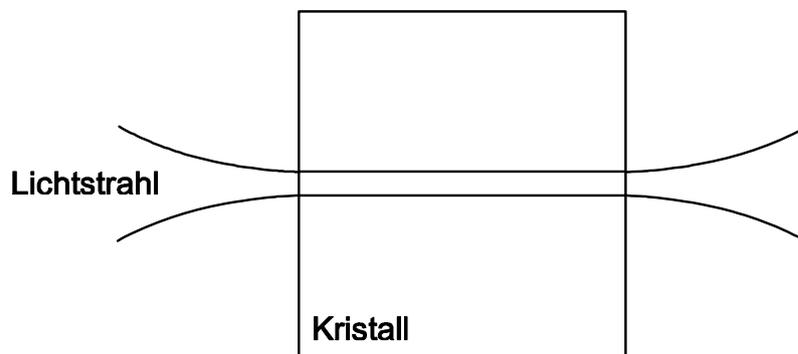


Bei moderaten Lichtintensitäten bildet das Material einfach eine Linse:



- Solitonen

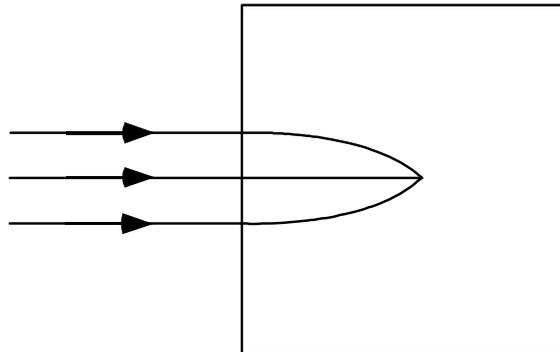
Ist die Intensität gerade richtig gewählt kann der selbstfokussierende Effekt das Auseinanderlaufen des Gaußstrahls gerade kompensieren:



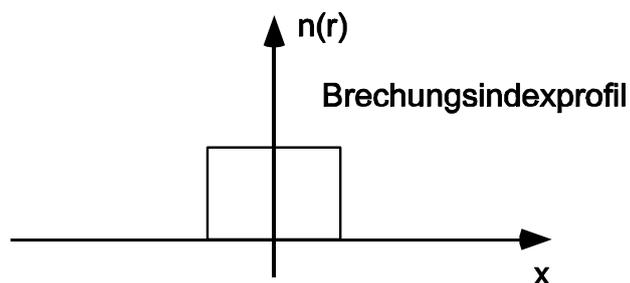
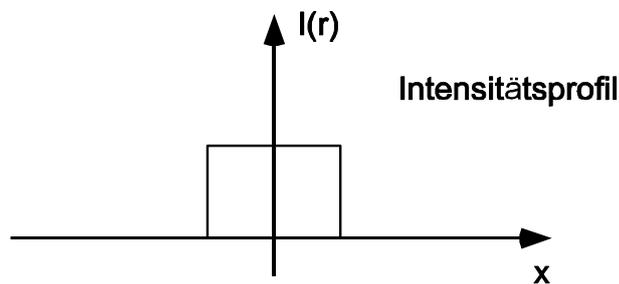
Man erhält ein "räumliches Soliton" (siehe auch Physik Journal, Oktober 2003, Seite 33).

- Selbstfokussierung

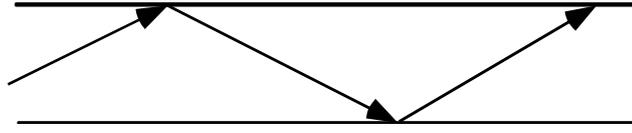
Bei hohen Intensitäten explodiert der Effekt und das Licht bündelt sich im Material immer stärker bis zum Beugungslimit.



Dort kann die Intensität so groß werden, dass das Material schmilzt. Einfaches Modell für Selbstfokussierung: Annahme "kastenförmiges" Strahlprofils.

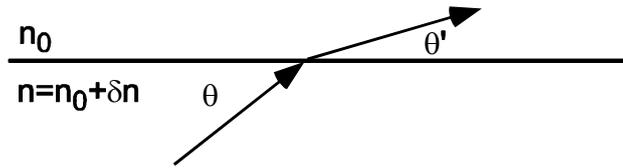


Dadurch entsteht ein Brechungsprofil in dem der Strahl wie in einer Glasfaser durch totale interne Reflexion gefangen ist.



- Kritische Leistung

Ein Gaußstrahl wird gerade dann daran gehindert zu divergieren, wenn der Fernfeldöffnungswinkel des Gaußstrahls dem kritischen Winkel für totale interne Reflexion entspricht.



Der kritische Winkel für Totalreflexion ist

$$\cos \theta_o = \frac{n_o}{n_o + \delta n}.$$

Entwickeln für kleine  $\delta n$  und kleine  $\theta_o$

$$1 - \frac{1}{2}\theta_o^2 = 1 - \frac{\delta n}{n_o}$$

oder

$$\theta_o = \sqrt{\frac{2\delta n}{n_o}}$$

Vergleich mit dem Fernfeld-Öffnungswinkel  $\theta_d$  eines Gaußstrahls mit Strahltaile  $w_o$

$$\tan \theta_d = \frac{2}{k \cdot w_o}$$

$$\theta_d \sim \frac{\lambda}{n_o \cdot \pi \cdot w_o}$$

Der Strahl wird eingefangen, wenn

$$\theta_o = \theta_d$$

$$\sqrt{\frac{2\delta n}{n_o}} = \frac{\lambda}{\pi \cdot w_o \cdot n_o}$$

Der Brechungsindexsprung  $\delta n$  hängt von der Intensität ab

$$\delta n = n_2 \cdot I,$$

und mit

$$P = \pi w_o^2 \cdot I$$

von der Leistung

$$\delta n = \frac{n_2}{\pi \cdot w_o^2} \cdot P.$$

Einsetzen ergibt:

$$\frac{2\delta n}{n_o} = \left( \frac{\lambda}{\pi \cdot w_o \cdot n_o} \right)^2$$

$$\frac{2}{n_o} \cdot \frac{n_2}{\pi \cdot w_o^2} \cdot P_c = \frac{\lambda^2}{\pi^2 \cdot w_o^2 \cdot n_o^2}$$

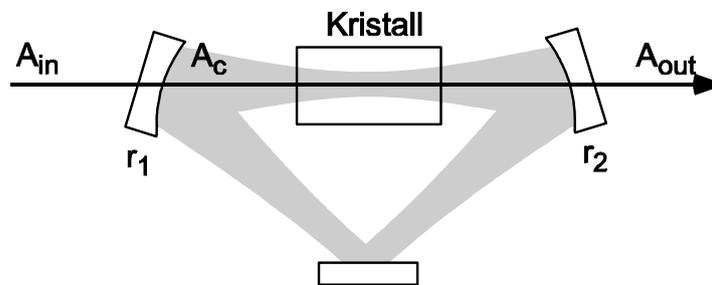
$$P_c = \frac{\lambda^2}{2\pi} \cdot \frac{1}{n_o \cdot n_2}$$

Der Einfangeffekt hängt also nicht von der Intensität ab, sondern von der Leistung!  
Für ein bestimmtes Material gibt es eine maximale Leistung oberhalb der das Material optisch zerstört wird!

## 4.5 Optische Bistabilität

- absorptive Bistabilität

In einen optischen Resonator wird ein nichtlineares Medium eingesetzt:



Das Medium soll eine intensitätsabhängige Leistungs-Absorption haben

$$L(I) = \frac{L_o}{1 + \frac{I}{I_s}}$$

$I_s$  ist eine für das Material typische Sättigungsintensität. Die selbstkonsistente Lösung lautet:

$$A_c = A_c \sqrt{1 - L(I)} \cdot r_1 \cdot r_2 \cdot e^{i\varphi} + \sqrt{1 - r_1^2} \cdot A_{in}.$$

In Resonanz, also  $\varphi = 0$ , erhält man

$$A_c = \frac{\sqrt{1 - r_1^2} \cdot A_{in}}{1 - \sqrt{1 - L(I)} \cdot r_1 r_2}$$

Einsetzen der Funktion  $L(I)$  ergibt

$$A_c = \frac{\sqrt{1 - r_1^2} \cdot A_{in}}{1 - \sqrt{1 - \frac{L_o}{1 + I_c/I_s}} \cdot r_1 \cdot r_2}$$

Wir interessieren uns für die Intensität hinter dem Resonator:

$$I_{out} = (1 - r_2^2) \cdot I_c,$$

wobei sich  $I_c$  durch quadrieren der Amplitudengleichung ergibt:

$$I_c = I_{in} \cdot \frac{1 - r_1^2}{\left(1 - \sqrt{1 - \frac{L_o}{1 + I_c/I_s}} r_1 \cdot r_2\right)^2}$$

Wir machen einige vereinfachende Annahmen:  $r_1 = r_2$  woraus folgt, dass  $R_2 = R$  und  $T_1 = T_2 = T$ . Damit schreibt sich

$$I_{in} = I_c \cdot \frac{1}{T} \cdot \left(1 - R \sqrt{1 - \frac{L_o}{1 + I_c/I_s}}\right)^2,$$

was sich weiter vereinfachen läßt, wenn man die Verluste als klein annimmt,  $L \ll 1$ , und die Wurzel entwickelt ( $\sqrt{1 - x} = 1 - \frac{1}{2}x$ ):

$$\begin{aligned} I_{in} &= I_c \cdot \frac{1}{T} \left(1 - R \left(1 - \frac{1}{2} \frac{L_o}{1 + I_c/I_s}\right)\right)^2 \\ I_{in} &= I_c \cdot T \left(1 + \frac{RL_o}{2T} \cdot \frac{1}{1 + I_c/I_s}\right)^2 \end{aligned}$$

