Quantenoptik

„Der kleine Schelm“

Überarbeitete Vorlesungsmitschrift der Vorlesung
Prof. Laubereau – Quantenoptik I
im Wintersemester 1995/96
an der Technischen Universität München
von A. Brodschelm

29. Oktober 1999

Vorwort

Dieses Scriptum ist nach der Vorlesung Quantenoptik I von Prof. Laubereau (Wintersemester 1995/96) entstanden. Prof. Laubereau hat das gesamte Scriptum gelesen und einige Korrekturen angebracht. Eine Garantie auf inhaltliche Qualität kann aber dennoch nicht gegeben werden. Dieses Scriptum ersetzt weder die einschlägigen Lehrbücher, noch den Besuch der Vorlesung von Prof. Laubereau. Es soll als Überblick und Zusammenfassung des behandelten Stoffs dienen. Das Scriptum wurde von mir als Vorbereitung zu meiner eigenen Prüfung geschrieben. Der Abschnitt über die Brillouinstreuung stammt von Matthias Skalitz, der auch zu den übrigen Abschnitten wertvolle Anregungen machte.

Der Anhang wird so wie er hier erscheint in der Vorlesung nicht präsentiert, er ist aber für das Verständnis einiger der hier beschriebenen Phänomene ganz hilfreich (hoffentlich nicht nur für mich). In der quantenmechanischen Beschreibung der parametrischen Prozesse sind sicherlich noch einige Bugs enthalten. Wem hierzu was besseres einfällt, der sollte sich doch melden. Das Scriptum enthielt ursprünglich auch eine Zusammenstellung einiger Prüfungsfragen aus den Fachschafts-Prüfungsprotokollen zu Quantenoptik I und zur Laservorlesung. Die Fragen ergeben aber nicht immer Sinn, wenn sie aus dem Zusammenhang gerissen werden und wurden deshalb wieder herausgenommen. Prof. Laubereau kündigte bei seinem Überblick über den Inhalt der Vorlesung die Kapitel *Kohärente Phänomene* und *Mehrquantenprozesse* an. Aus zeitlichen Gründen konnten diese Themen aber nicht behandelt werden, wodurch sie auch in dieses Scriptum nicht Eingang fanden. Sollten diese Themengebiete doch einmal in der Vorlesung auftauchen, so wäre es wünschenswert, wenn sich jemand findet, der die entsprechenden Kapitel für dieses Scriptum in LaTeX setzt.

Wer sich beim Studium dieses Scriptums an Druckfehlern, oder an unverständlichen oder sogar (mit Sicherheit auftretenden) falschen Formulierungen reibt, der ist hiermit herzlich aufgefordert mir die entsprechenden Korrekturen mitzuteilen oder sie selbst auszuführen.

Ich darf nochmals darauf hinweisen, daß diesem Scriptum mit einer gesunden Portion Skepsis zu begegnen ist. Es reicht zur Prüfungsvorbereitung sicher nicht aus, nur aus diesem Scriptum zu lernen ;-(. Nun bleibt mir nur noch viel Spaß mit der Quantenoptik zu wünschen.[1]

Garching, 29. Oktober 1999
Andi Brodschelm
(abrodsch@physik.tu-muenchen.de)

[1] Wer Gefallen an der Quantenoptik gefunden hat, dem kann ich nur empfehlen, sich am Lehrstuhl E11 (Prof. Laubereau) nach einer Diplomarbeit zu erkundigen

Inhaltsverzeichnis

1 Theoretische Einführung **1**
- 1.1 Nichtlineare Polarisation . . . 1
- 1.2 Nichtlineare Wellengleichung . . . 2
- 1.3 Drei–Wellen–Wechselwirkung . . . 3
- 1.4 Manley–Rowe Beziehung . . . 5
- 1.5 Kleinmansche Beziehung . . . 6
- 1.6 Physikalische Bedeutung von χ^2 . . . 7

2 Summen- und Differenzfrequenzen **9**
- 2.1 Nichtlineare Wellengleichung . . . 9
- 2.2 Phasenanpassung in doppelbrechenden Kristallen . . . 11
  - 2.2.1 Phasenanpassung erster Art . . . 11
  - 2.2.2 Phasenanpassung zweiter Art . . . 12
- 2.3 Große Konversion . . . 13
- 2.4 Parametrisches Mischen . . . 17
- 2.5 Parametrische Verstärkung und -Oszillator . . . 18
  - 2.5.1 Stimulierte parametrischen Verstärkung . . . 18
  - 2.5.2 Spontane parametrische Fluoreszenz . . . 20
  - 2.5.3 Optisch Parametrischer Oszillator . . . 21

3 Selbstfokussierung und -phasenmodulation **25**
- 3.1 Nichtlinearer optischer Brechungsindex . . . 25
  - 3.1.1 Mechanismen . . . 25
- 3.2 Selbstfokussierung von Lichtbündeln . . . 27
  - 3.2.1 Theorie . . . 28
  - 3.2.2 Abschätzung der kritischen Leistung . . . 30
  - 3.2.3 Selbstfokussierung von Laserimpulsen . . . 31
  - 3.2.4 Anwendungen . . . 32
- 3.3 Selbst–Phasenmodulation . . . 33

4 Streuprozesse **37**
- 4.1 Spontane Streuprozesse . . . 37
  - 4.1.1 Rayleighstreuung . . . 37
  - 4.1.2 Rayleigh–wing Streuung . . . 38
  - 4.1.3 Brillouinstreuung . . . 39
  - 4.1.4 Ramanstreuung . . . 40
- 4.2 Stimulierte Ramanstreuung . . . 42
  - 4.2.1 Experimentelle Beobachtung . . . 42
  - 4.2.2 Theoretische Beschreibung . . . 44
  - 4.2.3 Erzeugung weiterer Frequenzkomponenten . . . 48
  - 4.2.4 CARS (Coherent Antistokes Raman Spectroscopy) . . . 49
  - 4.2.5 Transiente stimulierte Ramanstreuung . . . 50

4.2.6 Nachweis der zeitabhängigen Materialanregung 50
4.3 Stimulierte Brillouin–Streuung (SBS) 51
4.3.1 Theoretische Behandlung 51
4.3.2 Experimentelle Durchführung 53

A Quantenmechanik Parametrischer Prozesse **57**
A.1 Quantisierung des elektromagnetischen Strahlungsfeldes 57
A.2 Parametrische Prozesse 59

B Ausbreitung von Lichtbündeln **63**
B.1 Wellengleichung 63
B.2 Gaußsches Lichtbündel 64

Kapitel 1

Theoretische Einführung

1.1 Nichtlineare Polarisation

Das elektromagnetische Feld wird durch die Größen **E**, **D**, **H** und **B** beschrieben. Für diese Größen gelten die Maxwellschen Gleichungen:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \tag{1.1}$$

$$\nabla \mathbf{D} = 0 \tag{1.2}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \tag{1.3}$$

$$\nabla \mathbf{H} = 0 \tag{1.4}$$

Hierbei wird angenommen, daß $\sigma = 0$ und $\rho = 0$ gilt. Außerdem gilt im Dielektrikum $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ und $\mathbf{D} = \mathbf{D}(\mathbf{E}) = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}(\mathbf{E})$. Die dielektrische Polarisation ist hier durch

$$\mathbf{P}(\mathbf{E}) = \varepsilon_0 \left(\chi^1 \mathbf{E} + \chi^2 \mathbf{E}\mathbf{E} + \chi^3 \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \ldots \right) \tag{1.5}$$

gegeben. χ^1 ist die lineare Suszeptibilität. Die weiteren χ^n sind Suszeptibilitäten höherer Ordnung, die im nichtlinearen Fall neben der linearen Suszeptibilität auftreten. Alle in Gleichung (1.5) aufgeführten Suszeptibilitäten haben Tensorcharakter. Gleichung (1.5) kann also als

$$P_i(\mathbf{E}) = \varepsilon_0 \left({\chi^1}_i{}^j E_j + {\chi^2}_i{}^{jk} E_j E_k + {\chi^3}_i{}^{jkl} E_j E_k E_l + \ldots \right) \tag{1.6}$$

geschrieben werden.[1] Für die Suszeptibilitäten gelten die Größenordnungen $\chi^1 \approx 1$, $\chi^2 \approx 10^{-10} \frac{\mathrm{cm}}{\mathrm{V}}$ und $\chi^3 \approx 10^{-17} \frac{\mathrm{cm}^2}{\mathrm{V}^2}$. Im allgemeinen hängt die dielektrische Polarisation auch von **B** ab. Diese Abhängigkeit wird hier jedoch ebenso vernachlässigt wie das Auftreten einer magnetischen Suszeptibilität (d.h. $\mu_r = 1$). Hier ist die Beziehung, daß die dielektrische Polarisation gleich dem elektrischen Dipolmoment der Probe pro Volumeneinheit ist, ebenso wie in der linearen Theorie gültig. Es gilt also $\mathbf{P} = \sum \mathbf{p}_{ind}$. Mit der linearen Dielektrizitätskonstante ε gelten folgende Beziehungen:

$$\mathbf{P}(\mathbf{E}) = \varepsilon_0 \underbrace{(\varepsilon - 1)}_{=\chi^1} \mathbf{E} + \underbrace{\mathbf{P}_{NL}}_{\text{Terme höherer Ordnung}} \tag{1.7}$$

$$\mathbf{D}(\mathbf{E}) = \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL} \tag{1.8}$$

Mit dem nichtlinearen Term 2. Ordnung können das *Drei-Wellen-Mischen* (drei Photonen Wechselwirkung), die *Summen-* und *Differenzfrequenzerzeugung*, die Erzeugung der *2. Harmonischen* und die *parametrische Verstärkung* erklärt werden. Der

[1] Hier findet die Einsteinsche Summenkonvention Verwendung; d.h. es wird über doppelt auftretende Indizes summiert.

Term 3. Ordnung kann zur Erklärung des *Vier-Wellen-Mischens*, des *nichtlinearen Brechungsindexes*, der *stimulierten Streuprozesse* und der *Summen-* und *Differenzfrequenzerzeugung* (höherer Ordnung) herangezogen werden. Die hier angegebenen Anwendungsmöglichkeiten nichtlinearer Medien werden im Folgenden beschrieben.

1.2 Nichtlineare Wellengleichung

Zur Ableitung der nichtlinearen Wellengleichung geht man von den Maxwellschen Gleichungen aus.

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E} + \mathbf{P}_{NL}\right) = \varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t} \tag{1.9}$$

$$-\nabla \times \mathbf{E} = \frac{\partial}{\partial t}\left(\mu_0 \mathbf{H}\right) = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \tag{1.10}$$

Hierbei wird davon ausgegangen, daß das betrachtete Medium keine Dispersion zeigt.

Bildet man nun die Rotation von Gleichung (1.10) und setzt hierin Gleichung (1.9) ein, so erhält man

$$-\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial}{\partial t}\left(\varepsilon_0 \varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{P}_{NL}}{\partial t}\right)$$

Benutzt man hier die Identität $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla\left(\nabla \mathbf{E}\right) - \triangle \mathbf{E}$ und verwendet aus den Maxwellschen Gleichungen $\nabla \mathbf{E} = 0$ für das Innere eines homogenen Mediums,[2] so folgt[3]

$$\triangle \mathbf{E} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2 \varepsilon_0}\frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \tag{1.11}$$

Dies ist die nichtlineare Wellengleichung. Setzt man hier $\mathbf{P}_{NL} = 0$ ein, so erhält man genau die lineare Wellengleichung. Der Term auf der rechten Seite von Gleichung (1.11) ist der nichtlineare Quellterm. Dieser soll eine kleine Störung der linearen Wellengleichung darstellen (keine zu hohen Feldamplituden).

Zur Lösung der nichtlinearen Wellengleichung (1.11) nimmt man an, daß diese durch ebene Wellen diskreter Frequenzkomponenten gelöst wird. Die Frequenzen dieser ebenen Wellen seien ω_j und die dazugehörigen Wellenzahlen $k_j = \frac{n_{(j)}\,\omega_j}{c}$. Zusätzlich wird angenommen, daß die Propagation der Wellen parallel zur x–Achse abläuft. Es gilt also:

$$\mathbf{E}(x,t) = \frac{1}{2}\left(\sum_{j=1}^{N} \mathbf{E}_j(x,t) e^{i(k_j x - \omega_j t)} + c.c.\right) \tag{1.12}$$

Für die nichtlineare Polarisation kann ein analoger Ansatz gemacht werden:

$$\mathbf{P}(x,t) = \frac{1}{2}\left(\sum_{j=1}^{N} \mathbf{P}_j(x,t) e^{-i\omega_j t} + c.c.\right) \tag{1.13}$$

Für diese Näherungen des elektrischen Feldes und der dielektrischen Polarisation gelten die folgenden Beziehungen.

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2}\mathbf{E}(x,t) = \frac{1}{2}\left(\sum_{j=1}^{N}\left(\frac{\partial^2 \mathbf{E}_j}{\partial x^2} + 2ik_j \frac{\partial \mathbf{E}_j}{\partial x} - k_j^2 \mathbf{E}_j\right) e^{ik_j x} e^{-i\omega_j t} + c.c.\right)$$

[2] Dies ist gleichbedeutend damit, daß der dielektrische Zusammenbruch, bei dem freie Ladungen auftreten, ausgeschlossen ist.

[3] Hier wird die Beziehung $\varepsilon_0 \mu_0 = c^{-2}$ verwendet.

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathbf{E}(x,t) &= \frac{1}{2}\left(\sum_{j=1}^{N}\left(\frac{\partial^2\mathbf{E}_j}{\partial t^2} - 2i\omega_j\frac{\partial\mathbf{E}_j}{\partial t} - \omega_j^2\mathbf{E}_j\right)e^{ik_jx}e^{-i\omega_jt} + c.c.\right)\\ \frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathbf{P}_{NL}(x,t) &= \frac{1}{2}\left(\sum_{j=1}^{N}\left(\frac{\partial^2\mathbf{P}_{NLj}}{\partial t^2} - 2i\omega_j\frac{\partial\mathbf{P}_{NLj}}{\partial t} - \omega_j^2\mathbf{P}_{NLj}\right)e^{-i\omega_jt} + c.c.\right)\end{aligned}$$

Betrachtet man ein Feld, dessen Amplitude sich räumlich und zeitlich nur langsam verändert, so gilt:

$$\begin{aligned}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathbf{E}_j &\ll \omega_j\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{E}_j \ll \omega_j^2\mathbf{E}_j\\ \frac{\partial^2}{\partial x^2}\mathbf{E}_j &\ll k_j\frac{\partial}{\partial x}\mathbf{E}_j \ll k_j^2\mathbf{E}_j\\ \frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathbf{P}_{NLj} &\ll \omega_j\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{P}_{NLj} \ll \omega_j^2\mathbf{P}_{NLj}\end{aligned}$$

Man spricht hier von der „slowly varying amplitude approximation“ (SVAA).

Die Gültigkeit der SVAA für die dielektrische Polarisation sieht man wie folgt ein. Im uns interessierenden Frequenzbereich beträgt $\omega_j \approx 10^{15}s^{-1}$. Die Zeit um das Medium zu polarisieren ist $t_p \geq 10^{-12}s$. Für die Ableitung der Polarisation nach der Zeit erhält man also etwa $\frac{\Delta\mathbf{P}}{\Delta t} \approx \frac{\mathbf{P}}{t_p} \approx 10^{12}s^{-1}\mathbf{P}$. Dieser Term kann also bei der Behandlung der nichtlinearen Wellengleichung vernachlässigt werden.