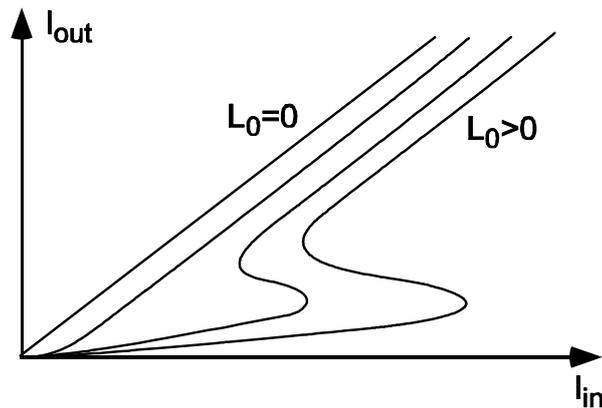
Mit

$$I_{out} = T \cdot I_c$$

erhält man schließlich

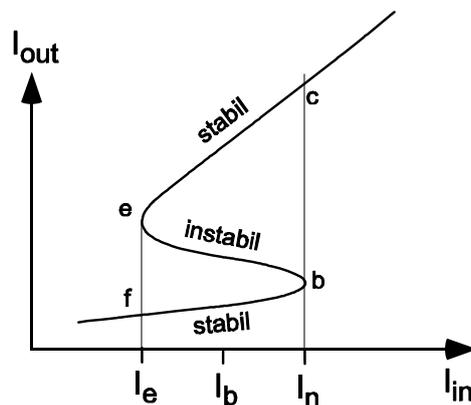
$$I_{in} = I_{out} \left(1 + \frac{RL_o}{2T} \cdot \frac{1}{1 + \frac{1}{T} \frac{I_{out}}{I_s}}\right)^2.$$

Auflösen nach  $I_{out}$  führt zu einer kubischen Gleichung, die unangenehm ist. Statt dessen tragen wir  $I_{in}$  gegen  $I_{out}$  auf, allerdings mit x- und y-Achse vertauscht:



- Stabilitätsdiskussion

Die Struktur der Kurven sieht so aus:



Es gibt für Werte von  $I_{in}$  zwischen  $I_e$  und  $I_n$  drei mögliche Werte von  $I_{out}$ . Welcher Wert eingenommen wird entscheidet eine Stabilitätsanalyse. Die Gleichungen gelten nur für den Gleichgewichtsfall. Um die Dynamik zu studieren, benötigt man die dynamischen Differentialgleichungen, die man um die Gleichgewichtslösungen linearisiert und dann abliest, welche Lösungen bei kleinen Abweichungen in sich zurück führen und welche nicht. Man stellt fest, dass alle Punkte auf dem mittleren Ast instabil sind. Es gibt also zwei stabile Lösungsäste.

- Optischer Schalter

Man stellt  $I_{in}$  auf  $I_b$  ein. Ein kurzer Puls mit  $I_{in} \gg I_n$  erzwingt die obere Lösung, der Resonator transmittiert Licht auch nach dem Puls. Ein kurzes Absenken von  $I_{in}$  unter den Wert von  $I_e$  erzwingt die untere Lösung. Der Resonator bleibt dunkel auch wenn die Intensität  $I_b$  wieder hergestellt ist.

- Dispersive Bistabilität

Das Medium soll jetzt nicht absorbieren, sondern einen intensitätsabhängigen Brechungsindex haben.

$$n = n_o + n_2 \cdot I$$

Die pro Umlauf angesammelte Phase lautet jetzt

$$\begin{aligned} \varphi &= \hat{\varphi}_o + n \cdot k \cdot l \\ &= \underbrace{\hat{\varphi}_o + n_o \cdot k \cdot l}_{\varphi_o} + \underbrace{n_2 \cdot k \cdot l \cdot I}_{\text{intensitätsabh. Teil}} \end{aligned}$$

Betrachten wir noch mal den Resonator für  $R_1 = R_2 = R$  aber beliebige Verstimmung  $\varphi$

$$A_c = \frac{\sqrt{T} \cdot A_{in}}{1 - R \cdot e^{i\varphi}}$$

Nach quadrieren erhält man die Intensität

$$I_c = T \cdot I_{in} \cdot \frac{1}{(1 - R \cdot e^{i\varphi})(1 - R \cdot e^{-i\varphi})} = \frac{T \cdot I_{in}}{1 + R^2 - 2R \cos \varphi}$$

Mit obigem Ausdruck für  $\varphi$  folgt:

$$\frac{I_c}{I_{in}} = \frac{1}{1 + R^2 - 2R \cos(\varphi_o + n_2 \frac{\omega}{c} \cdot l \cdot I_c)}$$

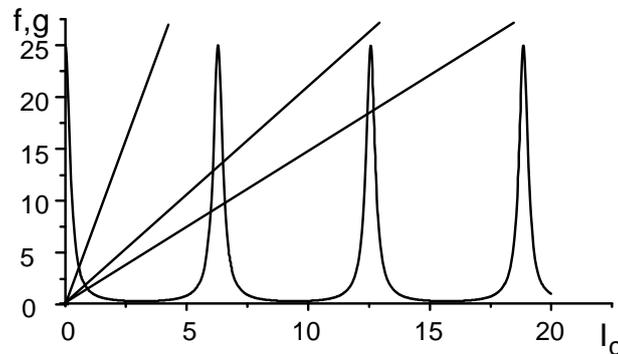
was sich wieder nicht nach  $I_c$  auflösen lässt. Betrachten wir aber die linke und die rechte Seite jeweils als getrennte Funktionen

$$g(I_c) := \frac{1}{I_{in}} \cdot I_c$$

und

$$f(I_c) := \frac{1}{1 + R^2 - 2R \cos(\varphi_o + n_2 \frac{\omega}{c} \cdot l \cdot I_c)}$$

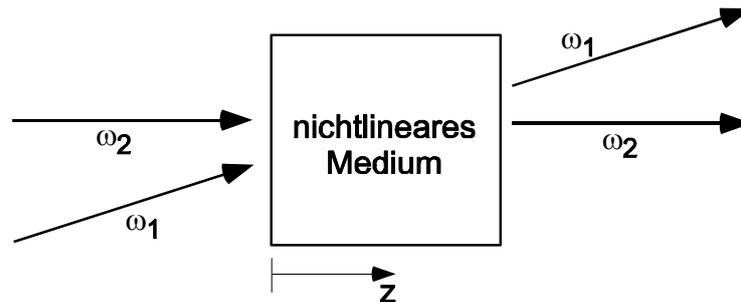
so sind die Lösungen Punkte, an denen sich die beiden Funktionen schneiden.



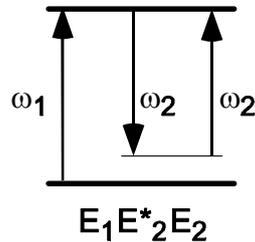
Je nach Stärke von  $I_{in}$  gibt es eine oder mehrere Lösungen. Die Struktur der mittleren Lösung entspricht der der absorptiven Bistabilität mit der entsprechenden Interpretation als optischer Schalter.

## 4.6 Zweistrahlkopplung

- Szenario



Zwei Strahlen werden in das Medium eingekoppelt. Die Strahlen haben verschiedene Frequenzen und können Energie austauschen. Ähnlich wie bei der Phasenkonjugation erzeugt man mit 3 Feldern eine Polarisationswelle, die dann mit der 4. Welle Energie austauscht. 2 Felder stammen hier jedoch jeweils aus derselben Welle.



Wie bei der Phasenkonjugation bildet sich zunächst ein Brechungsindexmuster, das dem Interferenzmuster der beiden Strahlen entspricht. An diesem Phasengitter beugt dann ein Strahl in den anderen und umgekehrt. Um netto einen Energieübertrag zu erhalten, benötigt man für den nichtlinearen Brechungsindex ein bestimmtes Zerfallsverhalten. Um die Situation zu verstehen untersuchen wir zunächst das entstehende Brechungsindexmuster und überlegen dann wie an diesem Muster Energie übertragen wird.

- Interferenzmuster.

Das Feld lautet

$$E(\vec{r}, t) = A_1 e^{i(\vec{k}_1 \vec{r} - \omega_1 t)} + A_2 e^{i(\vec{k}_2 \vec{r} - \omega_2 t)} + c.c.$$

wobei

$$k_i = n_o \cdot \omega_i / c$$

Zur Bestimmung des nichtlinearen Brechungsindex benötigen wir die zeitlich über eine Lichtschwingung gemittelte Intensität:

$$I = \frac{n_o c}{4\pi} E^2(r, t)$$

Einsetzen des Feldes ergibt

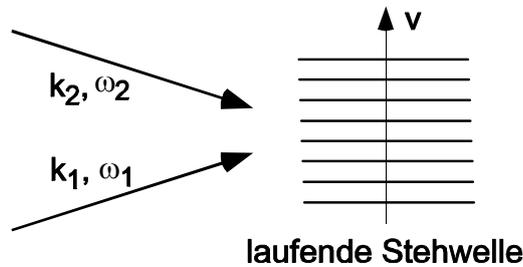
$$\begin{aligned} I &= \frac{n_o c}{2\pi} \left( A_1 A_1^* + A_2 A_2^* + (A_1 \cdot A_2^* \cdot e^{i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)\vec{r} - i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c.) \right) \\ &= \frac{n_o c}{2\pi} \left( |A_1|^2 + |A_2|^2 + (A_1 \cdot A_2^* \cdot e^{i(\vec{q}\vec{r} - \delta t)} + c.c.) \right), \end{aligned}$$

wobei

$$\begin{aligned} \vec{q} &: = \vec{k}_1 - \vec{k}_2 \\ \delta &: = \omega_1 - \omega_2. \end{aligned}$$

Die schnellen Zeitabhängigkeiten mit  $\omega_1, \omega_2$  und  $\omega_1 + \omega_2$  mitteln sich heraus. Nur die sehr viel langsamere Frequenz  $\delta$  wird nicht gemittelt. Wir machen also die Annahme, dass  $\delta \ll \omega_1, \omega_2$ . Das Interferenzmuster  $I(\vec{r}, t)$  entspricht einer laufenden Stehwelle mit einer Geschwindigkeit

$$\vec{v} = \frac{\delta}{q^2} \cdot \vec{q} \quad \text{bzw.} \quad |\vec{v}| = \frac{\delta}{|q|}.$$