Vernachlässigt man aufgrund der SVAA zusätzlich noch alle Terme, die zweite Ableitungen der Amplituden enthalten und setzt das Gefundene in Gleichung (1.11) ein, so ergibt sich:

$$\begin{aligned}&\frac{1}{2}\left(\sum_{j=1}^{N}\left(2ik_j\frac{\partial\mathbf{E}_j}{\partial x} - k_j^2\mathbf{E}_j - \frac{\varepsilon_j}{c^2}\left[-2i\omega_j\frac{\partial\mathbf{E}_j}{\partial t} - \omega_j^2\mathbf{E}_j\right]\right)e^{i(k_jx-\omega_jt)} + c.c.\right) =\\ =\quad &\frac{1}{2}\frac{1}{\varepsilon_0c^2}\left(\sum_{j=1}^{N} -\omega_j^2\mathbf{P}_{NLj}e^{-i\omega_jt} + c.c.\right)\end{aligned}$$

Kürzt man hier durch, so folgt:

$$\sum_{j=1}^{N}\left(2ik_j\frac{\partial\mathbf{E}_j}{\partial x} + 2i\frac{\varepsilon_j}{c^2}\omega_j\frac{\partial\mathbf{E}_j}{\partial t}\right)e^{ik_jx} = -\frac{1}{\varepsilon_0c^2}\sum_{j=1}^{N}\omega_j^2\mathbf{P}_{NLj} \tag{1.14}$$

Diese Gleichung muß für jede Frequenzkomponente erfüllt sein. Man kann also mit den Beziehungen $n_j = \sqrt{\varepsilon_j}$ und $k_j = \frac{n_j\omega_j}{c}$ schreiben:

$$\frac{\partial\mathbf{E}_j}{\partial x} + \frac{n_j}{c}\frac{\partial\mathbf{E}_j}{\partial t} = i\frac{\omega_j}{cn_j}\frac{1}{2\varepsilon_0}\mathbf{P}_{NLj}e^{-ik_jx} \tag{1.15}$$

Hierbei gilt $n_j = n(\omega_j)$. Der Term $\frac{n_j}{c}$ durch die Berücksichtigung der Dispersion als $\frac{1}{v_{g,j}}$ mit der Gruppendispersion $\frac{1}{v_{g,j}} = \frac{\partial k_j}{\partial\omega_j} = \left(\frac{n_j}{c} + \frac{\omega_j}{c}\frac{\partial n_j}{\partial\omega_j}\right)$ geschrieben werden.

1.3 Drei–Wellen–Wechselwirkung

Bei der drei–Wellen–Wechselwirkung (drei–Photonen–Wechselwirkung) ist vom Photonenbild aus zum einen die Erzeugung zweier Photonen aus einem Photon und zum

anderen der umgekehrte Prozeß, also die Vernichtung zweier Photonen unter Erzeugung eines dritten Photons möglich. Hierbei ist sowohl der Energie– als auch der Impulserhaltungssatz zu berücksichtigen.

$$\text{Energiebilanz:} \qquad \hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 + \Delta E \tag{1.16}$$

$$\text{Impulsbilanz:} \qquad \hbar\mathbf{k}_3 = \hbar\mathbf{k}_1 + \hbar\mathbf{k}_2 + \hbar\Delta\mathbf{k} \tag{1.17}$$

ΔE wird in der Energiebilanz aus praktischen Gründen vernachlässigt.[4] Für den Term $\hbar\Delta\mathbf{k}$ in der Impulsbilanz gilt aufgrund der Unschärferelation $\Delta\mathbf{k} \approx \frac{1}{\Delta l}$.

Hier soll aus Gründen der Einfachheit der kollineare Fall angenommen werden. Zunächst kann wie im vorangehenden Abschnitt $k_j = \frac{n_j}{c}\omega_j$ geschrieben werden. Hierdurch vereinfacht sich die Energie– und Impulsbilanz zu

$$\begin{aligned} \omega_3 &= \omega_1 + \omega_2 \\ \frac{n_3}{c}\omega_3 &= \frac{n_1}{c}\omega_1 + \frac{n_2}{c}\omega_2 + \Delta k \end{aligned}$$

Gilt $n_1 \neq n_2 \neq n_3$, tritt also Dispersion auf, so ist Δk im allgemeinen ungleich 0. Damit der Impulssatz exakt erfüllt wird, d.h. $\Delta k = 0$ gilt, muß man experimentell verschiedene Tricks, wie z.B. den Einsatz doppelbrechender Materialien, anwenden.

In diesem Abschnitt soll nur die Suszeptibilität zweiter Ordnung betrachtet werden. Die dielektrische Polarisation kann also als

$$P_i = \varepsilon_0 \sum_{j,k=2}^{3} {\chi^2}_i^{jk} E_j E_k$$

mit $i = 2,3$ (Ausbreitung der Welle in x_1–Richtung) geschrieben werden. Mit den oben beschriebenen Ansätzen erhält man:

$$P_i(x,\omega_3) = \varepsilon_0 \sum_{j,k=2}^{3} {\chi^2}_i^{jk}(-\omega_3,\omega_2,\omega_1) E_j(x,\omega_1) E_k(x,\omega_2) e^{i(k_1+k_2)x} \tag{1.18}$$

Die Gestalt des Tensors χ^2 hängt von dem betrachteten Medium ab. So kann z.B. ein Kristall mit Inversionssymmetrie keine Polarisation liefern. Inversionssymmetrie tritt bei optisch anisotropen (doppelbrechenden) Kristallen auf. Der Tensor χ^2 hat 18 unabhängige Komponenten, denn es gilt:

$$\begin{aligned} {\chi^2}_i^{jk}(-\omega_3,\omega_2,\omega_1) &= {\chi^2}_i^{jk}(\omega_2,-\omega_3,\omega_1) = {\chi^2}_i^{jk}(-\omega_3,\omega_1,\omega_2) \\ {\chi^2}_i^{jk}(-\omega_3,\omega_2,\omega_1) &= {\chi^2}^{*jk}_{\ \ i}(\omega_3,-\omega_2,-\omega_1) \end{aligned}$$

Aus diesem Grund überführt man die Suszeptibilität zweiter Ordnung in den sog. nichtlinearen optischen Tensor[5] d_{il}. Der Index i läuft von 1 bis 3, der Index l von 1 bis 6. Der nichtlineare optische Tensor hängt mit der dielektrischen Polarisation und dem elektrischen Feld wie folgt zusammen.[6]

$$\begin{pmatrix} P_1 \\ P_2 \\ P_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1^2 \\ E_2^2 \\ E_3^2 \\ 2E_2E_3 \\ 2E_3E_1 \\ 2E_1E_2 \end{pmatrix} \tag{1.19}$$

[4] Der Grund hierfür ist im Zusammenhang mit der SVAA (S. 3) zu suchen.

[5] Im mathematischen Sinn handelt es sich nicht mehr um einen Tensor.

[6] In den folgenden Formeln wird der Einfachheit halber E_i für $E(x,t,\omega_i)$ geschrieben (P_i analog).

In KH_2PO_4 (KDP) mit der der Punktgruppensymmetrie $\bar{4}2m$ ist der nichtlineare optische Tensor d_{il} z.B. durch

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix}$$

gegeben.

Sind die elektrischen Felder und die dielektrische Polarisation linear polarisiert, so kann bei vorgegebener Kristallorientierung d_{eff} eingeführt werden. Für die Komponente der dielektrischen Polarisation mit der Frequenz ω_3 ergibt sich z.B.:

$$P_3 = \varepsilon_0 d_{eff} E_1 E_2 e^{i(k_1+k_2)x} \tag{1.20}$$

Mit d_{eff} und der Beziehung $E_i(\omega_k) = E_i^*(-\omega_k)$ kann man die nichtlineare Wellengleichung (1.15) mit $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$ und $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$ vereinfacht schreiben:

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_1}{\partial x} + \frac{n_1}{c}\frac{\partial E_1}{\partial t} &= \frac{i}{2}\frac{\omega_1}{cn_1} d_{eff} E_3 E_2^* e^{-i\Delta k x} \\ \frac{\partial E_2}{\partial x} + \frac{n_2}{c}\frac{\partial E_2}{\partial t} &= \frac{i}{2}\frac{\omega_2}{cn_2} d_{eff} E_3 E_1^* e^{-i\Delta k x} \\ \frac{\partial E_3}{\partial x} + \frac{n_3}{c}\frac{\partial E_3}{\partial t} &= \frac{i}{2}\frac{\omega_3}{cn_3} d_{eff} E_1 E_2 e^{i\Delta k x} \end{aligned} \tag{1.21}$$

Soll diese Gleichung für den allgemeinen Fall (also nicht bei linearer Polarisation der Felder) angeschrieben werden, so ist d_{eff} durch χ_i^{2jk} und die Felder entsprechend durch $E_j(\omega_m)$, bzw. $E_k(\omega_l)$ zu ersetzen, wobei nun die Indizes i, j und k für die drei Raumrichtungen x, y und z stehen.[7]

Der Vorgang der vier–Wellen–Wechselwirkung bzw. die vier–Photonen–Wechselwirkung funktioniert völlig analog zu der hier besprochenen drei–Wellen–Wechselwirkung und wird deshalb nicht eigens geschildert.

1.4 Manley–Rowe Beziehung

Die Manley–Rowe Beziehung wird hier für die drei Photonen Wechselwirkung abgeleitet. Die Vorgehensweise zur Verallgemeinerung der Beziehung auf Prozesse höherer Ordnung ist dann unmittelbar einsichtig.

Kann in dem betrachteten System die Dissipation vernachlässigt werden, so gilt der Energieerhaltungssatz (1.16) für jeden einzelnen Erzeugungs- bzw. Vernichtungsprozeß streng (d.h. $\Delta E = 0$). Die Gesamtenergie des Feldes bleibt also unabhängig von der Anzahl der drei–Photonen–Prozesse erhalten. Im Photonenbild gilt also:

$$\hbar\omega_1 N_1 + \hbar\omega_2 N_2 + \hbar\omega_3 N_3 = U \tag{1.22}$$

Hier bedeutet N_i die Anzahl der Photonen mit der Frequenz ω_i. U ist die konstante Gesamtenergie des Feldes. Es kann somit geschrieben werden:[8]

$$\omega_1 \frac{\mathrm{d}N_1}{\mathrm{d}t} + \omega_2 \frac{\mathrm{d}N_2}{\mathrm{d}t} + \omega_3 \frac{\mathrm{d}N_3}{\mathrm{d}t} = 0 \tag{1.23}$$

[7] Um die Verwirrung mit den verschiedenen Bedeutungen der Indizes nicht zu groß zu machen, sollte hier auf die vereinfachte Schreibweise, die in Fußnote 6 auf Seite 4 eingeführt wurde, verzichtet werden.

[8] Man kann natürlich nicht die Ableitung einer diskreten Funktion bilden. Hier ist unter der Ableitung der systematische Verlauf der Änderung der Photonenzahlen zu verstehen.

Hier muß man berücksichtigen, daß aufgrund von Gleichung (1.16) $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ gilt. Fügt man dies in Gleichung (1.23) ein und berücksichtigt, daß $\omega_1 \neq \omega_2$ gilt, so erhält man die folgenden Gleichungen.

$$\omega_1 : \quad \frac{\mathrm{d}N_1}{\mathrm{d}t} + \frac{\mathrm{d}N_3}{\mathrm{d}t} = 0 \tag{1.24}$$

$$\omega_2 : \quad \frac{\mathrm{d}N_2}{\mathrm{d}t} + \frac{\mathrm{d}N_3}{\mathrm{d}t} = 0 \tag{1.25}$$

Definiert man die Gesamtenergie $U_i = \hbar\omega_i N_i$ der Strahlung für die jeweiligen Frequenzen, so folgt:

$$\frac{1}{\omega_1}\frac{\mathrm{d}U_1}{\mathrm{d}t} + \frac{1}{\omega_3}\frac{\mathrm{d}U_3}{\mathrm{d}t} = 0 \tag{1.26}$$

$$\frac{1}{\omega_2}\frac{\mathrm{d}U_2}{\mathrm{d}t} + \frac{1}{\omega_3}\frac{\mathrm{d}U_3}{\mathrm{d}t} = 0 \tag{1.27}$$

Diese Gleichungen bilden die Manley–Rowe Beziehung. Betrachtet man die Gleichungen (1.24) und (1.25) so erkennt man, daß die Manley–Rowe Beziehung der Erhaltung des Photonenflusses entspricht.

Die Manley–Rowe Beziehung kann auch aus der nichtlinearen Wellengleichung abgeleitet werden, wobei sich die Beziehungen zu

$$\frac{n_1}{\omega_1}|E_1|^2 + \frac{n_3}{\omega_3}|E_3|^2 = \text{const.} \tag{1.28}$$

$$\frac{n_2}{\omega_2}|E_2|^2 + \frac{n_3}{\omega_3}|E_3|^2 = \text{const.} \tag{1.29}$$

ergeben.

1.5 Kleinmansche Beziehung

In Frequenzbereichen, die weit genug oberhalb der ionischen Resonanzen liegen, wird die dielektrische Polarisation allein durch den elektronischen Anteil bestimmt. Sind die betrachteten Frequenzen unterhalb des elektronischen Absorptionsbereichs, so ist die dielektrische Polarisation eine Funktion, die nur von dem elektrischen Feld $\mathbf{E}$ abhängt. Diese Behauptung wird im Abschnitt 1.6 gerechtfertigt. In diesem Fall unterliegt der nichtlineare optische Tensor d_{il} weiteren Bedingungen. Sind die obigen Anforderungen erfüllt, so gilt

$$\oint_C \mathrm{d}(\mathbf{PE}) = 0$$

trivialer Weise für jeden geschlossenen Weg C im E_x, E_y, E_z Raum. Es folgt, daß

$$-\oint_C \mathbf{P}\mathrm{d}\mathbf{E} = \oint_C \mathbf{E}\mathrm{d}\mathbf{P}$$

gilt. Wie aus der Elektrodynamik in Dielektrika bekannt ist, ist der Term auf der rechten Seite die vom Feld an der Polarisation verrichtete Arbeit. Da wir im betrachteten Medium Verluste ausgeschlossen haben, ist diese Arbeit über einen geschlossenen Weg gleich Null. Somit erhält man

$$\oint_C \mathbf{P}\mathrm{d}\mathbf{E} = 0$$

Verwendet man hier noch den Stokesschen Satz, so führt dies auf

$$\nabla_E \times \mathbf{P} = 0$$

Dies bedeutet aber, daß $\mathbf{P}$ als Gradient einer skalaren Funktion $U(\mathbf{E})$ dargestellt werden kann:

$$\mathbf{P} = -\nabla_E U(\mathbf{E})$$

Entwickelt man $U(\mathbf{E})$ in eine Tayloreihe und beachtet man, daß in nichtpolaren Medien der erste nichtverschwindende Term der Entwicklung derjenige zweiter Ordnung ist, so erhält man:

$$U(E) = -\frac{\varepsilon_0}{2}\chi^1_{ij}E_iE_j - \varepsilon_0\frac{1}{3}\chi^2_{ijk}E_iE_jE_k + \dots \tag{1.30}$$

Es folgt also, daß

$$P_i = -\frac{\partial U(\mathbf{E})}{\partial E_i} = \varepsilon_0\chi^1_{ij}E_j + \varepsilon_0\chi^2_{ijk}E_jE_k + \dots \tag{1.31}$$

gilt. Dies bedeutet aber, daß die Komponenten des Tensors χ^2_{ijk} bezüglich einer Vertauschung der Indizes symmetrisch sind, da die Reihenfolge der elektrischen Feldkomponenten keine physikalische Bedeutung hat. Dies ist die Kleinmansche Beziehung.