- Zerfall

Das Intensitätsmuster erzeugt ein Brechungsindexmuster. Wir nehmen an, dass es nicht instantan entsteht und zerfällt, sondern dass es verzögert reagiert. Ansatz:

$$\dot{n}_{NL} = -\gamma n_{NL} + a \cdot I(t)$$

Im Gleichgewicht gilt

$$0 = -\gamma n_{NL} + a \cdot I(t)$$

oder

$$n_{NL} = \frac{a}{\gamma} \cdot I(t).$$

Durch Vergleich mit der Definition von  $n_{NL}$

$$n_{NL} = n_2 \cdot I$$

erhält man

$$a = n_2 \cdot \gamma.$$

Unter Verwendung der Zerfallszeit  $\tau = \frac{1}{\gamma}$  lautet die Gleichung also

$$\dot{n}_{NL} = -\frac{1}{\tau} \cdot n_{NL} + \frac{n_2}{\tau} \cdot I(t)$$

- Formale Lösung

Die DGL lässt sich formal lösen mit

$$n_{NL}(t) = \frac{n_2}{\tau} \int_{-\infty}^t I(t') e^{(t'-t)/\tau} dt'.$$

Um das zu sehen, müssen wir die Funktion  $n_{NL}(t)$  ableiten. Wir müssen die Ableitung einer Funktion der Form

$$f(x) = \int_{-\infty}^x g(x, x') dx'$$

bilden. Wir benutzen die formale Definition der Ableitung und bilden zunächst den Differenzenquotienten:

$$\begin{aligned} \frac{f(x + \Delta x) - f(x)}{\Delta x} &= \frac{1}{\Delta x} \left( \int_{-\infty}^{x+\Delta x} g(x + \Delta x, x') dx' - \int_{-\infty}^x g(x, x') dx' \right) \\ &= \frac{1}{\Delta x} \left( \int_{-\infty}^x g(x + \Delta x, x') dx' - \int_{-\infty}^x g(x, x') dx' \right) \\ &\quad + \frac{1}{\Delta x} \int_x^{x+\Delta x} g(x + \Delta x, x') dx' \\ &= \int_{-\infty}^x \frac{1}{\Delta x} (g(x + \Delta x, x') - g(x, x')) dx' \\ &\quad + \frac{1}{\Delta x} (G(x + \Delta x, x + \Delta x) - G(x + \Delta x, x)) \end{aligned}$$

Jetzt kommt die Grenzwertbildung:

$$\begin{aligned} \lim_{\Delta x \rightarrow 0} \left( \frac{f(x + \Delta x) - f(x)}{\Delta x} \right) &= \int_{-\infty}^x \frac{d}{dx} g(x, x') dx' + \left. \frac{d}{dx'} G(x, x') \right|_{x'=x} \\ \frac{df(x)}{dx} &= \int_{-\infty}^x \frac{d}{dx} g(x, x') dx' + g(x, x). \end{aligned}$$

Mit dieser Formel können wir die Ableitung der formalen Lösung für  $n_{NL}(t)$  bilden und erhalten

$$\begin{aligned}\dot{n}_{NL}(t) &= \frac{n_2}{\tau} \int_{-\infty}^t \frac{-1}{\tau} I(t') e^{(t'-t)/\tau} dt' + \frac{n_2}{\tau} I(t) \\ &= -\frac{1}{\tau} n_{NL}(t) + \frac{n_2}{\tau} I(t).\end{aligned}$$

- Ausdruck für das Brechungsindexgitter

Setzen wir für  $I(t)$  das laufende Interferenzmuster ein, so haben die zeitabhängigen Anteile die Form:

$$\begin{aligned}\int_{-\infty}^t e^{-i\delta t'} e^{(t'-t)/\tau} dt' &= e^{-t/\tau} \int_{-\infty}^t e^{(-i\delta+1/\tau)t'} dt' \\ &= \frac{e^{-i\delta t}}{-i\delta + \frac{1}{\tau}}\end{aligned}$$

Entsprechend der komplex konjugierte Term. Insgesamt erhält man also als Ergebnis:

$$n_{NL}(t) = \frac{n_o \cdot n_2 \cdot c}{2\pi} \left( |A_1|^2 + |A_2|^2 + \left( \frac{A_1 \cdot A_2^* \cdot e^{i(\vec{q}\vec{r}-\delta t)}}{1 - i\delta\tau} + c.c. \right) \right)$$

- Wellengleichung mit Brechungsindexgitter

Wir beschreiben die Beugung durch Lösung der Wellengleichung mit Brechungsindexgitter. Wir beginnen mit der Wellengleichung

$$\nabla^2 E(\vec{r}, t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\vec{r}, t) = 0,$$

verwenden den Brechungsindex

$$n = n_o + n_{NL},$$

und bilden das Quadrat

$$\begin{aligned}n^2 &= n_o^2 + 2n_o \cdot n_{NL} + n_{NL}^2 \\ &\simeq n_o^2 + 2n_o n_{NL}.\end{aligned}$$

Hier haben wir den letzten Term vernachlässigt, da  $n_{NL} \ll n_o$ . Wir setzen  $n^2$  in die Wellengleichung ein unter Verwendung des obigen Ausdrucks von  $n_{NL}(t)$  und suchen

eine Lösung der Form  $e^{i(\vec{k}_2 \vec{r} + \omega_2 t)}$ , fragen also nach der Wirkung auf die Welle mit der Frequenz  $\omega_2$ . Wir erhalten:

$$\begin{aligned} & \frac{d^2 A_2}{dz^2} + 2ik_2 \frac{dA_2}{dz} - k_2^2 A_2 + \frac{n_o \omega_2^2}{c^2} A_2 \\ &= -\frac{n_o^2 n_2 \omega_2^2}{\pi c} (|A_1|^2 + |A_2|^2) A_2 - \frac{n_o^2 n_2 \omega_1^2 |A_1|^2 A_2}{\pi c (1 + i\delta\tau)} \end{aligned}$$

Die Näherung der sich langsam ändernden Amplitude führt zu einer Amplitudengleichung für  $A_2$  :

$$\frac{dA_2}{dz} = i \underbrace{\left( \frac{n_o n_2 \omega_2}{2\pi} (|A_1|^2 + |A_2|^2) + \frac{n_o n_2 \omega_2}{2\pi} |A_1|^2 \frac{1}{1 + \delta^2 \tau^2} \right)}_{\text{dispersiver Anteil}} A_2 + \underbrace{\left( \frac{n_o n_2 \omega_2}{2\pi} |A_1|^2 \frac{\delta \cdot \tau}{1 + \delta^2 \tau^2} \right)}_{\text{absorptiver Anteil}} A_2$$

- Intensitätsgleichung

Um daraus eine Differentialgleichung für die Intensität abzuleiten, bilden wir die Ableitung des Intensitätsausdrucks:

$$\begin{aligned} I &= \frac{n_o c}{2\pi} A \cdot A^* \\ \frac{dI}{dz} &= \frac{n_o c}{2\pi} \left( A \cdot \frac{dA^*}{dz} + \frac{dA}{dz} \cdot A^* \right) \end{aligned}$$

und setzen die Feldableitung gemäß der Feld-Dgl. ein:

$$\frac{dI_2}{dz} = \frac{2n_2 \omega}{c} \frac{\delta \cdot \tau}{1 + (\delta \cdot \tau)^2} I_1 \cdot I_2$$

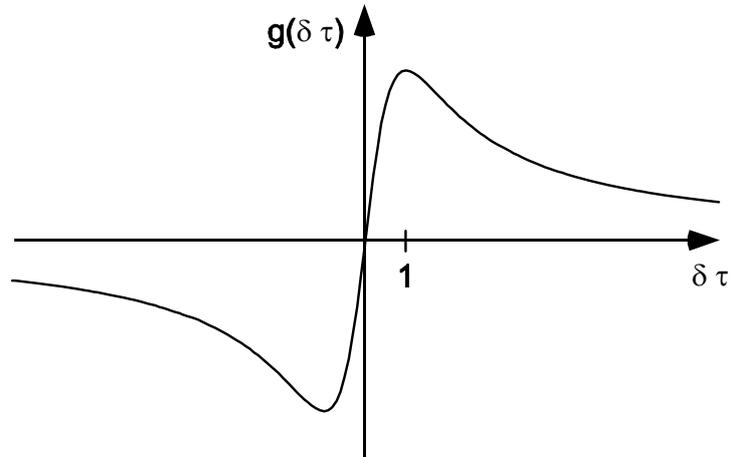
wobei wir nähern:  $\omega_1 \sim \omega_2 \sim \omega$ . (Abweichungen stecken in der Verstimmung). Wir erhalten also eine optische Verstärkung für  $I_2$

$$\frac{dI_2}{dz} = g \cdot I_2$$

mit dem Verstärkungskoeffizient

$$g := \frac{2n_2 \omega}{c} \cdot \frac{\delta \cdot \tau}{1 + \delta^2 \tau^2} I_1$$

- Verstärkung



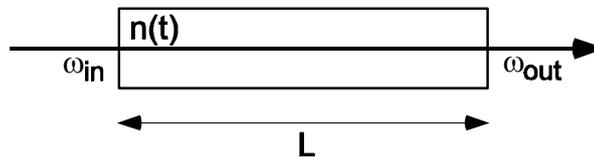
Verstärkung erhält man also für  $\delta \cdot \tau > 0$ , d. h. wenn  $\omega_2 > \omega_1$ . Bei  $\delta_{\max} = \frac{1}{\tau}$  erhält man die maximale Verstärkung

$$g_{\max} = \frac{n_2 \omega}{c} \cdot I_1.$$

## 4.7 Pulse

- Phasenselbstmodulation

Wie sieht eine ebene Welle hinter einem optischen Element aus, das seinen Brechungsindex mit der Zeit ändert?



Die Phase, die in das Medium hineingeht ist  $\delta_{in} = \omega_{in} \cdot t$ . Die Phase, die herauskommt  $\delta_{out} = \omega_{out} \cdot t$ . Im Material steckt die Phase

$$\delta_m = k \cdot L = n(t) \cdot \frac{\omega_{in}}{c} \cdot L.$$

Die Phase, die pro Zeit herauskommt, ist die Phase, die pro Zeit hineingeht minus der Phase, die sich im Material ansammelt.

$$\dot{\varphi}_{out} = \dot{\varphi}_{in} - \dot{\varphi}_m$$

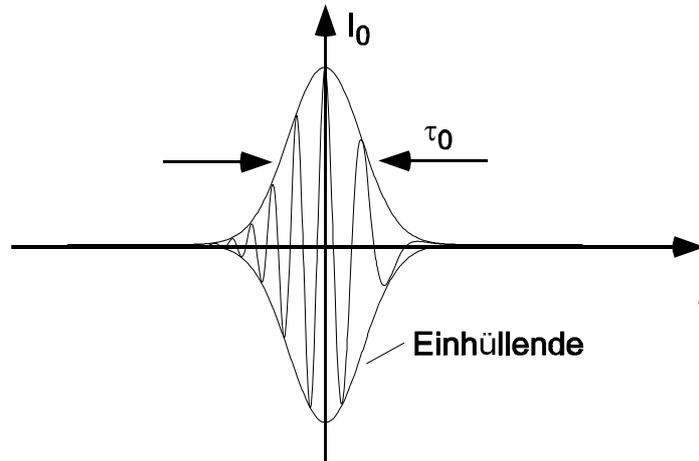
Da die Frequenz die Zeitableitung der Phasen ist,  $\omega = \dot{\varphi}$ , gilt

$$\omega_{out} = \omega_{in} - \frac{\omega_{in}}{c} \cdot L \cdot \dot{n}(t) = \omega_{in} \left( 1 - \frac{L}{c} \cdot \dot{n}(t) \right)$$

Die Frequenz verringert sich also solange der Brechungsindex wächst und steigt, wenn der Brechungsindex fällt.

- Lichtpuls im Kerrmedium

Wie läuft ein Lichtpuls durch ein Medium mit intensitätsabhängigem Brechungsindex?



Der Puls soll viele Schwingungen lang sein. Während der Anstiegsflanke steigt der Brechungsindex und die Frequenz sinkt. Während der Abstiegsflanke steigt die Frequenz wieder. Der Puls erzeugt also neue Frequenzen. Die maximale Frequenzverschiebung ist durch die Rate  $\dot{\varphi}_m^{(\max)}$  in den Flanken gegeben. Dort ändert sich der Brechungsindex etwa mit

$$\dot{n}_{\max} \simeq \frac{n_{\max}}{\tau_o}.$$

Eingesetzt in die Gleichung vorne erhält man

$$\delta\omega_{\max} = \dot{\varphi}_m^{(\max)} \simeq \frac{\omega_{in} \cdot L}{c} \cdot \frac{n_{\max}}{\tau_o} = \frac{\omega_{in} \cdot L}{c} \cdot \frac{n_2 \cdot I_o}{\tau_o}.$$

- Fourierbegrenzte Pulse

Bei Fourier-begrenzten Pulsen ist die Pulslänge  $\tau_o$  wegen der Unschärferelation durch das Spektrum begrenzt

$$\tau_o \sim \frac{1}{\Delta\omega}.$$

Man erzeugt also nur dann Frequenzen außerhalb des bereits vorhandenen Spektrums wenn

$$\delta\omega_{\max} > \Delta\omega \sim \frac{1}{\tau_o}$$

einsetzen von  $\delta\omega_{\max}$  liefert

$$\frac{\omega \cdot L}{c} \cdot \frac{n_2 \cdot I_o}{\tau_o} > \frac{1}{\tau_o}$$

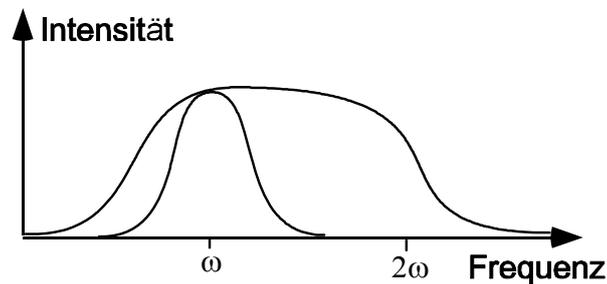
oder

$$\frac{\omega}{c} \cdot \underbrace{n_2 \cdot I_o \cdot L}_{k_{NL}} > 1$$

Die auf der Kristalllänge  $L$  nichtlinear eingesammelte zusätzliche Phase muss also größer als 1 sein.

- Femtosekundenpulse

Mit sehr kurzen Pulsen mit Längen im Femtosekundenbereich kann das Spektrum des Pulses mehr als verdoppelt werden und man erhält kohärentes Licht über mehr als eine Oktave:



Mit einem solchen Phasenmodulator und einem modengekoppelter Femtosekundenlaser kann man optische Frequenzen sehr genau messen. Auf Frequenzen im Radiofrequenzbereich der Cäsium Hyperfeinaufspaltung (etwa 9 GHz) basieren derzeit die besten Uhren. Die Cäsium-Uhr definiert ja gerade die Sekunde. Es war bisher höchst aufwendig optische Frequenzen mit vergleichbarer Genauigkeit zu messen. Das Problem wurde vor kurzem von T.W. Hänsch und Mitarbeitern am MPQ in München folgendermaßen gelöst.

- Aktive Modenkopplung

Ein modengekoppelter Laser erzeugt einen gleichmäßigen Frequenzkamm, was man durch einen optischen Schalter erreicht, der in den Resonator eingesetzt wird und der den Resonator periodisch blockiert. Es bilden sich dann im Resonator umlaufende Pulse, die dann überleben, wenn die Periode des Schalters gerade der Umlaufzeit entspricht. Die Fourieranalyse der im Puls vorhandenen Frequenzen ergibt einen Frequenzkamm mit einem Abstand  $\Delta\nu$  zwischen den Komponenten, der gerade der Frequenz des Schalters entspricht. Diese Frequenz liegt im Radiofrequenzbereich und kann direkt mit der Cäsiumuhr so genau eingestellt werden, wie die Sekunde durch die Cäsiumuhr realisiert werden kann.

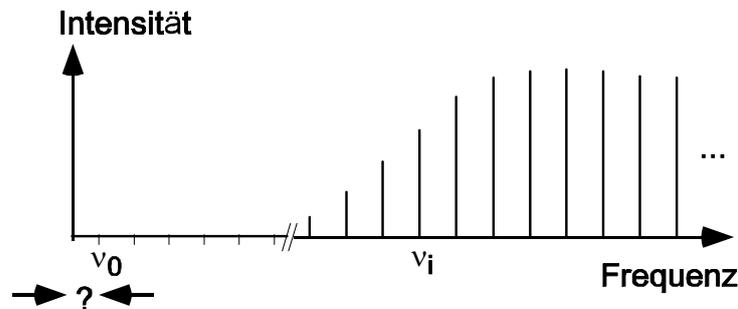
- Passive Modenkopplung

Der Titan Saphir Kristall in sehr breitbandig emittierenden Titan-Saphir-Lasern hat einen nichtlinearen Brechungsindex. Man kann den Laserresonator so bauen, dass er

nur stabil ist, wenn der Kristall eine Kerrlinse ausbildet, also nur für hohe Intensitäten. Diese werden nur erreicht, wenn sich die vielen longitudinalen Moden auf denen der Laser gleichzeitig emittiert sich zu Pulsen überlagern. Im Puls ist die Intensität viele Größenordnungen höher als im kontinuierlichen Betrieb. Es entsteht eine Kerrlinse, die den Resonator stabilisiert so dass der Strahl korrekt in sich zurückgespiegelt wird. Da der Kerreffekt sehr schnell ist, kann man Pulse von wenigen Femtosekunden Dauer erreichen mit Intensitäten, die 10000 mal höher sind als im kontinuierlichen Betrieb.

- Frequenzkamm

Hinter dem Auskoppelspiegel entsteht ein Pulszug, dessen Spektrum aus exakt äquidistanten Frequenzkomponenten besteht. Ihr Abstand ist gerade der freie Spektralbereich des Resonators. Durch elektronische Kontrolle der Resonatorlänge kann man die Wiederholrate auf die Casiumuhr stabilisieren und man erhält so ein perfektes "Metermaß" in Frequenzraum



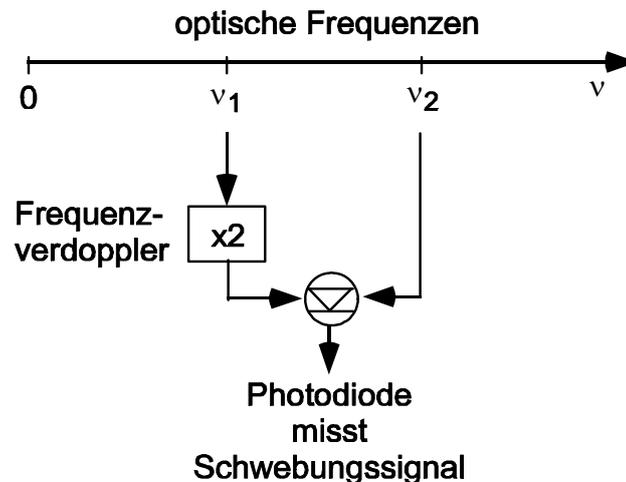
Die optischen Frequenzen, sind also gegeben durch

$$\nu_i = n\Delta\nu + \nu_0,$$

wobei  $n$  eine natürliche Zahl ist, die man durch herkömmliche ungenauere Messmethoden leicht bestimmen kann.

- Kalibrierung des Nullpunkts

Setzt man den Frequenzkamm in Gedanken zu kleinen Frequenzen hin fort, so endet er nicht bei Null, d.h.  $\nu_0 \neq 0$ . Dies liegt hauptsächlich an der nicht sehr gut bekannten Phase bei der Reflektion an den Spiegeln. Um  $\nu_0$  zu messen verdoppelt man eine Komponente am roten (niederfrequenten) Rand des Spektrums und vergleicht sie mit einer Frequenzkomponente des Kamms am blauen (hochfrequenten) Rand des Spektrums, die möglichst in der Nähe liegt. Dazu muß das Spektrum über eine Oktave reichen. Die Differenzfrequenz  $\delta\nu$  zwischen der Harmonischen und der blauen Komponente liegt im Bereich einiger zehn MHz, was man sehr genau messen kann.



Bestimmt man auf diese Weise  $\delta\nu$  so hat man einen Zusammenhang zwischen den beiden betrachteten Frequenzkomponenten des Kamms

$$2\nu_1 = \nu_2 + \delta\nu$$

Außerdem gilt aber auch:

$$\nu_1 = n \cdot \Delta\nu + \nu_o$$

und

$$\nu_2 = m \cdot \Delta\nu + \nu_o$$

mit  $n, m \in \mathbb{N}$ . Eingesetzt in die erste Gleichung ergibt

$$2n \cdot \Delta\nu + 2\nu_o = m \cdot \Delta\nu + \nu_o + \delta\nu$$

oder

$$\nu_o = (m - 2n)\Delta\nu + \delta\nu.$$

Da  $m$  und  $n$  natürliche Zahlen sind und  $\Delta\nu$  sowie  $\delta\nu$  im Radiofrequenzbereich liegen und sehr genau bestimmt werden können kennt man jetzt auch  $\nu_o$  sehr genau. Damit ist auch  $\nu_1$  genau bekannt:

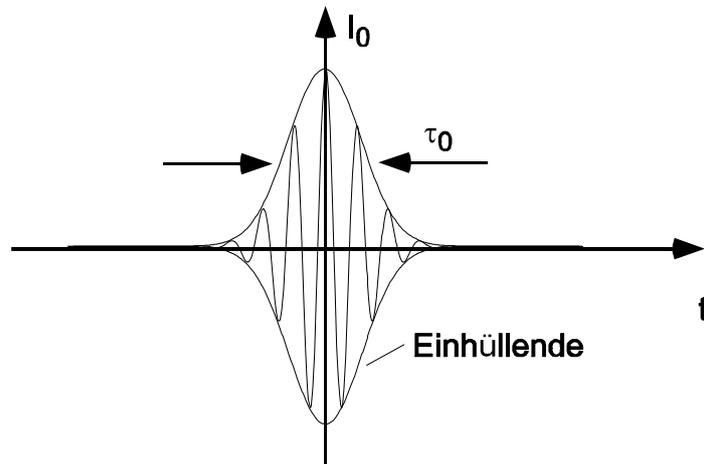
$$\nu_1 = n \cdot \Delta\nu + (m - 2n)\Delta\nu + \delta\nu$$

$$\nu_1 = (m - n) \cdot \Delta\nu + \delta\nu$$

Eine optische Frequenz ist dadurch genau so gut messbar wie eine Radiofrequenz! Die relative Genauigkeit ist dieselbe. Dieser Frequenzkamm wurde in München mit einem vergleichsweise kompakten Titan Saphir Laser realisiert und als kommerzielles Produkt entwickelt. Die relative Genauigkeit ist besser als  $10^{-15}$ .