1.6 Physikalische Bedeutung von χ^2

Es wird angenommen, daß die Reaktion der Elektronen auf ein von außen angelegtes Feld durch ein anharmonisches Potential beschrieben wird:

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_0^2 x + Dx^2 = \frac{eE_0}{2m}e^{i\omega t} + c.c. \tag{1.32}$$

Hierbei ist x der Abstand vom Potentialminimum, γ der Dämpfungsterm und mDx^2 die anharmonische Rückstellkraft. Da die Lösung auf eine Polarisation mit der Frequenz 2ω führen soll, wird für die stationäre Lösung der folgende Ansatz gemacht:

$$x = \frac{1}{2}q_1e^{i\omega t} + \frac{1}{2}q_2e^{i2\omega t} + c.c. \tag{1.33}$$

Setzt man diesen Ansatz in die Gleichung (1.32) ein, so erhält man:

$$\begin{aligned} &-\frac{\omega^2}{2}(q_1e^{i\omega t} + c.c.) - 2\omega^2(q_2e^{i2\omega t} + c.c.) + \frac{i\omega\gamma}{2}(q_1e^{i\omega t} - c.c.) + \\ &+i\omega\gamma(q_2e^{i2\omega t} - c.c.) + \frac{\omega_0^2}{2}(q_1e^{i\omega t} + q_2e^{i2\omega t} + c.c.) + \frac{D}{4}(q_1^2e^{i2\omega t} + q_2^2e^{i4\omega t} + \\ &+q_1q_1^* + 2q_1q_2e^{i3\omega t} + 2q_1q_2^*e^{-i\omega t} + q_2q_2^* + c.c.) = \frac{eE_0}{2m}(e^{i\omega t} + c.c.) \end{aligned} \tag{1.34}$$

Vergleicht man die Koeffizienten von $e^{i\omega t}$ auf beiden Seiten der Gleichung (1.34) und nimmt man an, daß $|Dq_2| \ll \sqrt{(\omega_0^2-\omega^2)^2 + \omega^2\gamma^2}$ gilt, so folgt

$$q_1 = \frac{eE_0}{m}\frac{1}{(\omega_0^2-\omega^2) + i\omega\gamma} \tag{1.35}$$

Wenn N die Anzahl der Elektronen pro Volumeneinheit ist, die zur dielektrischen Polarisation beitragen, so ist die lineare Suszeptibilität durch

$$\chi^1(\omega) = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0((\omega_0^2-\omega^2) + i\omega\gamma)} \tag{1.36}$$

gegeben. Dies folgt aus der Beziehung, daß die Polarisation gleich dem Dipolmoment pro Volumen ist, was sich mit dem Ansatz (1.33) als

$$P(\omega) = \frac{Ne}{2}(q_1 e^{i\omega t} + c.c.)$$

schreiben läßt.

Vergleicht man nun die Koeffizienten von $e^{i2\omega t}$, so erhält man analog zu Gleichung (1.35) einen Ausdruck für q_2:

$$q_2(-4\omega^2 + i2\omega\gamma + \omega_0^2) = -\frac{1}{2}Dq_1^2$$

Setzt man hier das in Gleichung (1.35) gefundene Resultat für q_1 ein, so erhält man schließlich für q_2:

$$q_2 = \frac{-De^2E_0^2}{2m^2((\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\gamma)^2(-4\omega^2 + i2\omega\gamma + \omega_0^2)} \tag{1.37}$$

Definiert man die nichtlineare Polarisation durch

$$P_{NL} = \frac{1}{2}Ne(q_2 e^{i2\omega t} + c.c.) = \frac{\varepsilon_0}{2}\chi^2 E_0^2 e^{i2\omega t} + c.c.$$

so folgt die Suszeptibilität zweiter Ordnung:

$$\begin{aligned} \chi^2(2\omega) &= \frac{-DNe^3}{2m^2\varepsilon_0}\frac{1}{((\omega_0^2 - \omega^2) + i\omega\gamma)^2(\omega_0^2 - (2\omega)^2 + i2\omega\gamma)} \\ &= \frac{mD\left(\chi^1(\omega)\right)^2\chi^1(2\omega)\varepsilon_0^2}{2N^2|e^3|} \end{aligned} \tag{1.38}$$

Der anharmonische Potentialterm in Gleichung (1.32) ist durch $V^{(3)} = \frac{m}{3}Dx^3$ gegeben. Die Größe des anharmonischen Terms soll hier abgeschätzt werden. Dazu wird ein eindimensionales Gitter betrachtet, in dem das Potential zweier Ladungen e und $2e$ im Abstand r_0 in eine Taylorreihe entwickelt wird:

$$V(x) = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 r_o}\left(5.83 + 24.1\frac{x^2}{r_0^2} - 13.3\frac{x^3}{r_0^3} + \ldots\right)$$

$$\Rightarrow D = \frac{-39.9e^2}{4\pi\varepsilon_0 m r_0^4}$$

Hieraus folgt mit einem Abstand $r_0 = 5$Å, einer Elektronendichte $N = 6 \cdot 10^{22}cm^{-1}$: $\chi^1 \approx 0.1$ und $\chi^2 \approx 10^{-23}$.

Kapitel 2

Optische Summen- und Differenzfrequenzerzeugung

2.1 Nichtlineare Wellengleichung bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen

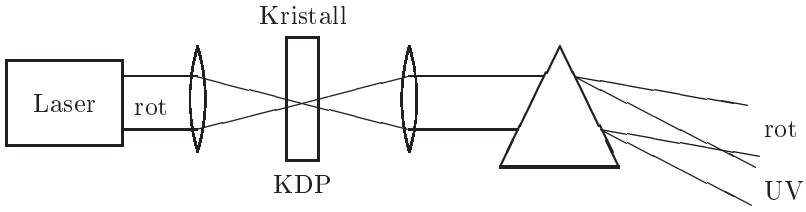


Abbildung 2.1: Anordnung zur Erzeugung der zweiten Harmonischen. Bei der ersten experimentellen Verifizierung des Prozesses wurde ein Rubinlaser ($\lambda = 694.3$ nm) verwandt. Hinter dem Prisma konnte sowohl die ursprüngliche Wellenlänge des Lasers, als auch genau die halbe Wellenlänge ($\lambda/2 = 347.15$ nm) beobachtet werden. Die Konversionsrate liegt bei diesem Experiment bei etwa 10^{-8}.

Die nichtlineare Polarisation (1.18) kann für die Erzeugung der zweiten Harmonischen mit $\omega_1 = \omega_2 = \omega_L$, $k_1 = k_2 = k_L = \frac{n_L \omega_L}{c}$, $\omega_3 = 2\omega_l$ und $k_{2H} = \frac{n_{2H} 2\omega_L}{c} \neq 2k_L$ als

$$P_{2Hi}(x,t) = \varepsilon_0 \sum_{j,k=2}^{3} \chi_i^{2jk}(-2\omega_L, \omega_L, \omega_L) E_{Lj}(x,t,\omega_1) E_{Lk}(x,t,\omega_2) e^{i2k_L x} \tag{2.1}$$

geschrieben werden. Für den Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung kann man hier die verkürzte Schreibweise

$$\chi_i^{2jk} \longrightarrow d_{iL} = \frac{1}{2}\left(\chi_i^{2jk} + \chi_i^{2kj}\right)$$

einführen. Die nichlineare Wellengleichung (1.15) bzw. (1.21) ergibt sich somit zu

$$\left(\frac{\partial}{\partial x} + \frac{n_{2H}}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right) E_{2H}(x,t) = \frac{i}{2}\frac{2\omega_L}{n_{2H}c} d_{eff} E_L^2(x,t) e^{i\Delta k x} \tag{2.2}$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial x} + \frac{n_L}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right) E_L(x,t) = \frac{i}{2}\frac{\omega_L}{n_L c} d_{eff} E_{2H} E_L^*(x,t) e^{-i\Delta k x} \tag{2.3}$$

mit $d_{eff} = d_{iL}$. Tritt nur geringe Konversion auf, so kann der Term $\frac{\partial}{\partial x} E_L(x,t)$ vernachlässigt werden.

Führt man nun die Parametertransformation[1] $t' = t - \frac{x}{v}$ und $x' = x$ mit $v = \frac{c}{n_{2H}}$ durch, so gilt für die Laseramplitude $E_L(x,t) = E_L(t - x/v) = E_L(t')$. Schreibt man für die Amplitude der zweiten Harmonischen $E_{2H}(x',t')$, so folgt:

$$\frac{\partial}{\partial x'} E_{2H}(x',t') = i\frac{\omega_L}{n_{2H}c} d_{eff} E_L^2(t') e^{i\Delta k x'} \tag{2.4}$$

Diese Gleichung kann leicht unter der Annahme, daß $E_{2H}(0) = 0$ gilt[2], integriert werden:

$$E_{2H}(x',t') = i\frac{\omega_L}{n_{2H}c} d_{eff} E_L^2(t') \frac{e^{i\Delta k x'} - 1}{i\Delta k} \tag{2.5}$$

Wird hierbei für x' die Länge l des benutzten Kristalls eingesetzt, so erhält man für die Intensität[3] der zweiten Harmonischen aus der Gleichung (2.5):

$$I_{2H} \propto |E_{2H}|^2 = \left(\frac{\omega_L}{n_{2H}c} d_{eff}\right)^2 \cdot |E_L|^4 \cdot l^2 \cdot \left(\frac{\sin(\Delta k l/2)}{\Delta k l/2}\right)^2 \tag{2.6}$$

Für Δk gilt $\Delta k = \frac{2\omega_L}{c}(n_{2H} - n_L)$. Wie man aus der Gleichung (2.6) leicht erkennen

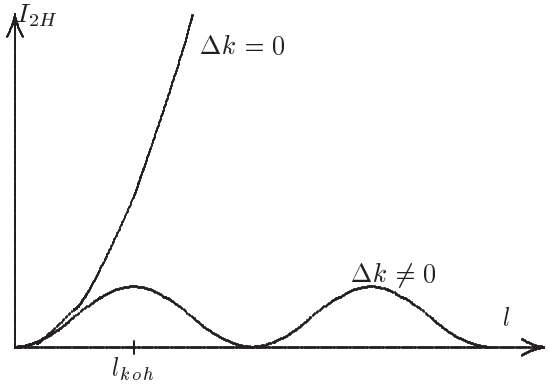


Abbildung 2.2: Intensität der zweiten Harmonischen für $\Delta k = 0$ und für $\Delta k \neq 0$

kann, steigt die Intensität der zweiten Harmonischen quadratisch mit der Kristallänge an, wenn $\Delta k = 0$ gilt. In dem Fall $\Delta k \neq 0$, oszilliert die Intensität ($\propto \sin^2$) mit der Kristallänge. Dieses Verhalten kann man sich klarmachen, indem man beachtet, daß eine an der Stelle x erzeugte zweite Harmonische im Fall $\Delta k \neq 0$ mit einer an der Stelle $x + \Delta x$ erzeugten zweiten Harmonischen im allgemeinen nicht in Phase ist. Es tritt mit zunehmendem Δx also periodisch konstruktive und destruktive Interferenz zwischen der am Ort x und der am Ort $x + \Delta x$ erzeugten zweiten Harmonischen auf. Der Maximalwert der konstruktiven Interferenz wird für $\Delta k l_{koh}/2 = \pi/2$ erreicht. Dies entspricht einer Kristallänge von $l_{koh} = \frac{\pi c}{2\omega_L |n_{2H} - n_L|} = \frac{\lambda_L}{4|n_{2H} - n_L|}$. In der Praxis ist l_{koh} ungefähr gleich $25 \cdot \lambda$, dies entspricht etwa 20μm. Man spricht von einer *tolerierbaren Phasenfehlanpassung* Δk_{tol}, wenn $\frac{\Delta k_{tol} l}{2} \lesssim 1$ gilt. D.h. $\Delta k_{tol} \lesssim \frac{2}{l}$ Durch mehrfache Frequenzverdopplung erreicht man ca. $200nm$ (je nach der verwendeten

[1] Durch diese Transformation werden diejenigen Phasenflächen betrachtet, welche sich zum Zeitpunkt $t = 0$ am Ort x befinden. Der Beobachter hält quasi die Propagation des Feldes an und wandelt so die kombinierte *Ort–Zeitabhängigkeit* der Amplitude in eine reine Ortsabhängigkeit um.

[2] Dies bedeutet, daß keine Wellenkomponente mit der Frequenz der zweiten Harmonischen eingestrahlt wird.

[3] Hier werden Intensitäten betrachtet, da man im Experiment meistens Intensitäten mißt.

Grundwelle).[4] Bei kleiner werdenden Wellenlängen hat man das Problem, daß die Transparenz des Kristalls in zunehmenden Maß abnimmt.

2.2 Phasenanpassung in doppelbrechenden Kristallen

Um eine gute Phasenanpassung zu gewährleisten, werden im allgemeinen doppelbrechende Kristalle benutzt. Daneben wäre auch der Einsatz von Materialien, die anomale Dispersion zeigen, möglich. Diese Methode ist aber ungeeignet, da hier die Absorption zu stark wird. Des weiteren benutzt man die Eigenschaften periodischer Strukturen, indem man künstliche Übergitter erzeugt. Man kann auch die Modenstruktur in Wellenleitern ausnutzen, um Phasenanpassung zu erreichen.

2.2.1 Phasenanpassung erster Art

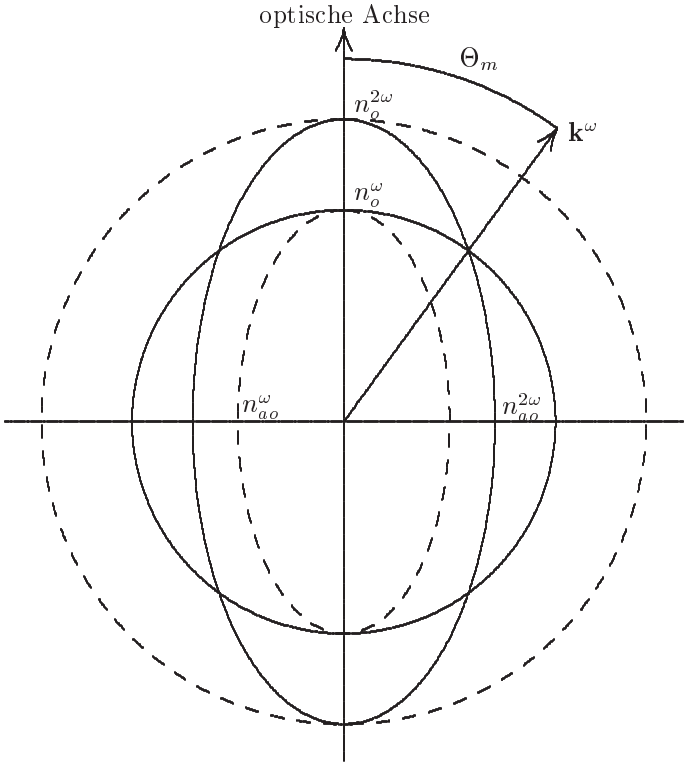


Abbildung 2.3: Der Phasenanpassungswinkel liegt dort, wo die Brechungsindexellipse eines außerordentlich polarisierten Strahls mit der Frequenz der Oberwelle (2ω) den Brechungsindexkreis des ordentlich polarisierten Laserstrahls (Frequenz $= \omega$) schneidet. Diese Abbildung gilt für einen negativ einachsigen ($n_{ao} < n_o$) Kristall.