- Dispersiven Medien

Um die Ausbreitung von Pulsen im dispersiven Medium etwas genauer zu verstehen betrachten wir zunächst einen einfachen Puls. Er besteht aus einer Einhüllenden und einer Sinusfunktion:



$$E(x, t) = A(x - v_g t) \cdot \sin(k(x - v_p t))$$

Das Maximum der Einhüllenden bewegt sich mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g$ , der Sinus mit der Phasengeschwindigkeit  $v_p$ . Allgemein ist die Frequenz einer ebenen Welle eine Funktion der Wellenzahl,  $\omega = \omega(k)$ . Wir interessieren uns für diese Dispersionsfunktion nur in einem bestimmten Bereich um eine Frequenz  $\omega_0 = \omega(k_0)$  und benutzen deshalb die Taylor-Entwicklung:

$$\omega = \omega(k) \simeq \omega(k_0) + \left[ \frac{d\omega}{dk} \right]_{\omega_0} (k - k_0) + \frac{1}{2} \left[ \frac{d^2\omega}{dk^2} \right]_{\omega_0} (k - k_0)^2 + \dots$$

Man kann zeigen, daß die einzelnen Terme mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g$  und der Phasengeschwindigkeit  $v_p$  verknüpft sind:

$$v_g = \frac{d\omega}{dk}$$

und

$$v_p = \frac{\omega(k_0)}{k_0}.$$

In dispersionsfreien Medien ist der Brechungsindex unabhängig von der Frequenz und es gilt

$$\omega = c \cdot \frac{k}{n}$$

und damit

$$v_g = v_p = \frac{c}{n}.$$

Die Einhüllende und die Sinusfunktion bewegen sich gleich schnell und der Puls behält seine Form. In dispersiven Medien weichen beide Geschwindigkeiten voneinander ab und der Sinus läuft unter der Einhüllenden durch.

- Dispersionsrelation

Üblich ist es auch die Dispersionrelation in der Form  $k(\omega)$  zu schreiben:

$$k(\omega) = k_0 + \alpha \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\beta \cdot (\omega - \omega_0)^2.$$

Der Entwicklungskoeffizient

$$\alpha = \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0}$$

erhält man, wenn man die Frequenz nur bis zum linearen Term entwickelt

$$\omega \simeq \omega(k_0) + v_g (k - k_0)$$

nach  $k$  auflöst

$$k \simeq \frac{1}{v_g} (\omega - \omega(k_0)) + k_0.$$

und dann ableitet

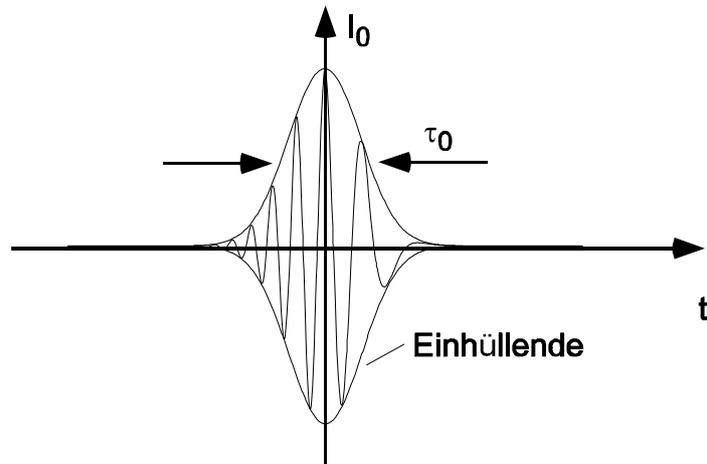
$$\alpha = \frac{dk}{d\omega} \simeq \frac{1}{v_g}.$$

Den Entwicklungskoeffizient  $\beta$  kann man auch durch die Gruppengeschwindigkeit ausdrücken:

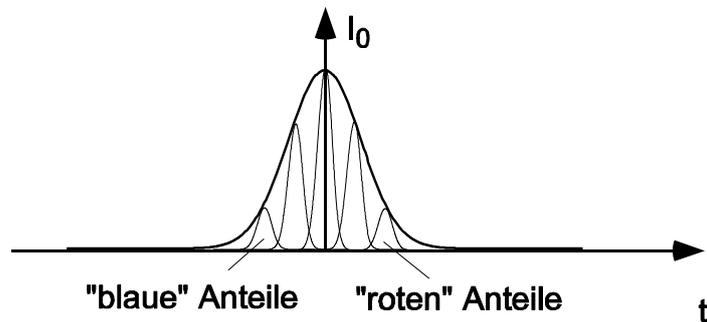
$$\begin{aligned} \beta &= \left. \frac{d^2k}{d\omega^2} \right|_{\omega=\omega_0} \\ &= \left. \frac{d}{d\omega} \left| \frac{1}{v_g(\omega)} \right| \right|_{\omega=\omega_0} \\ &= \left. \left| -\frac{1}{v_g^2} \frac{dv_g}{d\omega} \right| \right|_{\omega=\omega_0}. \end{aligned}$$

- chirped pulses

Zerlegt man einen Puls in sein Fourierspektrum so enthält er verschiedene Frequenzen, die um die Frequenz  $\omega_0$  herum verteilt sind. Die kleinst mögliche Frequenzbreite ist durch die Unschärferelation mit der Pulslänge verknüpft. Das Frequenzspektrum kann aber auch z.B. durch Selbstphasenmodulation verbreitert sein. Die verschiedenen Frequenzen sind dann räumlich und zeitlich getrennt und man erkennt unmittelbar, dass man es mit verschiedenen Frequenzen zu tun hat:



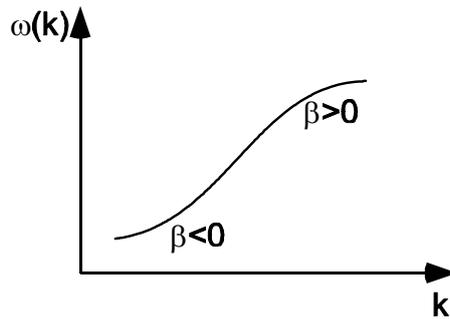
In diesem Beispiel kommen die längeren Perioden zwischen zwei Nulldurchgängen zuerst und klingen wieder ab bevor die kürzeren Perioden kommen. Solche Pulse heißen "chirped" ("chirp" heisst "zwitschern"). Man kann sich daher den Puls aus einzelnen Teilpulsen zusammengesetzt denken wobei die roten Teilpulse zuerst kommen und die blauen folgen.



- Gruppengeschwindigkeitsdispersion

Im Allgemeinen ist auch die Gruppengeschwindigkeit von der Frequenz abhängig. Man spricht dann von der Gruppengeschwindigkeitsdispersion. Als Maß dafür dient oft die zweifache Ableitung von  $k(\omega)$ .

$$\beta = \left[ \frac{d^2}{d\omega^2} k(\omega) \right]_{\omega_0} = \left[ -\frac{1}{v_g^2} \frac{dv_g}{d\omega} \right]_{\omega_0} .$$



Ist  $\beta > 0$  sind die roten Anteile schneller als die blauen und umgekehrt. In einem Medium mit Gruppengeschwindigkeitsdispersion zerfließt ein Puls, da sich die roten und blauen Anteil während der Ausbreitung trennen. Ein gechirpter Puls kann also zeitlich komprimiert werden, wenn  $\beta < 0$ . Dieselben Überlegungen gelten auch für fourierbegrenzte Pulse ohne chirping. Dort sind die Frequenzanteile zunächst nicht getrennt sondern gleichmäßig über den ganzen Puls verteilt.

- Solitonen

Solitonen sind Wellenpulse, deren Form sich bei der Ausbreitung nicht ändert. Entdeckt durch John Scott Russel 1834 an Wasserwellen in langstreckten Kanälen. Das Nichtzerfließen ist ungewöhnlich für Wasser, für Lichtpulse im Vakuum aber normal. Licht im dispersiven Medium zerfließt allerdings auch. In Medien mit intensitätsabhängigem Brechungsindex kann man das Zerfließen kompensieren und Solitonen erzeugen. Im Fall dass  $n_2 > 0$  und  $\beta < 0$  wird durch den nichtlinearen Brechungsindex die Anstiegsflanke rotverschoben. Die roten Anteile laufen aber bei  $\beta < 0$  langsamer als die blauen. Die Anstiegsflanke wird also gebremst und analog die Abstiegsflanke beschleunigt. Der Puls wird komprimiert. Wählt man die richtige Intensität so heben sich beide Effekte auf und der Puls breitet sich aus ohne die Form zu ändern.