In normal dispersiven Medien kann die Phasenanpassung ($n(2\omega) = n(\omega)$) normalerweise nicht erreicht werden, da $n(\omega)$ meist eine monoton steigende Funktion ist. Wenn man aber in einem doppelbrechenden Kristall die Anordnung so wählt, daß die zweite Harmonische z.B. außerordentlich, und die Grundwelle ordentlich polarisiert

[4] In Plasmen wurde bei extremen Intensitäten ($> 10^{17}\mathrm{W/cm^2}$) schon die 180. Harmonische nachgewiesen. (Erzeugung weicher Röntgenstrahlung)

sind, so kann $n(2\omega) = n(\omega)$ erfüllt werden. Beim Einsatz doppelbrechender Kristalle wird der Winkel zwischen der Propagationsrichtung und der optischen Achse des Kristalls so variiert, daß $\Delta k = 0$ gilt. Für den Brechungsindex n_e entlang der Ellipse gilt:

$$\frac{1}{n_e^2(\Theta)} = \frac{\cos^2(\Theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\Theta)}{n_{ao}^2} \tag{2.7}$$

Hierbei ist n_{ao} der Hauptwert des außerordentlichen Brechungsindex und n_o der ordentliche Brechungsindex. Für einen negativ einachsigen Kristall gilt: $n_{ao} < n_e < n_o$.

Man hat die Bedingung der Phasenanpassung erreicht, wenn $n_e^{2\omega}(\Theta_m) = n_o^{\omega}$ gilt. Setzt man dies in Gleichung (2.7) ein, so erhält man

$$\sin^2(\Theta_m) = \frac{(n_0^{\omega})^{-2} - \left(n_0^{2\omega}\right)^{-2}}{(n_{ao}^{2\omega})^{-2} - (n_0^{2\omega})^{-2}} \tag{2.8}$$

Man spricht von Phasenanpassung 1. Art für optisch einachsige Kristalle, wenn der Laser ordentlich und die zweite Harmonische außerordentlich polarisiert ist. Hier erreicht man also $\Delta k = 0$, wenn der Kristall so orientiert wird, daß die Propagationsrichtung der Grundwelle und die optische Achse des Kristalls Θ_m einschließen.

Es gilt z.B. für KDP:

$$d_{eff}^{I} = d_{36} \sin\Theta \sin\phi \cos\phi$$

Θ muß hier gleich Θ_m sein, damit $\Delta k = 0$ gilt. Der Azimutwinkel ϕ ist frei wählbar. Wählt man für $\phi = 45°$, so erreicht man ein Maximum der nichtlinearen Kopplung.

2.2.2 Phasenanpassung zweiter Art

Man spricht von Phasenanpassung 2. Art, wenn der Laser eine e-Komponente ($E_L^{\parallel}$) und eine o-Komponente ($E_L^{\perp}$) enthält. Hier lautet die Bedingung für Phasenanpassung

$$\Delta k = k_{2H} - (k_L^e + k_L^o) = 0 \tag{2.9}$$

dies kann auch geschrieben werden als:

$$\frac{n_L^o \omega_L}{c} + \frac{n_L^e \omega_L}{c} = \frac{2\omega_L}{c} n_{2H}^e(\Theta_m^{II})$$

Hierbei ist n_L^e gleich $n_L^e(\Theta_m^{II})$ zu setzen. Man erhält also

$$n_{2H}^e(\Theta_m^{II}) = \frac{1}{2}\left(n_L^0 + n_L^e(\Theta_m^{II})\right)$$

Benutzt man hier die Gleichung (2.7), so erhält man als Bestimmungsgleichung für Θ_m

$$\sqrt{\frac{\cos^2(\Theta_m)}{(n_o^{2\omega})^2} + \frac{\sin^2(\Theta_m)}{(n_{ao}^{2\omega})^2}} = \frac{1}{2}\left(n_o^{\omega} + \sqrt{\frac{\cos^2(\Theta_m)}{(n_o^{\omega})^2} + \frac{\sin^2(\Theta_m)}{(n_{ao}^{\omega})^2}}\right) \tag{2.10}$$

Man kann die Schärfe der Phasenanpassung abschätzen, indem man die rechte Seite der Gleichung (2.7) nach dem Phasenanpassungswinkel Θ entwickelt:

$$\frac{\mathrm{d}n_e}{\mathrm{d}\Theta} = n_e^3 \sin\Theta\cos\Theta\left(\frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_{ao}^2}\right)$$

Setzt man hier die Bedingung für die tolerierbare Phase ($\Delta k_{tol} l/2 \approx 1$) ein, so ergibt sich:

$$\Delta n_e = \frac{\mathrm{d}n_e}{\mathrm{d}\Theta}\Delta\Theta \approx \frac{c}{\omega_L l}$$

Hieraus ergibt sich ein *tolerierbarer Phasenanpassungswinkel* $\Delta\Theta$ von

$$\Delta\Theta \approx \frac{1}{\mathrm{d}n_e/\mathrm{d}\Theta}\frac{c}{\omega_L l}$$

Für KDP ergibt sich z.B. $\Delta\Theta \leq 0.24$ mrad.

2.3 Große Konversion

Liegt Phasenanpassung ($\Delta k = 0$) vor, so vereinfacht sich die Gleichung (2.4), bzw. die korresponierende Gleichung für das elektrische Feld mit der Frequenz des Lasers zu

$$\frac{\partial E_{2H}}{\partial x'} = i\frac{\omega_L}{n_{2H}c}d_{eff}E_L^2(x',t) \tag{2.11}$$

$$\frac{\partial E_L}{\partial x'} = i\frac{\omega_L}{2n_L c}d_{eff}E_{2H}E_L^* \tag{2.12}$$

Betrachtet man die Gleichung (2.5) im Limes $\Delta k \longrightarrow 0$, so kann man für ein reelles E_L das elektrische Feld der erzeugten zweiten Harmonischen als $E_{2H} = i\bar{E}_{2H}$ schreiben, wobei $\bar{E}_{2H}$ reell ist. Somit ergeben sich die Gleichungen (2.11) und (2.12) zu

$$\frac{\partial \bar{E}_{2H}}{\partial x'} = \frac{\omega_L}{n_{2H}c}d_{eff}E_L^2(x',t) \tag{2.13}$$

$$\frac{\partial E_L}{\partial x'} = -\frac{\omega_L}{2n_L c}d_{eff}\bar{E}_{2H}E_L^* \tag{2.14}$$

Wird hier die Absorption vernachlässigt, so kann man den Energieerhaltungssatz wie folgt schreiben.

$$E_l^2(x',t') = E_{L,0}^2(t') - \frac{n_{2H}}{n_L}\bar{E}_{2H}^2(x',t') \tag{2.15}$$

Wenn Phasenanpassung erreicht ist, kann hier der Faktor $\frac{n_{2H}}{n_L}$ gleich 1 gesetzt werden. Zusammen mit der Gleichung (2.13) ergibt sich also:

$$\frac{\partial \bar{E}_{2H}}{\partial x'} = \frac{\omega_L}{n_{2H}c}d_{eff}\left(E_{L,0}^2(t') - \bar{E}_{2H}^2(x',t')\right)$$

Löst man diese Differentialgleichung durch Trennung der Variablen, so erhält man die Lösung (2.16).

$$\bar{E}_{2H} = E_{L,0}(t')\tanh\left(\frac{\omega_L}{n_{2H}c}d_{eff}E_{L,0}(t')x'\right) \tag{2.16}$$

Aufgrund des Energieerhaltungssatzes (2.15) ergibt sich somit für $E_L^2(x',t')$:

$$E_L^2(x',t') = E_{L,0}^2\left(1 - \tanh^2\left(\frac{\omega_L}{n_{2H}c}d_{eff}E_{L,0}(t')x'\right)\right)$$

Es ergibt sich somit für die Intensität der zweiten Harmonischen

$$I_{2H} = I_{L,0}\tanh^2\left(\frac{\omega_L}{n_{2H}c}d_{eff}E_{L,0}(t')x'\right)$$

bzw. für den Wirkungsgrad η:

$$\eta = \tanh^2\left(\frac{\omega_L}{n_{2H}c}d_{eff}E_{L,0}(t')x'\right)$$

Man definiert eine charakteristische Wechselwirkungslänge l_0 über das Argument des tanh in Gleichung (2.16). Setzt man es gleich eins, so ergibt sich ein Wirkungsgrad von $\eta \approx 0.5$. Für die charakteristische Wechselwirkungslänge erhält man also

$$l_0 = \frac{n_{2H}\, c}{\omega_L d_{eff} E_{L,0}}$$

Für KDP erhält man mit $I_L \approx 1 \frac{GW}{cm^2}$: $l_0 = 1\text{cm}$.

Beispiele

1. Konversion eines 1.06μm – Impulses mittels KDP[5].

   Hier wurde ein Nd YAG–Laser mit einer Intensität von 8 $\frac{GW}{cm^2}$ verwendet. Die Kristalle hatten eine Stärke von 8mm. Bei der Konversion von 1.06 μm zu 530 nm wurde KDP (KH_2PO_4–Kaliumdihydrogenphosphat), bei der Konversion von 530 nm zu 265 nm wurde KD*P (KD_2PO_4–Kaliumdideuteriumphosphat) verwendet.

2. Erzeugung der zweiten Harmonischen im Laserresonator[6].

   Spiegel 2 besitzt ein Reflexionsvermögen von 99.8% für 1.06 μm, aber nur 18% für 530 nm. Ohne den Kristall läßt sich der TEM_{10} –Mode mit 1.1 Watt (1.06 μm) auskoppeln, mit dem BANANA–Kristall ($Ba_2NaNb_5O_{15}$) kann eine Leistung von 1.0 Watt (530 nm) nachgewiesen werden. Der Wirkungsgrad η liegt also etwa bei 90%. Bei gepulsten Lasern wird die Konversion im Resonator möglichst vermieden, da der Kristall natürlich eine Störung des Resonators darstellt und damit die Stabilität beeinträchtigt.

3. Verdopplung durch sekundäre Resonatoren
   Um die unter Beispiel 2 genannten Nachteile zu umgehen und trotzdem den Vorteil der hohen Intensität in einem Resonator auszunützen, hängt man „einfach“ einen zweiten Resonator an, der dann den nichtlinearen Kristall enthält.

Auch heute (1996) liegt der Konversionsgrad, also das Verhältnis $\frac{I_{2\omega}}{I_\omega}$, nicht höher als 90%. Man erreicht aber relativ problemlos Werte von 80% für Impulse mit $\frac{\text{GW}}{\text{cm}^2}$. Bei hohen Intensitäten treten Konkurrenzprozesse auf, die den Konversionsgrad immer unter 100% drücken:

- 2–Photonenabsorption der 2. Harmonischen ($\omega = 4\omega_L$)
- Prozesse höherer Ordnung (vgl. Kapitel 3)

[5] J. Reintjes und R. C. Eckard Appl. Phys. Letters 30, 90 (1977)
[6] J. E. Gensic et al. Appl. Phys. Letters 12, 306 (1968)

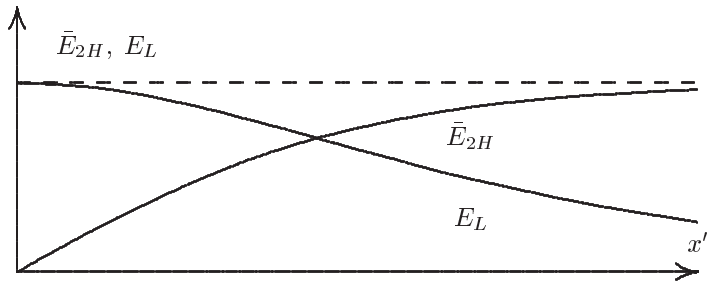


Abbildung 2.4: Verlauf der elektrischen Felder des Lasers und der zweiten Harmonischen mit der Eindringtiefe in den Kristall

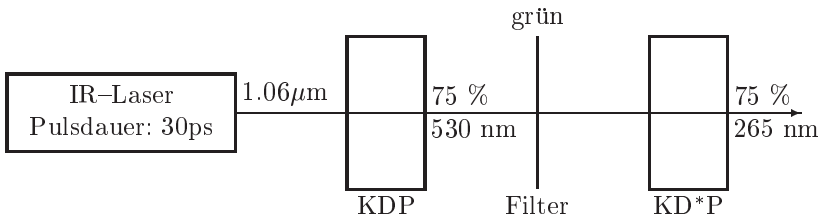


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau des Experimentes zur zweifachen Frequenzverdopplung aus Beispiel 1

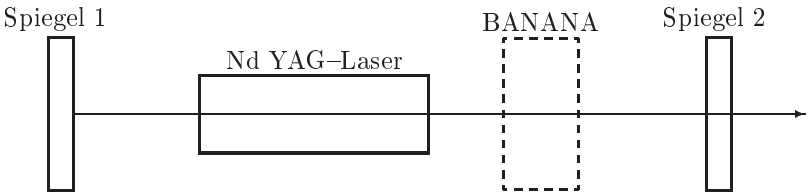


Abbildung 2.6: Schematischer Aufbau des Experimentes zur Frequenzverdopplung im Laserresonator aus Beispiel 2

2.3.0.1 Abschließende Bemerkungen

Im allgemeinen ist es schwierig quantitative Aussagen zumachen, da Folgendes gilt:

1. Der zeitliche Verlauf der verwendeten Laserimpulse ist nicht sehr gut bekannt.
2. Die radiale Verteilung der Laserintensität ist nicht homogen. So hat z.B. der TEM_{00}–Mode die Form einer Gaußkurve, der TEM_{01}–Mode hingegen hat zwei Maxima. Durch die Überlagerung mehrerer Moden kann eine sehr komplizierte Intensitätsverteilung entstehen.
3. Probleme durch die Doppelbrechung (Stichwort: „*walk off* “)
   Der ao-Strahl (also hier die 2. Harmonische) eines doppelbrechenden Kristalls propagiert nicht parallel zum Ausbreitungsvektor $\mathbf{k}$, d.h. der Poynting-Vektor $\mathbf{S}$ ist nicht parallel zu $\mathbf{k}$. Der Winkel zwischen $\mathbf{S}$ und $\mathbf{k}$ ist der sog. „*walk off angle*“. Der Wert des *walk off*–Winkel ist vom Phasenanpassungswinkel Θ abhängig:

   walk off = 0 für $\Theta = 0°,\ 90°$
   walk off = max. für $\Theta = 45°$

   Deshalb ist die genaue Messung von d_{eff} und χ^2 sehr schwierig, und die Werte sind teilweise nicht sehr gut bekannt.
4. Optimales Fokussieren für die 2. Harmonische
   - Man muß einen Kompromiß zwischen der optimalen Wechselwirkungslänge und der Intensität finden, d.h. die optimale Brennweite für die Fokussierung wählen (vgl. Abbildung 2.7)
   - Durch die beugungsbedingte endliche Breite des Strahlenbündels ergibt sich eine Richtungsverteilung von $\mathbf{k}$–Vektoren und damit eigentlich auch eine Verteilung von Phasenanpassungswinkeln Θ. Der Strahl sollte sich innerhalb der tolerierbaren Phase Δk_{tol} befinden (vgl. S. 10).