- Pulsgleichung für die Einhüllende

Wir suchen eine Differentialgleichung für die Einhüllende eines Pulses in einem Kernmedium. Wir beginnen mit dem Ansatz

$$\tilde{E}(z, t) = \tilde{A}(z, t) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + c.c.$$

und der Wellengleichung

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{D}}{\partial t^2} = 0$$

wobei die dielektrische Verschiebung  $D$  sowohl die lineare als auch die nichtlineare Polarisation enthält. Mit den Fouriertransformierten  $\tilde{E}(\omega, t)$  und  $\tilde{D}(\omega, t)$  definiert

durch

$$\begin{aligned}\tilde{E}(z, t) &= \int_{-\infty}^{\infty} E(z, \omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi} \\ \tilde{D}(z, t) &= \int_{-\infty}^{\infty} D(z, \omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi}\end{aligned}$$

und dem Zusammenhang

$$D(z, \omega) = \varepsilon(\omega) E(z, \omega)$$

schreibt sich die Wellengleichung jetzt

$$\frac{\partial^2 E(z, \omega)}{\partial z^2} - \varepsilon(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} E(z, \omega) = 0.$$

Jetzt suchen wir eine Gleichung für die Fouriertransformierte der Einhüllenden

$$A(z, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}(z, t) e^{i\omega t} dt.$$

Sie hängt mit  $E(z, \omega)$  folgendermaßen zusammen:

$$\begin{aligned}E(z, \omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(z, t) e^{i\omega t} dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \left( \tilde{A}(z, t) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + c.c. \right) e^{i\omega t} dt \\ &= e^{ik_0 z} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}(z, t) e^{i(\omega - \omega_0)t} dt + e^{-ik_0 z} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}(z, t) e^{i(\omega_0 + \omega)t} dt \\ &= A(z, \omega - \omega_0) e^{ik_0 z} + A(z, \omega_0 + \omega) e^{-ik_0 z} \\ &\simeq A(z, \omega - \omega_0) e^{ik_0 z}.\end{aligned}$$

Da das Frequenzspektrum des Pulses,  $A(z, \omega_0 + \omega)$ , zumindest bei nicht zu kurzen Pulsdauern um die Mittenfrequenz  $\omega_0$  konzentriert ist, fällt der hintere Term weg, der die Beiträge des Spektrums in der Nähe der doppelten Mittenfrequenz beschreibt:  $A(z, \omega_0 + \omega) \simeq 0$ . Den Ausdruck setzen wir in die DGL für  $E(z, \omega)$  ein und vernachlässigen den schnell veränderlichen Term  $\frac{\partial^2 A(z, \omega)}{\partial z^2}$ .

$$2ik_0 \frac{\partial A(z, \omega - \omega_0)}{\partial z} + (k^2(\omega) - k_0^2) A(z, \omega - \omega_0) = 0.$$

mit der Abkürzung

$$k(\omega) := \sqrt{\varepsilon(\omega)} \frac{\omega}{c}.$$

Da  $k(\omega) \simeq k_0$  kann man nähern

$$(k^2 - k_0^2) = (k + k_0)(k - k_0) \simeq 2k_0(k - k_0).$$

Als nächstes kommt die Dispersionsrelation

$$k(\omega) = k_0 + \Delta k_{nl} + \alpha \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\beta \cdot (\omega - \omega_0)^2$$

von oben ins Spiel, zu der hier noch der nichtlineare Teil

$$\Delta k_{nl} = \frac{\omega_0}{c} n_2 I$$

hinzukommt. Die Intensität im Medium enthält den linearen Brechungsindex bei der Mittenfrequenz:

$$I = \frac{n_{lin}(\omega_0) c}{2\pi} \left| \tilde{A}(z, t) \right|^2.$$

Alles eingesetzt in die Wellengleichung für die Einhüllende liefert

$$\frac{\partial A}{\partial z} + i\Delta k_{nl} A - i\alpha(\omega - \omega_0) A - \frac{1}{2}i\beta(\omega - \omega_0)^2 A = 0.$$

Nun wird die Gleichung zurück in die Zeit transformiert, also mit  $e^{-i(\omega - \omega_0)t}$  multipliziert und über  $d(\omega - \omega_0)$  integriert. Das Ergebnis lautet:

$$\frac{\partial \tilde{A}}{\partial z} - i\Delta k_{nl} \tilde{A} + \alpha \frac{\partial \tilde{A}}{\partial t} + \frac{1}{2}i\beta \frac{\partial^2 \tilde{A}}{\partial t^2} = 0.$$

Eine weitere Vereinfachung erhält man durch Übergang zu Koordinate

$$\tau := t - \frac{z}{v_g}.$$

für die Zeit. Schlussendlich erhält man

$$\frac{\partial \tilde{A}}{\partial z} + \frac{1}{2}i\beta \frac{\partial^2 \tilde{A}}{\partial \tau^2} = i \frac{n_0 n_2 \omega_0}{2\pi} \left| \tilde{A} \right|^2 \tilde{A}$$

- Solitonenlösung

Die Solitonlösung lautet

$$\tilde{A}(z, \tau) = A_0 \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) e^{i\kappa z}$$

mit

$$\kappa = -\frac{\beta}{2\tau_0^2}$$

und

$$|A_0|^2 = -\frac{\beta}{n_0 n_2 \omega_0 \tau_0^2}.$$

und dem Secans Hyperbolicus

$$\operatorname{sech}(x) := \frac{2}{e^x + e^{-x}}.$$

Die Pulslänge ist  $\tau_0$ . Die Amplitude ist gerade so gewählt, dass sich der zweite und der dritte Term kompensieren.

- Beweis

Wir überprüfen diesen Zusammenhang, indem wir die Lösung in die Differentialgleichung einsetzen. Dazu machen wir uns zunächst ein paar Zusammenhänge zwischen den hyperbolischen Funktionen klar. Die  $\operatorname{sech}$ -Funktion ist definiert als

$$\operatorname{sech}(x) := \frac{2}{e^x + e^{-x}}.$$

Von Nutzen ist auch die Definition von

$$\operatorname{cosh}(x) := \frac{e^x + e^{-x}}{2} = \frac{1}{\operatorname{sech}(x)}.$$

und

$$\operatorname{sinh}(x) := \frac{e^x - e^{-x}}{2}.$$

Ähnlich wie bei den trigonometrischen Funktionen gelten folgende Zusammenhänge:

$$\frac{d}{dx} \operatorname{cosh}(x) = \operatorname{sinh}(x)$$

und

$$\frac{d}{dx} \operatorname{sinh}(x) = \operatorname{cosh}(x).$$

Anders als bei den trigonometrischen Funktionen ist die Differenz der Quadrate 1:

$$\operatorname{cosh}^2(x) - \operatorname{sinh}^2(x) = 1$$

Wir benötigen die Ableitung:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dx} \operatorname{sech}(x) &= \frac{d}{dx} \frac{1}{\operatorname{cosh}(x)} \\ &= -\frac{\operatorname{sinh}(x)}{\operatorname{cosh}^2(x)} \end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned}
\frac{d^2}{dx^2} \operatorname{sech}(x) &= -\frac{d \sinh(x)}{dx \cosh^2(x)} \\
&= -\frac{\cosh(x)}{\cosh^2(x)} + 2 \frac{\sinh(x)}{\cosh^3(x)} \sinh(x) \\
&= -\frac{1}{\cosh(x)} + 2 \frac{\sinh^2(x)}{\cosh^3(x)} \\
&= -\frac{1}{\cosh(x)} \left( 1 - 2 \frac{\sinh^2(x)}{\cosh^2(x)} \right) \\
&= -\operatorname{sech}(x) (1 - 2 \tanh^2(x)) \\
&= -\operatorname{sech}(x) (1 - 2(1 - \operatorname{sech}^2(x))) \\
&= \operatorname{sech}(x) (1 - 2\operatorname{sech}^2(x))
\end{aligned}$$

Mit diesem Ergebnis bilden wir die zweite Ableitung von

$$\begin{aligned}
\frac{d^2}{d\tau^2} A(z, t) &= \frac{d^2}{d\tau^2} A_0 \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) e^{i\kappa z} \\
&= \frac{1}{\tau_0^2} \cdot A_0 \cdot e^{i\kappa z} \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \left( 1 - 2\operatorname{sech}^2 \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \right)
\end{aligned}$$

und setzen sie zusammen mit

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dz} A(z, t) &= \frac{d}{dz} A_0 \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) e^{i\kappa z} \\
&= A_0 \cdot i\kappa \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) e^{i\kappa z}
\end{aligned}$$

in die Dgl. ein:

$$\begin{aligned}
&A_0 \cdot i\kappa \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) e^{i\kappa z} + \frac{1}{2} i\beta \cdot \frac{1}{\tau_0^2} \cdot A_0 \cdot e^{i\kappa z} \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \left( 1 - 2\operatorname{sech}^2 \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \right) \\
&= i \frac{n_0 n_2 \omega_0}{2\pi} \left| A_0 \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \right|^2 \cdot A_0 \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) e^{i\kappa z}
\end{aligned}$$

oder

$$\kappa + \frac{1}{2} \frac{\beta}{\tau_0^2} \left( 1 - 2\operatorname{sech}^2 \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \right) = \frac{n_0 n_2 \omega_0}{2\pi} \left| A_0 \cdot \operatorname{sech} \left( \frac{\tau}{\tau_0} \right) \right|^2.$$

Ein Lösung erhält man, wenn

$$\begin{aligned}
\kappa + \frac{1}{2} \frac{\beta}{\tau_0^2} &= 0 \\
\kappa &= -\frac{1}{2} \frac{\beta}{\tau_0^2}
\end{aligned}$$

und

$$-\frac{\beta}{\tau_0^2} = \frac{n_0 n_2 \omega_0}{2\pi} |A_0|^2$$

$$|A_0|^2 = -\frac{2\pi\beta}{n_0 n_2 \omega_0 \tau_0^2},$$

was zu zeigen war. Ein Puls mit dieser Amplitude läuft als Soliton durch das Medium. Da die rechte Seite positiv sein muss benötigt man für Solitonen entgegengesetzte Vorzeichen von  $n_2$  und  $\beta$ . Da  $n_2$  typischerweise positiv ist muss die Gruppengeschwindigkeitsdispersion  $\beta$  negativ sein, d.h. die roten Pulse sind langsamer als die blauen.

## 4.8 Nichtlineare Optik mit Atomen

- Resonante nichtlineare Effekte

Einige Effekte sind bereits bekannt, z.B. Sättigungsspektroskopie. Sie basiert auf der Sättigung der Absorption

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I}{I_{sat}}}$$

Der Absorptionskoeffizient entspricht dem Imaginärteil der Suszeptibilität. Eine Entwicklung von  $\chi$  in Potenzen des Feldes ist hier aber nicht sinnvoll, denn die Reihe

$$\alpha = \alpha_0 \left( 1 - \frac{I}{I_{sat}} + \left( \frac{I}{I_{sat}} \right)^2 - \left( \frac{I}{I_{sat}} \right)^3 + \dots \right)$$

konvergiert nicht. Es gibt also nichtlineare Phänomene, die jenseits des Reihenansatzes

$$P = \sum_n \chi^{(n)} E^n$$

liegen. Dies sind hauptsächlich die resonanten Phänomene wie z.B. Dunkel-Resonanzen, Polaritonen, Rabi-Oszillation, optisches Pumpen, Laser... Die Themen der modernen Quantenoptik sind meist in diesem Sinne nichtlinear.