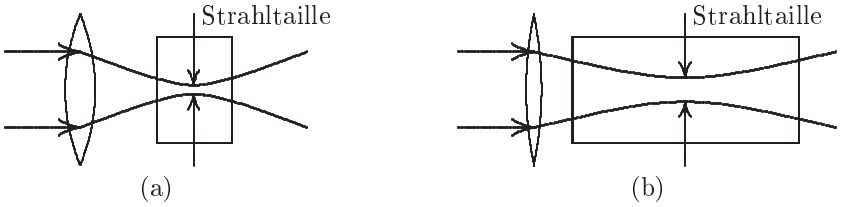


Abbildung 2.7: In Skizze (a) ist sowohl die Brennweite der Linse als auch die Wechselwirkungslänge klein, man hat aber eine hohe Intensität des Bündels im Medium. In Skizze (b) ist die Wechselwirkungslänge (durch Variation der Linsenbrennweite) vergrößert, was eine Verringerung der Intensität nach sich zieht.

5. Spektrale Bandbreite
   Nach der Fourier–Theorie muß bei ultrakurzen Impulsen (ps oder fs) eine breite spektrale Verteilung vorhanden sein[7]. Wenn man nun einen solchen Impuls frequenzverdoppelt, werden nur die Fourier–Komponenten verdoppelt, die innerhalb von Δk_{tol} liegen. Deshalb gilt die Faustregel: je kürzer die Impulse, desto kleiner muß auch die Kristallänge sein.

6. Verdopplung in Gasen
   Wie bereits erwähnt wurde erfordert die Summenfrequenzerzeugung einen Kristall, der **nicht** inversionssymmetrisch ist. Diese Bedingung ergibt sich aus der Theorie nur in der Dipolnäherung. In Gasen, die im zeitlichen Mittel sicher inversionssymmetrisch sind, kann aber auch SHG (*SecondHarmonicGeneration*) beobachtet werden, weil in der Quadrupolnäherung die Bedingung nicht mehr erforderlich ist.

2.3.0.2 Anwendungen

- Erzeugung neuer Frequenzen im sichtbaren Frequenzbereich, bzw. UV

- Impulsdauermessung (z.B. bei fs-Impulsen)
  In der zeitauflösenden Ultrakurzzeitspektroskopie (fs-Spektroskopie) kann man (heute) keine Elektronik einsetzen, da die elektronischen Bauteile zu langsam sind. Deshalb setzt man sog. *Korrelationsverfahren* ein. Als Beispiel soll hier die Impulsdauermessung mittels *Autokorrelation* erläutert werden. Bei diesem Verfahren teilt man den Laserstrahl (-puls) auf und verzögert einen Impuls um eine einstellbare Zeit $\tau = \frac{\Delta l}{c}$. Danach überlagert man die beiden Strahlen in einem KDP–Kristall (vgl. Abbildung 2.8)

  Der Kristall wird dabei so orientiert, daß die Phasenanpassung nur dann erfüllt ist, wenn sich beide Strahlen überlagern[8]. Die Intensität der zweiten Harmonischen $I_{2\omega}$ ergibt sich als Korrelationsfunktion[9] der beiden überlagerten Intensitäten $I_\omega(t)$ und $I_\omega(t+\tau)$:

$$I_{2\omega}(\tau) \propto \int I_\omega(t) \cdot I_\omega(t+\tau)\mathrm{d}t$$

[7] Ein ps–Impuls hat eine Frequenzbreite $\Delta\nu \simeq 1\mathrm{THz}$!

[8] Die Überlagerung der beiden Strahlen ist nötig, da die Phasenanpassung nicht mit parallel zueinander ausgerichteten Wellenvektoren (wie implizit in Abschnitt 2.2 angenommen wurde) eingestellt wird, sondern die unterschiedlichen Richtungen der einfallenden Laserstrahlen berücksichtigt werden. Hier gilt somit bei Phasenanpassung $\mathbf{k}_{2H} = \mathbf{k}_{L1} + \mathbf{k}_{L2}$. Es ist also gewährleistet, daß eine zweite Harmonische nur dann erzeugt werden kann, wenn Laserstrahlung aus beiden Richtungen gleichzeitig im nichtlinearen Kristall eintrifft.

[9] vgl. Anleitung zum FoPra–Versuch *Optische Oberwellen*

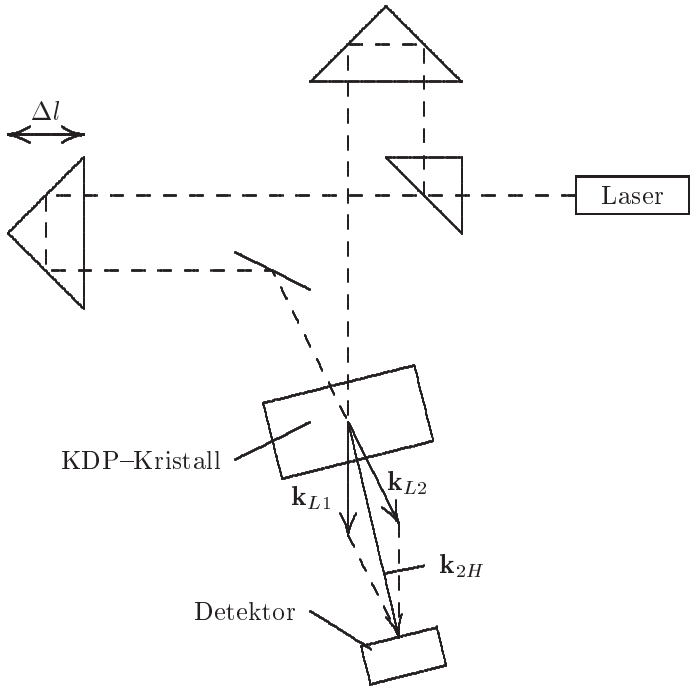


Abbildung 2.8: Schematischer Aufbau zur Impulsdauermessung mittels Autokorrelation

Die Intensität der zweiten Harmonischen hängt also von der Verzögerungszeit τ ab. Mißt man nun bei verschiedenen Werten von τ, so kann man $I_\omega(t)$ bei verschiedenen Zeiten „abtasten". Wenn man nun noch Annahmen über die Impulsform (z.B. gaußförmig) macht, so kann man aus dem Verlauf von $I_{2\omega}(\tau)$ die Impulsdauer bestimmen.

- Untersuchung von Grenzflächen
  Auch an Medien (z.B. Gläser, Flüssigkeiten) mit Inversionssymmetrie kann Summenfrequenzerzeugung zur experimentellen Untersuchung verwendet werden. Zum Beispiel ist in Silizium $\chi^2 = 0$, aber an der Oberfläche treten durch Symmetriebrechung zusätzliche Effekte auf, die ein endliches χ^2 ergeben. Deshalb kann man bei Reflexion eines Laserstrahls an einer Grenzfläche auch die 2. Harmonische beobachten.

2.4 Parametrisches Mischen

Beim parametrischen Mischen werden zwei Frequenzkomponenten (ω_1 und ω_2) in den nichtlinearen Kristall eingestrahlt, wobei eine dritte Frequenzkomponente ($\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$) erzeugt wird. Dieser Effekt wird im allgemeinen dazu benutzt, ein Signal der Frequenz ω_1 mit einem starken Laserstrahl der Frequenz ω_2 zu mischen und so auf die Frequenz ω_3 zu konvertieren. Für die Wellenvektoren der eingestrahlten Komponenten gilt $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 \pm \mathbf{k}_2 + \Delta\mathbf{k}$. Für die drei Komponenten $\mathbf{E}_1$, $\mathbf{E}_2$ und $\mathbf{E}_3$ muß die nichtlineare Wellengleichung (1.21) erfüllt sein. Unter den Annahmen, daß nur schwache Konversion auftritt, so daß $\mathbf{E}_1$ und $\mathbf{E}_2$ ohne Verluste propagieren,[10]

[10] Dies ist bei hinreichend kleinen Intensitäten erreichbar

muß nur die Gleichung für die dritte Komponente $\mathbf{E}_3$ betrachtet werden.[11]

$$\frac{\partial E_3}{\partial x} + \frac{n_3}{c}\frac{\partial E_3}{\partial t} = \frac{i}{2}\frac{\omega_3}{cn_3} d_{eff} E_1 E_2 e^{i\Delta k x}$$

Führt man hier wieder $t' = t - \frac{x}{v}$ mit $v = \frac{c}{n_3}$ und $x' = x$ ein, so kann diese Gleichung wie folgt geschrieben werden:

$$\frac{\partial E_3}{\partial x'} = \frac{i}{2}\frac{\omega_3}{cn_3} d_{eff} E_1 E_2 e^{i\Delta k x'}$$

Löst man diese Gleichung analog zur Gleichung (2.4), so erhält man[12]

$$I_3 \propto \frac{d_{eff}^2}{n^2} I_1 I_2 l^2 \tag{2.17}$$

bei Phasenanpassung. Hieraus erkennt man die Bilinearität der erzeugten Strahlungsintensität.

2.4.0.3 Anwendungen

1. Optischer Bildwandler
   Bei einem optischen Bildwandler wird IR–Strahlung mit einem Laser „hochkonvertiert".

2. Optische Gleichrichtung
   Es handelt sich hierbei um Differenzfrequenzerzeugung für $\omega_1 = \omega_2$. Bei diesem Prozeß tritt ein Gleichfeld auf, d.h. es entsteht eine Spannung an dem nichtlinearen Medium.

3. Erzeugung durchstimmbarer IR–Strahlung
   Durch Differenzfrequenzerzeugung der Strahlung zweier Farbstofflaser kann durchstimmbare IR–Strahlung erzeugt werden.

4. Schnelle optische Verschlüsse (*parametric light gate*)

Es hängt von der Phasenanpassung über Δk ab, ob Summen- oder Differenzfrequenzerzeugung eintritt. Im allgemeinen muß bei den hier beschriebenen Prozessen nur eine Komponente der eingestrahlten Strahlung kohärent sein, die zweite darf inkohärent sein.

2.5 Parametrische Verstärkung und -Oszillator

2.5.1 Stimulierte parametrischen Verstärkung

Werden in einen optisch nichtlinearen Kristall zwei optische Signale, zum einen eine starke Pumpstrahlung und zum anderen ein schwaches Signal eingestrahlt, so kann das schwache Signal durch einen Differenzfrequenzprozeß unter Erzeugung eines „*idler*"–Signals („Faulenzer") verstärkt werden. Aufgrund der Energieerhaltung ist es hierfür Voraussetzung, daß die Pumpfrequenz über der Signalfrequenz liegt. Für ω_i gilt dann:[13]

$$\omega_i = \omega_p - \omega_s$$

[11] Die Gleichung gilt für Summenfrequenzerzeugung.
[12] Diese Beziehung erhält man auch für Differenzfrequenzerzeugung.
[13] Die verwendeten Indizes stehen für *Pump*, *Signal* und *Idler*

Mit der bereits mehrfach angewandten Parametertransformation $t' = t - \frac{x}{v}$ und $x' = x$ lautet die nichtlineare Wellengleichung (1.21)

$$\frac{\partial E_s}{\partial x'} = \frac{i}{2}\frac{\omega_s}{cn_s} d_{eff} E_p E_i^* e^{i\Delta k x'} \tag{2.18}$$

$$\frac{\partial E_i}{\partial x'} = \frac{i}{2}\frac{\omega_i}{cn_i} d_{eff} E_p E_s^* e^{i\Delta k x'} \tag{2.19}$$

$$\frac{\partial E_p}{\partial x'} = \frac{i}{2}\frac{\omega_p}{cn_p} d_{eff} E_s E_i e^{-i\Delta k x'} \tag{2.20}$$

Differenziert man nun die Gleichung (2.18) und setzt die Geichungen (2.19) und (2.20) hier ein, so ergibt sich

$$\frac{\partial^2 E_s}{\partial x'^2} = -\frac{\omega_s d_{eff}^2}{4n_s c^2}\left[\frac{\omega_p}{n_p}|E_i|^2 E_s e^{-i2\Delta k x} - \frac{\omega_i}{n_i}|E_p|^2 E_s\right] + i\Delta k \frac{\partial E_s}{\partial x'} \tag{2.21}$$

Unter der Annahme, daß $|E_p| \gg |E_i|$ gilt, was im Experiment praktisch immer erfüllt ist, kann man Gleichung (2.21) als

$$\frac{\partial^2 E_s}{\partial x'^2} = \frac{\omega_s \omega_i}{4n_s n_i c^2} d_{eff}^2 |E_p|^2 E_s + i\Delta k \frac{\partial E_s}{\partial x'} \tag{2.22}$$

schreiben. Schreibt man $E_s = |E_s| e^{i(\Delta k/2)x'}$, so läßt sich die Gleichung (2.22) vereinfachen zu:

$$\frac{\partial^2 |E_s|}{\partial x'^2} - \left(\frac{\omega_s \omega_i}{4n_s n_i c^2} d_{eff}^2 |E_p|^2 - \frac{\Delta k^2}{4}\right)|E_s| = 0$$

Diese Differentialgleichung wird durch $\sinh(\gamma x')$ und $\cosh(\gamma x')$ mit

$$\gamma^2 = \left(\frac{\omega_s \omega_i}{4n_s n_i c^2} d_{eff}^2 |E_p|^2 - \frac{\Delta k^2}{4}\right) \tag{2.23}$$

gelöst. Für die Intensitäten des Signals und des Idlers gilt also:

$$I_s(x') = I_s(0)\cosh^2(\gamma x') + \frac{\omega_s n_i}{\omega_i n_s} I_i(0)\sinh^2(\gamma x') \tag{2.24}$$

$$I_i(x') = I_i(0)\cosh^2(\gamma x') + \frac{\omega_i n_s}{\omega_s n_i} I_s(0)\sinh^2(\gamma x') \tag{2.25}$$

Gilt $\gamma x' \gg 1$, so folgt $\cosh^2(\gamma x') \approx \frac{1}{2} e^{2\gamma x'} \approx \sinh^2(\gamma x')$. Das Signal und der Idler wachsen exponentiell in ihrer Intensität, es kommt also zur *stimuliert parametrischen Verstärkung*.

Die Verstärkung bricht zusammen, wenn die Bedingung $|E_p| \gg |E_i|$ aufgrund des Energiesatzes nicht mehr erfüllt ist. In diesem Fall kann der erste Term in der eckigen Klammer in Gleichung (2.21) nicht vernachlässigt werden.