- Polarisation in atomaren Gasen

Umgekehrt kann man  $\chi^{(1)}$  und  $\chi^{(3)}$ -Effekte auch mit atomaren Gasen realisieren. Um die entsprechenden Ausdrücke für  $\chi^{(1)}$  und  $\chi^{(3)}$  zu bestimmen entwickelt man die Polarisation eines atomaren Gases. Für die Polarisation eines Gases aus Zweiniveaumatomen mit natürlichem Zerfall ohne Stöße gilt:

$$P = Ne \langle z \rangle \cdot (\rho_{12} e^{i\omega t} + c.c.)$$

wobei das Dichtematrixelement gegeben ist durch

$$\rho_{12} = \frac{\frac{1}{2}\Omega (\delta - i\frac{\gamma}{2})}{\delta^2 + (\frac{\gamma}{2})^2 + \frac{1}{2}|\Omega|^2},$$

mit der Verstimmung

$$\delta = \omega_0 - \omega,$$

der Rabi-Frequenz

$$\Omega = \frac{e}{\hbar} \langle z \rangle |E|$$

und der Zerfallsrate  $\gamma = 1/\tau$ . Die Klammer  $\langle \rangle$  bezeichnet den quantenmechanischen Erwartungswert. Mit unseren üblichen Ansätzen für die Polarisation und das Feld

$$P(t) = P(\omega)e^{-i\omega t} + c.c.$$

und

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

erhält man zunächst

$$\Omega = 2\frac{e}{\hbar} \langle z \rangle E(\omega),$$

und dann

$$\begin{aligned} P(\omega) &= Ne \langle z \rangle \frac{\frac{1}{2}(\delta - i\frac{\gamma}{2})}{\delta^2 + (\frac{\gamma}{2})^2 + \frac{1}{2}|\frac{e}{\hbar} \langle z \rangle E(\omega)|^2} \cdot \frac{e}{\hbar} \langle z \rangle \cdot E(\omega) \\ &= \chi \cdot E(\omega) \end{aligned}$$

oder

$$\chi = \frac{N(e \langle z \rangle)^2}{\hbar} \frac{\frac{1}{2}(\delta - i\frac{\gamma}{2})}{\delta^2 + (\frac{\gamma}{2})^2 + \frac{1}{2}|\frac{e}{\hbar} \langle z \rangle E|^2}.$$

- Entwicklung für kleine Felder

Die Suszeptibilität ist feldabhängig und kann für kleine  $E$  entwickelt werden. Die Funktion hat die Form

$$\begin{aligned} \chi &= \frac{a}{b + cE^2} \\ &\simeq \frac{a}{b} - \frac{ac}{b^2} \cdot E^2 + \dots \\ &\simeq \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}E^2 \end{aligned}$$

Die lineare Suszeptibilität lautet also

$$\chi^{(1)} = \frac{N(e \langle z \rangle)^2}{\hbar} \frac{\frac{1}{2}(\delta - i\frac{\gamma}{2})}{\delta^2 + (\frac{\gamma}{2})^2}.$$

Die quadratische Suszeptibilität verschwindet, d.h. es ist keine Frequenzverdoppelung möglich.

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

Für die kubische Suszeptibilität erhält man:

$$\begin{aligned} 3\chi^{(3)}E^2 &= -\frac{ac}{b^2}E^2 = -\frac{ac}{b^2}\frac{1}{2}|\Omega|^2 = -\frac{ac}{b^2}\frac{1}{2}\frac{\gamma^2}{2}\frac{I}{I_{sat}} \\ &= -\chi^{(1)}\frac{\left(\frac{\gamma}{2}\right)^2\frac{I}{I_{sat}}}{\delta^2 + \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2} \end{aligned}$$

Hier wurde die Rabi-Frequenz durch die Sättigungsintensität ausgedrückt durch die Zusammenhänge:

$$\frac{\Omega^2}{2\gamma^2} = \frac{|E|^2}{|E_{sat}|^2} = \frac{I}{I_{sat}}$$

oder schließlich

$$\chi^{(3)} = -\frac{\chi^{(1)}}{3} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\delta}{\gamma}\right)^2} \frac{I}{I_{sat}}.$$

- intensitätsabhängiger Brechungsindex

Auch ein homogenes atomares Gas zeigt einen intensitätsabhängigen Brechungsindex.

$$\begin{aligned} n^2 &= 1 + 4\pi\chi \\ &= 1 + 4\pi\chi^{(1)} - \frac{4\pi\chi^{(1)}}{3} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\delta}{\gamma}\right)^2} \frac{I}{I_{sat}}. \end{aligned}$$

Da  $\chi^{(1)}$  im Allgemeinen komplex ist, sind auch  $n_2$  und  $n_0$  hier beide komplex. Es werden also sowohl Verluste als auch Brechungsindexeffekte beschrieben. Wir betrachten den Realteil von  $\chi^{(1)}$  und erhalten durch Vergleich mit

$$n^2 \simeq n_0^2 + 2n_0 \cdot n_2 \cdot I$$

den intensitätsabhängigen Brechungsindexkoeffizient

$$\begin{aligned} n_2 &= -\frac{\chi^{(1)}}{6n_0} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\delta}{\gamma}\right)^2} \frac{1}{I_{sat}} \\ &= -\frac{1}{24\pi} \cdot \frac{n_0^2 - 1}{n_0} \cdot \frac{1}{1 + \left(\frac{2\delta}{\gamma}\right)^2} \cdot \frac{1}{I_{sat}}. \end{aligned}$$

In diesem Fall ist  $n_2$  negativ, d.h. der Brechungsindex sinkt mit steigender Intensität, d.h. der Brechungsindex sättigt genauso wie der Absorptionskoeffizient.

# Chapter 5

## Anhang

### Anhang A: Formale Beschreibung der nichtlinearen Suszeptibilität

- Lichtfeld

Wir beschreiben das Lichtfeld durch sein elektrisches Feld. Es besteht aus einer Summe verschiedener Frequenzkomponenten

$$\vec{E}(\vec{r}, t) := \sum_n \vec{E}_n(\vec{r}, t),$$

wobei

$$\begin{aligned}\vec{E}_n &= \vec{E}_n^+ + \vec{E}_n^- \\ \vec{E}_n^+ &= \vec{E}_n \cdot e^{-i\omega_n t} \\ \vec{E}_n^- &= \vec{E}_n^* \cdot e^{i\omega_n t}.\end{aligned}$$

Damit  $\vec{E}_n$  ein reellwertiger Vektor ist muß gelten:

$$\vec{E}_n^- = \left(\vec{E}_n^+\right)^*.$$

Die Ortsabhängigkeit des Feldes steckt in  $\vec{E}_n$

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

wobei  $\vec{A}_n$  "langsam" ortsabhängig ist und komplex. Das Feld lautet damit

$$\vec{E}(r, t) = \sum_n \vec{A}_n(\vec{r}) e^{i(\vec{k}_n \vec{r} - \omega_n t)} + c.c.$$

Da  $\vec{E}_n$  die Amplitude der Komponente mit der Frequenz  $\omega_n$  ist, schreibt man etwas suggestiver

$$\vec{E}_n = \vec{E}(\omega_n) \quad \text{bzw.} \quad \vec{A}_n = \vec{A}(\omega_n)$$

Der Vorfaktor vor  $e^{-i\omega_n t}$  war  $\vec{E}_n$  und lautet jetzt  $\vec{E}(-\omega_n)$ . Der Vorfaktor vor  $e^{i\omega_n t}$  war  $\vec{E}_n^*$  und lautet jetzt  $\vec{E}(\omega_n)$ . Damit gilt  $\vec{E}(-\omega_n) = \vec{E}^*(\omega_n)$  und entsprechend  $\vec{A}(-\omega_n) = \vec{A}^*(\omega_n)$ . Damit lautet die Summe jetzt:

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

wobei  $n$  über alle Frequenzen läuft, positive wie negative. Die elektrische Polarisationswelle im Kristall wird auf die gleiche Weise in seine Frequenzkomponenten zerlegt:

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{P}(\omega_n) e^{-i\omega_n t}.$$

## $\chi^{(2)}$ -Suszeptibilität

- Suszeptibilität zweiter Ordnung

ist ein Tensor zweiter Stufe. Die Fourierkoeffizienten der Polarisationswelle lauten

$$P_i(\omega) = \sum_{jk} \sum_{nm} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega, \omega_n, \omega_m) E_j(\omega_n) \cdot E_k(\omega_m).$$

Die  $i, j, k$  sind Indizes von jeweils 1...3 und indizieren die 3 Komponenten der Vektoren. Die  $n, m$  indizieren die möglichen Frequenzkomponenten, die immer paarweise zur Polarisierung beitragen.

- Frequenzmischung

Da wir die Polarisierung  $P_i$  bei einer bestimmten Frequenz  $\omega$  suchen, müssen Indizes  $n, m$  so sein, dass gilt

$$\omega_n + \omega_m = \omega.$$

Um das zu sehen betrachten wir zwei Felder

$$\tilde{E}_j = E_j(\omega_n) e^{-i\omega_n t}$$

und

$$\tilde{E}_k = E_k(\omega_m) e^{-i\omega_m t}.$$

Sie führen offenbar zu einer Polarisation der Frequenz  $\omega_n + \omega_m$  :

$$\begin{aligned}\tilde{P}_i &= \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_n) e^{-i\omega_n t} \cdot E_k(\omega_m) e^{-i\omega_m t} \\ &= \underbrace{\chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_n) \cdot E_k(\omega_m)}_{P_i(\omega_n + \omega_m)} \cdot e^{-i(\omega_n + \omega_m)t}\end{aligned}$$

Deshalb schreibt man auch manchmal  $\chi^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2)$  oder  $\chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$ .