Im Grenzfall kleiner Intensitäten ($\gamma x \ll 1$) kann $\cosh \gamma x \approx 1$ und $\sinh \gamma x \approx \gamma x$ geschrieben werden. Somit ergibt sich für die Gleichungen (2.24) und (2.25):

$$I_s(x') = I_s(0) + I_i \frac{\omega_s n_i}{\omega_i n_s}\gamma^2 x'^2 \sim I_P x'^2$$

$$I_i(x') = I_i(0) + I_s \frac{\omega_i n_s}{\omega_s n_i}\gamma^2 x'^2 \sim I_P x'^2$$

Zusätzlich zu den angegebenen Termen kann auch parametrische Fluoreszenz (siehe 2.5.2) auftreten.

Die Abstimmung von ω_s und ω_i kann zum einen wie im Abschnitt 2.2 durch Veränderung von Θ_m (angle–tuning) oder durch Temperaturveränderung bei $\Theta_m = 90°$ (optimales d_{eff}) erfolgen.

Die stimulierte parametrische Verstärkung wird in der Praxis durch verschiedene Anfangsbedingungen erreicht:

- *ENP–„equivalent noise input“*: Das Signal und der Idler bauen sich aus dem Quantenrauschen auf. Dies wird im Abschnitt 2.5.2 ausgeführt.
- *Parametrischer Verstärker*: Hier wird ein definiertes Eingangssignal verwendet.
- *Optisch parametrischer Oszillator* (*OPO*): Das Signal, der Idler oder beide reproduzieren sich durch eine geeignete Resonatoranordnung selbst. Die Oszillation des OPO baut sich beim Start, wie bei *ENP*, durch Quantenrauschen auf.

Beispiel Verwendet man in $LiNbO_3$ eine Pumpwellenlänge von $\lambda_p = 0.53\mu m$ und benutzt ein Signal der Wellenlänge $\lambda_s = \lambda_i = 1.06\mu m$ ($n_s = n_i = n_p$), so ergibt sich ein maximales γ von $\gamma_{max}[cm^{-1}] = 1 \cdot 10^{-4}\sqrt{I_p[W/cm^2]}$. Benutzt man eine Pumpquelle der Intensität $I_p = 10^8 \frac{W}{cm^2}$, erhält man $\gamma_{max} = 1cm^{-1}$.

2.5.2 Spontane parametrische Fluoreszenz

Bei der spontanen parametrischen Fluoreszenz beobachtet man, nach dem Durchgang eines Laserstrahls der Frequenz ω_p durch einen nichtlinearen Kristall, spontan emittierte Strahlung der Frequenzen ω_i und ω_s. Hierbei gilt der folgende Zusammenhang zwischen den Frequenzen:

$$\begin{aligned} \omega_i + \omega_s &= \omega_p \\ k_i + k_s &\approx k_p \end{aligned}$$

Klassisch ist dieser Prozeß bei Abwesenheit einer zweiten eingestrahlten Frequenz ω_i oder ω_s nicht erklärbar. Betrachtet man die Felder quantenmechanisch (siehe Anhang A), so kann man die spontane parametrische Fluoreszenz auf die Nullpunktschwankung des elektromagnetischen Feldes zurückführen.

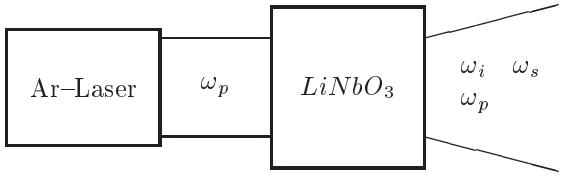


Abbildung 2.9: Experiment zum Nachweis der spontanen parametrischen Fluoreszenz

Differenziert man die Gleichung (A.26) nach der Zeit, so findet man

$$\frac{\mathrm{d}n_i}{\mathrm{d}t} \propto n_p(n_s+1) = (\underbrace{n_p n_s}_{\text{stimuliert}} + \underbrace{n_p}_{\text{spontan}})$$

Wird nur ein Pump–Feld eingestrahlt (d.h. $n_i = n_s = 0$), so gilt:

$$\begin{aligned} \dot{n}_i &\propto n_p \\ \dot{n}_s &\propto n_p \end{aligned}$$

Hierfür ist allerdings die Phasenanpassung (siehe Abschnitt 2.2 auf Seite 11 ff.) eine entscheidende Voraussetzung.

Aus der Ableitung der Formeln (A.20) und (A.21) wird klar, daß es keine spontane parametrische Summenfrequenzerzeugung geben kann. Aus diesem Grund realisiert man optische Schalter auch mit Hilfe der Summenfrequenzerzeugung (siehe Abschnitt 2.4 auf Seite 17), da hier das Rauschen, welches durch spontane parametrische Fluoreszenz entsteht, fehlt.

2.5.3 Optisch Parametrischer Oszillator

Wird der nichtlineare Kristall in einen Resonator eingebaut, der eine Rückkopplung von Signal oder Idler (oder auch beide) bewirkt, spricht man von einem *optisch parametrischen Oszillator*. In einen parametrischen Oszillator strahlt man gewöhnlich nur die Pump–Komponente ein. Das Signal und der Idler bauen sich wie bei der spontanen parametrischen Fluoreszenz aus den quantenmechanisch bedingten Nullpunktschwankungen auf. Soll der parametrische Oszillator im stationären Betrieb laufen, muß sich

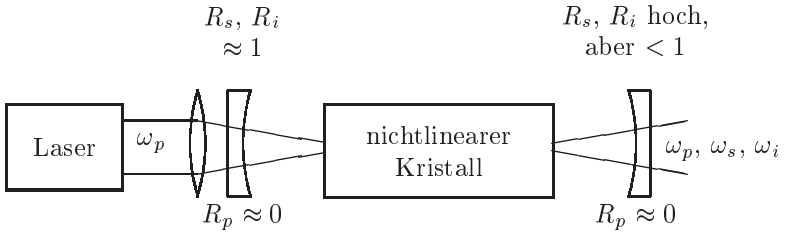


Abbildung 2.10: Schematischer Aufbau eines parametrischen Oszillators

die Feldverteilung im Resonator bei jedem Umlauf selbst reproduzieren. Werden Signal und Idler an einer Stelle z im Resonator durch den Vektor

$$\begin{pmatrix} E_s e^{-ik_s z} \\ E_i^* e^{ik_i z} \end{pmatrix}$$

beschrieben, so können die einzelnen Komponenten des Resonators durch Matrizen beschrieben werden. Die Matrix des nichtlinearen Kristalls ergibt sich aus der Lösung der Gleichungen (2.18) - (2.20):

$$\begin{pmatrix} e^{-i(k_s+\Delta k)l}\cosh(\gamma l) & -ie^{-i(k_s+\Delta k)l}\sinh(\gamma l) \\ ie^{i(k_i+\Delta k)l}\sinh(\gamma l) & e^{i(k_i+\Delta k)l}\cosh(\gamma l) \end{pmatrix}$$

Die Spiegel des Resonators werden durch Matrizen der Form $\left(\begin{smallmatrix} R_s & 0 \\ 0 & R_i \end{smallmatrix}\right)$ repräsentiert. Der Einfachheit halber nehmen wir an, daß die beiden Spiegel zum einen identisch sind und zum anderen direkt auf dem nichtlinearen Kristall sitzen (z.B. aufgedampft sind). Das Problem, einen sich selbst reproduzierenden Feldverlauf im Resonator zu finden, reduziert sich somit darauf, die Eigenwerte und Eigenvektoren der Matrix

$$\begin{aligned} M &= \begin{pmatrix} R_s & 0 \\ 0 & R_i^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-ik_s l}\cosh(\gamma l) & -ie^{-ik_s l}\sinh(\gamma l) \\ ie^{ik_i l}\sinh(\gamma l) & e^{ik_i l}\cosh(\gamma l) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} R_s & 0 \\ 0 & R_i^* \end{pmatrix} = \\ &= \begin{pmatrix} R_s^2 e^{-ik_s l}\cosh(\gamma l) & -iR_s R_i^* e^{-ik_s l}\sinh(\gamma l) \\ iR_s R_i^* e^{ik_i l}\sinh(\gamma l) & R_i^{*2} e^{ik_i l}\cosh(\gamma l) \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{2.26}$$

zu finden. Hier wurde Phasenanpassung ($\Delta k = 0$) angenommen.

Löst man nun für M die Eigenwertgleichung, so erhält man die Oszillationsbedingung für den parametrischen Oszillator:

$$(R_s^2\cosh(\gamma l)e^{-2ik_s l} - 1)(R_i^{*2}\cosh(\gamma l)e^{2ik_i l} - 1) = R_s^2 R_i^{*2}\sinh^2(\gamma l)e^{2i(k_i - k_s)l} \tag{2.27}$$

Aus der Gleichung (2.27) kann man erkennen, daß der minimale Schwellwert γ_t genau dann erreicht wird, wenn die beiden Faktoren auf der linken Seite reell und positiv

sind. Dies wird erreicht, wenn die folgenden Bedingungen erfüllt sind:

$$-\Phi_s + 2k_s l = 2m\pi \quad (2.28)$$
$$-\Phi_i + 2k_i l = 2n\pi \quad (2.29)$$

Hierbei sollen m und n natürliche Zahlen sein und es soll

$$R_{s,i}^2 = r_{s,i} e^{2i\Phi_{s,i}} \quad (2.30)$$

mit $r_{s,i} \in \mathcal{R}$ gelten. Die Gleichungen (2.28) und (2.29) sind äquivalent zu der Bedingung, daß sowohl das Signal, als auch der Idler, longitudinale Moden des Resonators sein müssen.

Je nach dem, ob die sich Rückkopplung nur auf das Signal oder den Idler oder auf das Signal und den Idler bezieht, unterscheidet man zwischen einfach (z.B. $R_i \simeq 1$; $R_s = 0$) und zweifach ($R_i \simeq R_s \simeq 1$) resonanten Oszillatoren.

2.5.3.1 Einfach resonanter Oszillator

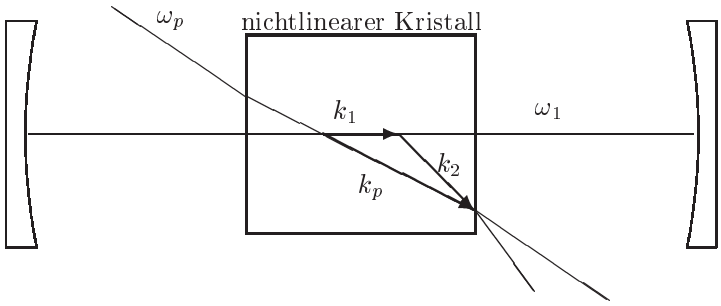


Abbildung 2.11: Hier ist der schematische Aufbau eines einfach resonanten parametrischen Oszillators mit nichtkollinearer Wellenvektor–Geometrie gezeigt. Die Indizes 1 und 2 beziehen sich auf das Signal, bzw. auf den Idler, je nach dem, welche Komponente resonant in den Oszillator eingekoppelt wird.

Wie aus der in Abbildung 2.11 dargestellten Anordnung eines einfach resonanten Oszillators ersichtlich wird, kann in der Gleichung (2.27) $R_2 = 0$ gesetzt werden. Somit ergibt sich hier die Schwellwertbedingung für Selbsterregung zu

$$R_1^2 \cosh(\gamma_t l) e^{-2ik_1 l} = 1 \quad (2.31)$$

Die Gleichung läßt sich in eine Phasenbedingung (2.32) und eine Amplitudenbedingung (2.33) zerlegen:

$$\Phi_1 - k_1 l = m\pi \quad (2.32)$$
$$r_1 \cosh(\gamma_t l) = 1 \quad (2.33)$$

Gilt $r_1 \approx 1$, so läßt sich die Amplitudenbedingung (2.33) als

$$\gamma_t l = \sqrt{2}\sqrt{1 - r_1} \quad (2.34)$$

schreiben.

Zum Einsetzen der parametrischen Oszillation muß $\gamma_t l$ größer sein als in Gl. (2.34) angegeben, d.h. es werden höhere Pumpintensitäten benötigt. (siehe Gl. (2.26))

2.5.3.2 Zweifach resonanter Oszillator

Beim zweifach resonanten parametrischen Oszillator ist der Resonator sowohl auf das Signal als auch auf den Idler abgestimmt. Es müssen also die Phasenbeziehungen (2.28) und (2.29) erfüllt sein. Setzt man dies in die Gleichung (2.27) ein, so erhält man

$$(r_s + r_i)\cosh(\gamma_t l) - r_s r_i = 1 \tag{2.35}$$

Für r_s, $r_i \approx 1$ gilt

$$\gamma_t l = \sqrt{(1 - r_s)(1 - r_i)} \tag{2.36}$$

Benutzt man hier die Definition von γ (Gleichung (2.23)) und drückt die Amplitude des Pumpfeldes duch die Intensität aus, so ergibt sich als Schwellwertintensität der Selbsterregung

$$I_{p,t} = \frac{1}{2}\sqrt{\frac{\varepsilon_0 n_p^2}{\mu_0}}|E_p|^2 = 2\left(\frac{1}{\mu_0}\right)^{3/2}\left(\frac{1}{\varepsilon_0}\right)^{1/2}\frac{n_s n_i n_p (1 - r_s)(1 - r_i)}{\omega_s \omega_i l^2 d_{eff}^2}$$

Kapitel 3

Selbstfokussierung und Selbstphasenmodulation

3.1 Nichtlinearer optischer Brechungsindex

Hier sollen optische Effekte betrachtet werden, die mit einer nichtlinearen Veränderung des Feldes bei der Frequenz der eingestrahlten Welle verbunden sind. Die Suszeptibilität zweiter Ordnung kann hierzu keinen Beitrag liefern, da sie entweder in einer Frequenzverdopplung (Erzeugung der zweiten Harmonischen) oder in eine Aufspaltung der eingestrahlten Frequenz (spontane parametrische Fluoreszenz, bzw. optisch parametrischer Oszillator) eingeht. Erst bei der Suszeptibilität dritter Ordnung kann die dielektrische Polarisation mit der Frequenz des eingestrahlten Feldes ($\omega_L = \omega_L - \omega_L + \omega_L$) oszillieren. D.h.

$$P_{NL}(\omega_L) = \chi^3 E(\omega_L) E^*(\omega_L) E(\omega_L)$$

Somit gilt für die Dielektrizitätskonstante ε und den nichtlinearen optischen Brechungsindex n_2 mit $n = \sqrt{\varepsilon}$:

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 \underbrace{\langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle}_{\propto I_L} \tag{3.1}$$

$$n = n_1 + n_2 \langle \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \rangle \tag{3.2}$$

Hierbei gilt $n_2 \simeq \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_2}{n_1}$.

3.1.1 Mechanismen

3.1.1.1 Thermisch

Es ist möglich, die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindexes durch eine temperaturabhängige Änderung zu beschreiben:

$$n = n_1 + T \frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}T} \tag{3.3}$$

Um also Selbstfokussierung zu erhalten, muß $\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}T} < 0$ gelten[1]. Anderenfalls ($\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}T} > 0$) kommt es zur Defokussierung. Bei der Selbstfokussierung wird das Medium durch den einfallenden Laserstrahl erwärmt. Die Erwärmung des Mediums durch einen cw–Laser kann durch folgende Gleichung beschrieben werden:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\alpha c n_0 A_0^2(r,z)}{8\pi\kappa} = 0 \tag{3.4}$$

[1] siehe 3.2

wobei α der Absorptionskoeffizient, κ die thermische Leitfähigkeit und A_0 die Amplitude des elektrischen Feldes sind. Außerdem wurde in Gleichung (3.4) die thermische Diffusion vernachlässigt ($\frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \simeq 0$). Nach Gleichung (3.4) ist die, für die Größe der Intensitätsabhängigkeit, entscheidende Materialkonstante der Absorptionskoeffizient α. Durch die Abschwächung des Laserstrahls wird die Wechselwirkungslänge, also die Länge, auf der der nichtlineare Brechungsindex wirkt, beeinflußt:

- Stark absorbierendes Medium (*dünne thermische Linse*): NL-Effekt nur in einer dünnen Schicht der Dicke $\frac{1}{\alpha}$. Danach ist das Medium praktisch wieder linear.
- Schwach absorbierendes Medium (*dicke thermische Linse*): im ganzen Medium tritt Selbstfokussierung auf.