- **Summenfrequenz-Mischung**

Zwei Felder mit Frequenzen  $\omega_1$  und  $\omega_2$  erzeugen eine Polarisation bei der Frequenz  $\omega_3$ :

$$\begin{aligned}P_i(\omega_3) &= \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \\ &\quad \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1) E_j(\omega_2) E_k(\omega_1).\end{aligned}$$

Da die Indizierung physikalisch willkürlich ist und die Felder als C-Zahlen vertauschen, gilt

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

Dies ist ein Beispiel für eine intrinsische Symmetrie von  $\chi^{(2)}$ . Vertauscht man in der zweiten Summe die Indizes  $j$  und  $k$  und benutzt obige Symmetrie, erhält man

$$\begin{aligned}&\sum_{kj} \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_3, \omega_2, \omega_1) E_k(\omega_2) E_j(\omega_1) \\ &= \sum_{kj} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_2) E_k(\omega_2) E_j(\omega_1)\end{aligned}$$

und damit

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

Falls die Lichtpolarisation für beide Felder gleich ist (und in x-Richtung), vereinfacht sich das Ganze zu

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

Man beachte den Faktor 2.

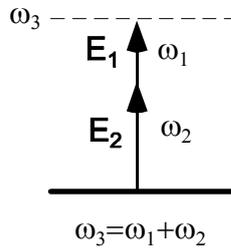
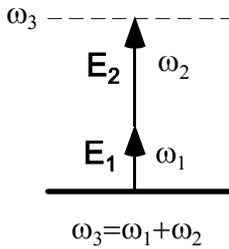
- **Frequenzverdopplung**

Was geschieht, wenn  $\omega_1 = \omega_2 = \frac{1}{2}\omega_3$ ? Da in der Summe über  $m, n$  nur ein Fall auftritt, bei dem  $\omega_1 = \frac{\omega_3}{2}$  ist und  $\omega_2 = \frac{\omega_3}{2}$ , erhält man nur einen Term mit dem Ergebnis:

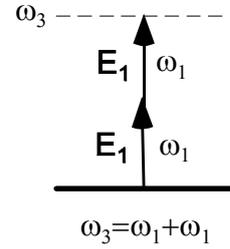
$$P_i(\omega_3) = \chi_{ixx}^{(2)}(\omega_3, \omega_1, \omega_1) E_x(\omega_1) E_x(\omega_1)$$

Da die Felder nicht unterscheidbar sind, tritt die Kombination nur einmal auf. Die Summenfrequenzbildung führt im Vergleich zur Frequenzverdopplung zu einer doppelt so großen Polarisation.

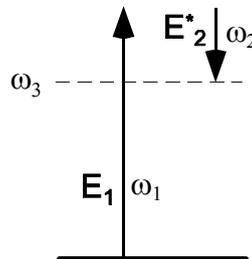
### Summenfrequenzbildung:



### Frequenzverdopplung:



In solchen Diagrammen kann man die Terme der nichtlinearen Suszeptibilität darstellen. Eine Differenzfrequenzbildung enthält dann eine komplexe Feldamplitude:



Diese Diagramme sind nicht mit den Photonendiagrammen des Einstein-Ratenmodells zu verwechseln.

- $\chi^{(3)}$ -Suszeptibilität

Das Schema kann auch auf  $\chi^{(3)}$  erweitert werden:

$$P_i(\omega_o + \omega_l + \omega_m) = \sum_{jkl} \sum_{mno} \chi_{ijk}^{(3)}(\omega_o + \omega_n + \omega_m, \omega_o, \omega_n, \omega_m) \cdot E_j(\omega_o) \cdot E_k(\omega_n) \cdot E_l(\omega_m).$$

Die Suszeptibilität 3.Ordnung beschreibt Effekte, die mit einem intensitätsabhängigen Brechungsindex verbunden sind. Sein absorptiver Anteil ist für 2 Photonen-Übergänge verantwortlich.

## Anhang B: Vereinfachte Notation im Fall von Kleinman Symmetrie

- Vernachlässigbar Absorption

Wenn alle Frequenzen weit unterhalb der Resonanzfrequenz  $\omega_0$  liegen, dann ist  $\chi^{(2)}$  unabhängig von der Lichtfrequenz  $\omega_v$ . Damit bleibt  $\chi$  unverändert wenn man die beiden letzten Indizes vertauscht,

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)},$$

denn im Ausdruck für

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \sum_{jk} \sum_{mn} \chi_{ijk}^2 E_j(\omega_n) E_k(\omega_m)$$

spielt es keine Rolle, ob man den Index  $k$  dem Feld der Frequenz  $\omega_m$  zuordnet oder dem Feld der Frequenz  $\omega_n$ . Zum Beispiel wird die Situation

Feld mit  $\omega_n$  zeigt in 1-Richtung  
 Feld mit  $\omega_m$  zeigt in 2-Richtung  
 Polarisation zeigt in 3-Richtung

durch das Element  $\chi_{312}$  beschrieben, im Vergleich zu der Situation

Feld mit  $\omega_m$  zeigt in 1-Richtung  
 Feld mit  $\omega_n$  zeigt in 2-Richtung  
 Polarisation zeigt in 3-Richtung,

die durch das Element  $\chi_{321}$  beschrieben wird. Die Felder in 1- und 2-Richtung unterscheiden sich nur durch die Frequenz, die aber, wegen der großen Verstimmung keinen Einfluß auf den Wert von  $\chi$  hat. Die Polarisation ist in beiden Fällen gleich und damit  $\chi_{312} = \chi_{321}$ . Diese Symmetrie heißt Kleinman-Symmetrie. Sie gilt für absorptionsfreie Medien, d.h. weit weg von jeder Resonanz.

- Die  $d$ -Matrix

In der Praxis verwendet man eine vereinfachte Notation. Zunächst definiert man

$$d_{ijk} := \frac{1}{2} \chi_{ijk}.$$

Desweiteren fasst man die Indexpaare  $jk$  zu einem neuen Index  $l$  gemäß folgender Tabelle zusammen:

$$\begin{array}{cc} jk & 11 & 22 & 33 & 23, 32 & 31, 13 & 12, 21 \\ l & 1 & 2 & 3 & 4 & 5 & 6 \end{array} .$$

Dadurch erhält man die  $3 \times 6$  Matrix:

$$d_{il} = \begin{pmatrix} d_{11} \dots d_{16} \\ d_{31} \dots d_{36} \end{pmatrix}$$

Im Fall der Summenfrequenzmischung schreibt sich die Polarisation als

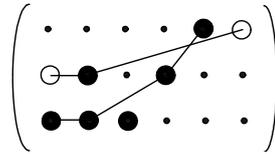
$$\begin{pmatrix} P_x(\omega_3) \\ P_y(\omega_3) \\ P_z(\omega_3) \end{pmatrix} = 4 \begin{pmatrix} d_{11}d_{12}d_{13}d_{14}d_{15}d_{16} \\ d_{21}d_{22}d_{23}d_{24}d_{25}d_{26} \\ d_{31}d_{32}d_{33}d_{34}d_{35}d_{36} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_x(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_z(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_x(\omega_2)E_y(\omega_1) \end{pmatrix}.$$

Im Fall der Frequenzverdopplung ergibt sich analog

$$\begin{pmatrix} P_x(2\omega) \\ P_y(2\omega) \\ P_z(2\omega) \end{pmatrix} = 2 \begin{pmatrix} d_{11}\dots d_{16} \\ d_{21}\dots d_{26} \\ d_{31}\dots d_{36} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{pmatrix}.$$

- Symmetriegruppen

Symmetriüberlegungen im Formalismus der Gruppentheorie erlauben es, aus der Kristallsymmetrie die nicht verschwindenden  $d_{il}$  zu berechnen. z. B.  $3m$ -Symmetrie



Die verbundene Linien haben gleiche Werte, wobei offene und gefüllte Kreise umgekehrte Vorzeichen haben. In unserm Beispiel lauten die Werte für Lithiumniobat ( $LiNbO_3$ ), als ein typischer Vertreter dieser Symmetrie:

$$\begin{aligned} d_{22} &= 7.4esu, \\ d_{31} &= 14esu, \\ d_{33} &= 98esu. \end{aligned}$$

- Der effektive nichtlineare Koeffizient  $d_{eff}$

Eine weitere Vereinfachung ergibt sich durch die Festlegung der Ausbreitungsrichtung und der Polarisationen der Lichtfelder. Ist die Geometrie der Wellen einmal festgelegt, benötigt man nur noch den Zusammenhang für die Beträge der Amplituden. Für die Summenmischung lautet dieser Zusammenhang

$$P(\omega_3) = 4d_{eff} \cdot E(\omega_1) \cdot E(\omega_2)$$

und für die Frequenzverdopplung

$$P(2\omega) = 2d_{eff} \cdot E^2(\omega).$$

Optimale Frequenzverdopplung erhält man zum Beispiel in *LiNbO* unter Verwendung von  $d_{33}$ . Man strahlt das Fundamentalfeld so ein, dass es in  $z$ -Richtung polarisiert ist

$$\vec{E}_1 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ E_z \end{pmatrix}.$$

Die erzeugte nichtlineare Polarisation  $\vec{P}$  steht dann in  $z$ -Richtung und es gilt  $d_{eff} = 2d_{33}$ . Strahlt man z.B. das Feld mit einer Polarisation ein, die unter  $45^\circ$  bezüglich der  $z$ -Achse gedreht ist, so hat es zwei gleich große Komponenten in  $x$  und in  $z$ -Richtung. Es entsteht eine Polarisationskomponente in  $x$ -Richtung aufgrund von  $d_{15} = d_{31}$ . Die Größe dieser Komponente ist

$$P_x = 2d_{15} \cdot \frac{E}{\sqrt{2}} \cdot \frac{E}{\sqrt{2}} = d_{31}E^2$$

und damit gilt für diese Polarisationsrichtung

$$d_{eff} = d_{31}.$$

Für die  $z$ -Komponente gilt

$$P_z = 2d_{33} \cdot \frac{E}{\sqrt{2}} = \sqrt{2}d_{33} \cdot E \quad .$$

und damit

$$d_{eff} = \sqrt{2}d_{33}.$$

Es können beispielsweise auch zwei Felder verschiedener Frequenz unter  $x$  und  $z$ -Richtung eingestrahlt werden. Für die Polarisationskomponente in  $x$ -Richtung erhält man dann

$$P_x = 4 \cdot d_{15} E_x(\omega_1) \cdot E_z(\omega_2).$$

Der effektive nichtlineare Koeffizient ist dann

$$d_{eff} = 4 \cdot d_{15} = 4 \cdot d_{31}.$$

Für beliebige Polarisationen der einfallenden Wellen hängt  $d_{eff}$  von den Einfallswinkeln der Strahlen ab. Für die Winkelphasenanpassung ist das eine wichtige Einschränkung.