Die Änderung des Brechungsindexes mit der Temperatur besteht aus zwei Teilen:

$$\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}T} = \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_\rho + \left(\frac{\partial n}{\partial \rho}\right)_T \frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}T} \tag{3.5}$$

Dabei ist ρ die Dichte des Materials. Für die einzelnen Summanden gilt:

$\left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_\rho$: die Molekülpolarisation ändert sich aufgrund der Verschiebung der Absorptionsbänder mit der Temperatur. Meist gilt $\left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_\rho > 0$.

$\frac{\partial \rho}{\partial T}$: (meist < 0) Ausdehnung des Mediums mit der Temperatur

Im allgemeinen ist $\frac{dn}{dT} < 0$, jedoch kann bei sehr kurzen Lichtpulsen[2] transiente Selbstfokussierung auftreten, auch wenn im Gleichgewicht $\frac{dn}{dT} < 0$ gilt. Die Temperaturänderung kann dann wie folgt genähert werden:

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\alpha I}{\rho c_p} \tag{3.6}$$

Dabei ist c_p die spezifische Wärmekapazität und I die Intensität des Lasers. In diesem speziellen Fall gilt dann :

$$\delta n = \frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}T} \cdot \delta T \simeq \left(\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}T}\right)_\rho \cdot \frac{I_L \alpha}{\rho c_p} \cdot t < 0 \tag{3.7}$$

3.1.1.2 Elektrostriktion

Wird eine elektromagnetische Welle auf eine Probe eingestrahlt, so wird sie von der Kraft, die das elektrische Feld auf das Probenmaterial ausübt zeitlich oszillierend verformt. Diese Verformung bewirkt eine Änderung der Dichte und somit der Dielektrizitätskonstante ε der Probe.

3.1.1.3 Optischer Kerreffekt

In Flüssigkeiten, die anisotrope Moleküle enthalten, dominiert in der Regel der Beitrag dieser Moleküle zur dielektrischen Suszeptibilität dritter Ordnung. Hier soll angenommen werden, daß die betrachteten Moleküle Rotationssymmetrie besitzen. Die molekulare Polarisierbarkeit sei $\alpha_\perp$ bzw. $\alpha_\parallel$, je nach der Orientierung der Rotationsachse zum angelegten Feld. Schließt das angelegte Feld mit der Rotationsachse den Winkel θ ein, so ergibt sich die potentielle Energie des Moleküls zu

$$U(\theta) = -\frac{1}{2}\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}$$

[2] $\tau_P \ll \tau_{Diff.}$, d.h. für Impulsdauern, die kleiner als die thermische Diffusionszeit $\tau_{Diff.} = \frac{\rho c_p a^2}{4\kappa} \gtrsim 10^{-3} s$ sind.

$$= -\frac{\varepsilon_0}{2}\left(\alpha_\parallel|\mathbf{E}|\cos(\theta)\hat{\mathbf{e}}_\parallel + \alpha_\perp|\mathbf{E}|\sin(\theta)\hat{\mathbf{e}}_\perp\right)\left(|\mathbf{E}|\cos(\theta)\hat{\mathbf{e}}_\parallel + |\mathbf{E}|\sin(\theta)\hat{\mathbf{e}}_\perp\right)$$
$$= -\frac{\varepsilon_0}{2}|\mathbf{E}|^2\left(\alpha_\parallel\cos^2(\theta) + \alpha_\perp\sin^2(\theta)\right) \tag{3.8}$$

Hierbei sind $\hat{\mathbf{e}}_\parallel$ und $\hat{\mathbf{e}}_\perp$ Einheitsvektoren parallel bzw. senkrecht zur Rotationsachse des Moleküls. Im thermischen Gleichgewicht ist die Winkelverteilung der Moleküle durch $f(\theta)$ gegeben:

$$\begin{aligned} f(\theta) &= \frac{e^{-U(\theta)/kT}}{\int_0^\pi e^{-U(\theta)/kT}2\pi\sin(\theta)\,\mathrm{d}\theta} \\ &\simeq -\frac{1}{4\pi}\frac{1+\frac{\varepsilon_0}{2}\frac{|\mathbf{E}|}{kT}\left((\alpha_\parallel-\alpha_\perp)\cos^2(\theta)+\alpha_\perp\right)}{1+\frac{\varepsilon_0}{6}\frac{|\mathbf{E}|}{kT}(\alpha_\parallel+2\alpha_\perp)} \\ &\simeq -\frac{1}{4\pi}\left(1+\frac{\varepsilon_0}{2}\frac{\langle\mathbf{E}\cdot\mathbf{E}\rangle}{kT}\frac{(\alpha_\parallel-\alpha_\perp)}{3}(3\cos^2(\theta)-1)\right) \end{aligned} \tag{3.9}$$

Hierbei wurde $\frac{\alpha\langle\mathbf{E}\cdot\mathbf{E}\rangle}{kT} \ll 1$ angenommen. Mit dieser Winkelverteilung ergibt sich die resultierende dielektrische Polarisation entlang der Richtung des angelegten Feldes zu:

$$\begin{aligned} |P| &= \varepsilon_0 N\int_0^\pi(|\mathbf{E}|\alpha_\parallel\cos^2(\theta)+|\mathbf{E}|\alpha_\perp\sin^2(\theta))f(\theta)2\pi\,\sin(\theta)\,\mathrm{d}\theta \\ &= \varepsilon_0 N\left(|\mathbf{E}|\frac{(\alpha_\parallel+2\alpha_\perp)}{3}+\frac{2\varepsilon_0}{45kT}|\mathbf{E}|\langle\mathbf{E}\cdot\mathbf{E}\rangle(\alpha_\parallel-\alpha_\perp)^2\right) \end{aligned}$$

Hieraus erkennt man durch einen Vergleich mit (3.1), daß

$$\varepsilon_1 = 1 + N\frac{(\alpha_\parallel+2\alpha_\perp)}{3} \tag{3.10}$$
$$\varepsilon_2 = \frac{2N\varepsilon_0}{45kT}(\alpha_\parallel-\alpha_\perp)^2 \tag{3.11}$$

gilt.

3.1.1.4 Elektronischer Beitrag

Durch das eingestrahlte elektromagnetische Feld werden die Elektronenhüllen der Atome der Probe deformiert. Hierbei kommt es zur Induktion eines Dipolmoments. Die Größe des induzierten Dipolmoments ist von der Stärke des eingestrahlten elektrischen Feldes abhängig. Man erhält analog zur Herleitung des optischen Kerreffektes eine nichtlineare dielektrische Suszeptibilität, die von der Intensität des eingestrahlten Feldes abhängt.

3.2 Selbstfokussierung von Lichtbündeln

Der Effekt der Selbstfokussierung bzw. der Selbstdefokussierung läßt sich physikalisch intuitiv ohne größere Schwierigkeiten verstehen. Der optische Brechungsindex ist, nach Gleichung (3.2), von der Intensität des einfallenden Lichtes abhängig:

$$n = n_0 + n_2\langle E^2\rangle = n_0 + \frac{1}{2}n_2|E|^2$$

Die Differenz zum linearen optischen Brechungsindex ist also proportional zur lokalen Intensität des Lichtes.

$$\Delta n = n_2\langle E^2\rangle \propto I(r)$$

Da das einfallende Laserbündel i.a. eine gaußförmige Intensitätsverteilung, senkrecht zur Ausbreitungsrichtung im Ortsraum (Abb. 3.1), aufweist, wirkt das nichtlineare Material als Sammel- bzw. Zerstreuungslinse, je nach dem, ob $n_2 > 0$ oder $n_2 < 0$ gilt. Wenn $n_2 > 0$ gilt, ist beim Durchlauf des Lichtbündels durch das nichtlineare

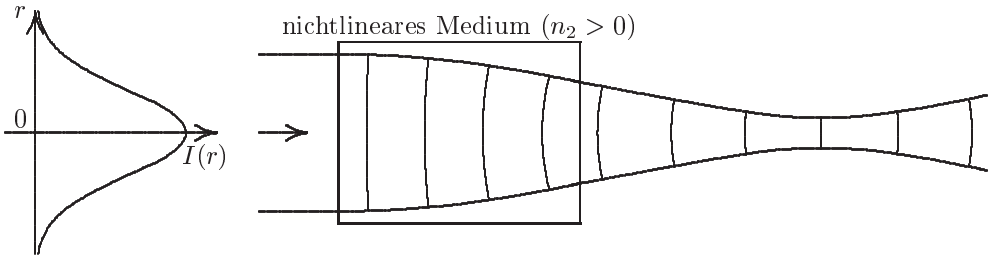


Abbildung 3.1: Selbstfokussierendes Lichtbündel: Auf der linken Bildseite ist der radial gaußförmige Intensitätsverlauf des Lichtbündels aufgezeichnet. Auf der rechten Seite ist die Krümmung der Phasenflächen zu sehen. Da die „Strahlbegrenzung" senkrecht auf den Phasenflächen steht, kommt es zu dessen Krümmung und damit zur Selbstfokussierung des Lichtbündels. Die Bündeltaille (Fokus) befindet sich außerhalb des Mediums, man spricht also von schwacher Selbtfokussierung.

Medium die Phasengeschwindigkeit der Welle im Bündelzentrum aufgrund der höheren Intensität geringer. Hierdurch kommt es zu einer Krümmung der Phasenfläche. Da der Wellenvektor $\mathbf{k}$ immer senkrecht zur Phasenfläche steht, kommt es schließlich zur Einschnürung des Lichtbündels (siehe Abb. 3.1). Für $n_2 < 0$ wird die Phasenfläche genau entgegengesetzt gekrümmt, was zu einer Defokussierung des Lichtbündels führt.

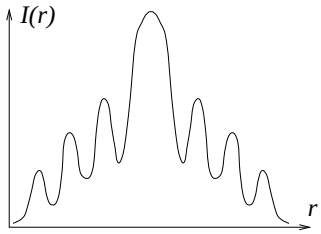


Abbildung 3.2: Lichtbündel mit mehreren Maxima

Man unterscheidet zwischen schwacher und katastrophaler Selbstfokussierung, je nach dem, ob der Fokus innerhalb oder außerhalb des Mediums liegt. Außerdem differenziert man bei der Selbstfokussierung zwischen „*large scale self focussing*" und „*small scale self focussing*", je nach dem, ob bei der Selbstfokussierung das gesamte Bündel oder nur Bündelteile beteiligt sind. Voraussetzung dafür, daß „small scale self focussing" auftreten kann, ist eine Intensitätsverteilung des Lichtbündels mit mehreren Maxima (siehe Abb. 3.2). Eine solche Intensitätsverteilung kommt z.B. durch Streuung an kleinen Teilchen (z.B. Staub), Fresnelbeugung an Blenden oder den Einsatz eines Lasers im Multimode–Betrieb zustande.

3.2.1 Theorie

Um den Effekt der Selbstfokussierung weiter zu analysieren, betrachten wir die nichtlineare Wellengleichung (1.11) ohne die Näherung ebener Wellen, so daß Ableitungen in transversaler Richtung beibehalten werden:

$$\triangle \mathbf{E} - \frac{\varepsilon}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2 \varepsilon_0}\frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}$$

Setzt man hier die nichtlineare dielektrische Polarisation dritter Ordnung ein, so erhält man:

$$\triangle \mathbf{E} - \frac{\varepsilon}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \frac{n_1 n_2}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}|\mathbf{E}|^2 \mathbf{E} = 0 \tag{3.12}$$

Propagiert das Lichtbündel in z–Richtung und ist es in x–Richtung polarisiert, so kann man die eingestrahlte elektromagnetische Welle als

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}\left(E(\mathbf{r})e^{i(\omega t - kz)} + c.c.\right)\hat{\mathbf{e}}_x$$

schreiben. Die Wellenzahl k kann hier als $k = \frac{n\omega}{c}$ geschrieben werden. Nimmt man an, daß $E(\mathbf{r})$ sich im Vergleich mit e^{ikz} nur langsam ändert und man aufgrund dessen die zweite Ableitung der Amplitude vernachlässigt[3], so ergibt sich schließlich für Gleichung (3.12):

$$\underbrace{\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right)}_{=:\nabla_t^2} E - 2ik\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{n_2 k^2}{n_1}|E|^2 E = 0 \tag{3.13}$$

Für $n_2 = 0$ beschreibt diese Gleichung genau die Propagation eines Lichtstrahls in einem linearen, transparenten Medium. Unter der Annahme, daß das einfallende Lichtbündel eine gaußförmige Intensitätsverteilung aufweist, kann man das Feld beim Eintritt in das nichtlineare Medium wie folgt beschreiben[4]:

$$E(x,y,0) = E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{w_0^2}\left(1 + i\frac{2z_{min}}{kw_0^2}\right)^{-1}\right) = E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{w_0^2}\frac{1 - i\frac{2z_{min}}{kw_0^2}}{1 + \left(\frac{2z_{min}}{kw_0^2}\right)^2}\right) \tag{3.14}$$

Mit

$$w^2(z) = w_0^2\left(1 + \left(\frac{2(z - z_{min})}{kw_o^2}\right)^2\right)$$

kann man somit für $E(x,y,0)$ mit $d^2 := w^2(0)$ schreiben:

$$E(x,y,0) = E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{d^2}\left(1 - i\frac{2z_{min}}{kw_0^2}\right)\right) \tag{3.15}$$

Man führt hier den Fokussierungsparameter $\theta := \frac{2z_{min}}{kw_0^2}$ ein. Mit θ läßt sich die Gleichung (3.14) als

$$E(x,y,0) = E_0 e^{-\left(\frac{r}{d}\right)^2(1 - i\theta)} \tag{3.16}$$

ausdrücken.

Allgemeine Lösungen der Gleichung (3.13) können nur numerisch gefunden werden. Man kann jedoch das Verhalten des Lichtbündels kurz nach dem Eintreten in das nichtlineare Medium durch geeignete Taylorentwicklungen untersuchen. Hierzu werden zunächst, durch wiederholtes Anwenden der Gleichung (3.13), Formeln für die erste und die zweite Ableitung der eingestrahlten Intensität gewonnen:

$$\begin{aligned}
\frac{\partial|E|^2}{\partial z} &= E\frac{\partial E^*}{\partial z} + E^*\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{i}{2k}\left(E\nabla_t^2 E^* - E^*\nabla_t^2 E\right) \\
\frac{\partial^2|E|^2}{\partial z^2} &= \frac{1}{4k^2}\Big((\nabla_t^2 E)(\nabla_t^2 E^*) - E\nabla_t^2(\nabla_t^2 E^*) \\
&\quad + \frac{n_2 k^2}{n}E\left(|E|^2\nabla_t^2 E^* - \nabla_t^2(|E|^2 E^*)\right) + c.c.\Big)
\end{aligned}$$

[3] Hieraus folgt: $\frac{\partial^2}{\partial z^2}\left(Ee^{-ikz}\right) \simeq \left(-k^2 E - 2ik\frac{\partial}{\partial z}E\right)e^{-ikz}$

[4] siehe Anhang B

Entwickelt man nun die Intensität des Lichtbündels an der z–Achse bis zum Term zweiter Ordnung, so erhält man schließlich:

$$|E(x=y=0)|^2 \simeq E_0^2 \left(1 + 4\theta\frac{z}{kd^2} + \frac{z^2}{k^2d^4}\left(-4 + 12\theta^2 + \frac{2n_2k^2d^2}{n}E_0^2\right) + \ldots\right) \tag{3.17}$$

Die Querschnittsfläche $A(z)$ des Lichtbündels ist ungefähr proportional zum Kehrwert der Intensität. Man erhält also mit der Entwicklung $(1+x)^{-1} = 1 - x + x^2 + \ldots$:

$$A(z) \simeq A_0 \left(1 - 4\theta\frac{z}{kd^2} + \frac{z^2}{k^2d^4}\left(4 + 4\theta^2 - \frac{2n_2k^2d^2}{n}E_0^2\right) + \ldots\right)$$

Nimmt man an, daß sich das Lichtbündel auf einen Punkt fokussiert hat, wenn die Querschnittsfläche A verschwindet, so erhält man für die Selbstfokusierungslänge z_f:

$$z_f = \frac{kd^2}{2}\frac{1}{\sqrt{\frac{P}{P_c} - 1} + \theta} \tag{3.18}$$

Hier ist die gesamte eingestrahlte Leistung durch

$$P = \frac{\pi\varepsilon_0 cnd^2}{4}E_0^2$$

und die kritische Leistung für Selbtfokussierung durch

$$P_c = \frac{\pi\varepsilon_0 c^3}{2n_2\omega^2} = \frac{\varepsilon_0 c\lambda^2}{n_2 8\pi} \tag{3.19}$$

gegeben. Für $\theta < 0$ divergiert das eingestahlte Lichtbündel (die Taille des gaußschen Lichtbündels wurde bereits vor dem Eindringen in das nichtlineare Medium durchlaufen). In diesem Fall kommt es bei z_f zur katastrophalen Selbstfokussierung, wenn die eingestrahlte Intensität die kritische Leistung für Selbstfokussierung P_c überschreitet. Die kritische Leistung für Selbstfokussierung ist vom Bündeldurchmesser unabhängig.

3.2.2 Abschätzung der kritischen Leistung

Die kritische Leistung für Selbstfokussierung kann man grob durch eine zweite Methode abschätzen. Hierzu betrachtet man, daß das einfallende Lichtbündel der Beugung unterworfen ist. Für den Winkel θ_B, um den der Strahl durch die Beugung, an einer kreisförmigen Blende, aufgeweitet wird, gilt:

$$\theta_B = \frac{1.22\lambda}{n_0 d}$$

mit dem „Halbwertsradius“ d des Lichtbündels. Unter der Annahme, daß sich der Brechungsindex zwischen dem Bereich innerhalb und dem Bereich außerhalb des Halwertsradius des Bündels sprunghaft um $\Delta n = \frac{1}{2}n_2|E|^2$ ändert, ist die Bedingung zur Selbstfokussierung der Bedingung zur Totalreflexion an der „Grenzfläche“ des Bündels analog. Die Bedingung lautet:

$$\sin\theta_t = \cos\theta' \simeq 1 - \frac{\theta'^2}{2} = \frac{n_0}{n_0 + \Delta n}$$

Mit $\frac{n_0}{n_0+\Delta n} = \frac{1}{1+\Delta n/n_0} \simeq 1 - \frac{\Delta n}{n_0}$ ergibt sich $\theta'^2 = \frac{2\Delta n}{n_0}$ und somit:

$$\theta' \geq \theta_B \Rightarrow \frac{2\Delta n}{n_0} \geq \left(\frac{1.22\lambda}{n_0 d}\right)^2$$

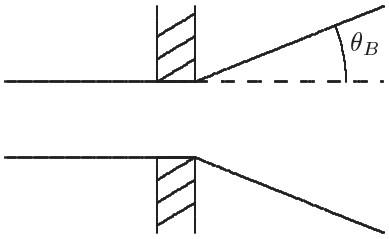


Abbildung 3.3: Aufweitung eines Lichtbündels durch Beugung

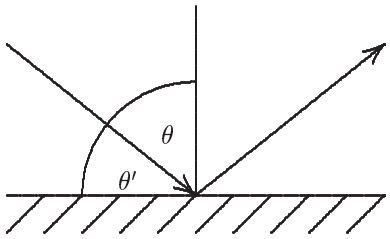


Abbildung 3.4: Reflexion an einer Oberfläche

Aus der eingestrahlten Leistung folgt somit die kritische Leistung für Selbstfokussierung:

$$P = \frac{n_0 c\varepsilon_0}{2}|E|^2\frac{\pi d^2}{4} \Rightarrow P_c = \frac{1.22^2\lambda^2}{n_2}\frac{\pi}{8}c\varepsilon_0$$

Dieses Ergebnis unterscheidet sich nur um einen Zahlenfaktor von dem in Gleichung (3.19) erhaltenen Ergebnis. Es gilt also

$$P_c \propto \frac{\lambda^2}{n_2}$$

Die kritische Leistung für Selbstfokussierung liegt typischerweise bei ca. $10^4 W$.

3.2.3 Selbstfokussierung von Laserimpulsen

Wird die Selbstfokussierung mit gepulsten Lasern verifiziert, so ist ein Wandern des Fokalpunktes („*moving foci*“) zu beobachten. Dies ist auf eine zeitliche Verteilung der Laserintensität zurückzuführen (siehe Abbildung 3.5). Zu jeder momentanen Leistung des Lasers gehört der entsprechende Wert von z_f. Bei sehr kurzen Impulsen kann die Brechungsindexänderung der Intensitätsändeung nicht mehr folgen (transiente Selbstfokussierung). Die Selbstfokussierung von fs–Lichtimpulsen ist noch nicht untersucht worden.

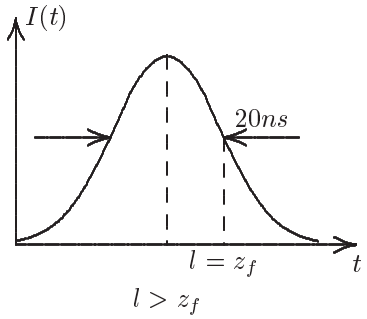


Abbildung 3.5: Hier ist der zeitliche Verlauf eines Laserimpulses dargestellt. Es sind zusätzlich die Orte l einiger Selbstfokalpunkte, unter Berücksichtigung der Gleichung (3.18) und der endlichen Lebensdauer von Δn, qualitativ agegeben.

Bei Laserpulsen ist es möglich, daß sie hinter dem Fokus in einem sehr eng begrenzten Bündel (der Radius liegt in der Größenordnung der Wellenlänge) weiterpropagieren. Man spricht hier von *self trapping*.

3.2.4 Anwendungen

3.2.4.1 Schwache Selbstfokussierung

Die hier beschriebenen nichtlinearen Medien können aufgrund ihrer selbstfokussierenden Eigenschaft als Linse eingesetzt werden. Hierbei treten allerdings Linsenfehler wie z.B. *sphärische Abberation*, *Astigmatismus* usw. auf. Mit der in Abbildung 3.6

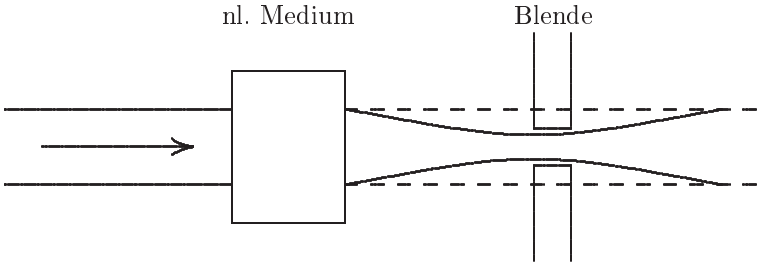


Abbildung 3.6: Verwendung eines selbtfokussierenden Mediums als Linse mit Blende

gezeigten Anordnung ist die Ausgangsleistung hinter der Blende von der eingestrahlten Leistung abhängig. Liegt der Fokus genau in der Blende, so ist die transmittierte Leistung $T = \frac{P_{trans}}{P_{in}}$ nahezu gleich Eins, wohingegen die transmittierte Leistung außerhalb dieses Falles kleiner Eins ist. Hier liegt es nahe, selbstfokussierende Medien als nichtlineare Schalter einzusetzen. Dies geschieht hauptsächlich zur passsiven Modenkopplung in Ultrakurzzeitlasern („*Kerr lens modelocking*“). In einigen dieser Laser ist der Laserstab gleichzeitig die Linse („*self mode locking*“) wie z.B. im Titan–Saphir–Laser ($\tau_{puls} \leq 10fs$).

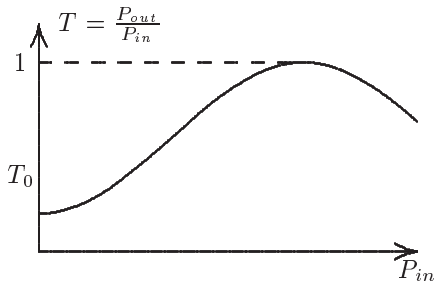


Abbildung 3.7: Hier ist die transmittierte Leistung des nichtlinearen Schalters aus Abb. 3.6 über der Eingangsleistung aufgetragen.

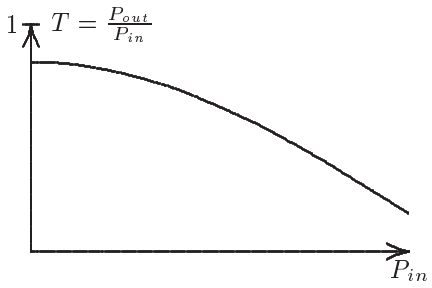


Abbildung 3.8: Hier ist die transmittierte Leistung des nichtlinearen Leistungsbegrenzers aus Abb. 3.9 über der Eingangsleistung aufgetragen.

Stellt man die Blende sehr weit vom selbstfokussierenden Medium auf, so ist das Maximum der transmittierten Leistung für Eingangsleistungen nahe bei Null erreicht. Die transmittierte Leistung fällt also bei zunehmender Eingangsleistung ab, wodurch man eine Vorrichtung zur Leistungsbegrenzung („*intensity delimiter*“) erhält (siehe Abb 3.9).

3.2.4.2 Katastrophale Selbstfokussierung

Kommt es zur katastrophalen Selbstfokussierung, kann die Feldstärke im Fokus so groß werden, daß sie einen dielektrischen Zusammenbruch bewirkt. Die durch den dielektrischen Zusammenbruch auftretenden freien Ladungen bewirken eine Absorption

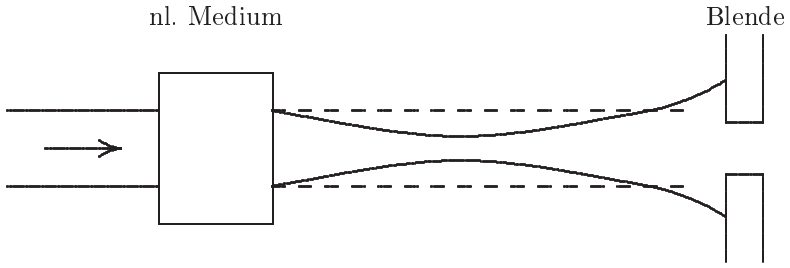


Abbildung 3.9: Verwendung eines selbtfokussierenden Mediums als Leistungsbergrenzer

der Energie des Lichtbündels. Die transmittierte Intensität hat den in Abbildung 3.10 abgebildeten Verlauf. Es kommt also zur Erzeugung einer scharfen Impulsflanke.

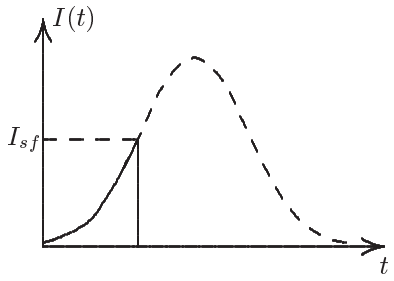


Abbildung 3.10: Zeitlicher Verlauf der transmittierten Intensität bei katastrophaler Selbstfokussierung im nichtlinearen Medium

Benutzt man als selbstfokussierendes Medium ein Gas (z.B. CO_2), so findet bei katastrophaler Selbstfokussierung im Fokus eine Umwandlung des Gases in ein Plasma durch dielektrischen Zusammenbruch statt. Die gesamte Vorrichtung kann also als *Plasmaschalter* verwendet werden.

3.3 Selbst–Phasenmodulation

Durch die Intensitätsabhängigkeit ($n = n_1 + n_2\langle E^2\rangle$) des Brechungsindexes kommt es zu einer nichtlinearen Phasenänderung. Für die propagierende Welle gilt

$$E = E_0 e^{i(kx-\omega t+\phi)}$$

mit der nichtlinearen Phasenänderung $k = \frac{n\omega}{c} = \frac{\omega}{c}n_1 + \frac{\delta\phi}{x}$, wobei $\delta\phi = \frac{\omega}{c}n_2\langle E^2(t)\rangle \cdot x$ gilt. Für hohe Intensitäten ist also $v < v_{phase}$ (für $n_2 > 0$). Durch diesen Effekt erhält man also eine Impulsverformung. Der Effekt der Impulsverformung wird hier nicht betrachtet. Man erhält zusätzlich eine Frequenzmodulation. Wird eine Welle $E = E_0 e^{i(k_L^0 l-\omega_L t+\delta\phi)}$ mit $\delta\phi = n_2\frac{\omega_L}{c}l\langle E^2(t)\rangle$ eingestrahlt, so ist die *momentane Frequenz* durch $\omega_{mom} = -\frac{\partial\phi_{ges}}{\partial t}$ gegeben. Somit ist die Größe der Frequenzmodulation durch

$$\Delta\omega = \left|\frac{\partial\phi}{\partial t}\right|_{max} - \left|\frac{\partial\phi}{\partial t}\right|_{min} \simeq k_L^0\delta nl\frac{1}{t_p}$$

gegeben.

Beispiel Für einen Puls mit $t_p = 1ps$ und $\delta n \simeq 10^{-4}$ ergibt sich bei einer Länge des Kristalls von $l = 10cm$ eine Frequenzmodulation von $\frac{\Delta\omega}{2\pi c} \simeq 300cm^{-1}$.

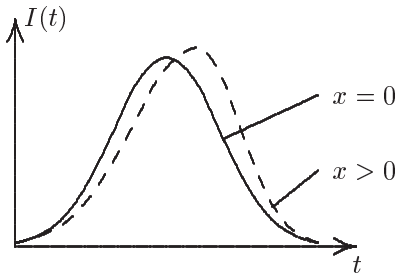


Abbildung 3.11: Verformung eines Impulses durch Selbst–Phasenmodulation

Bewirkt die Frequenzmodulation einen Anstieg der Frequenz, so spricht man von „*positive chirp*". Der Effekt der Frequenzmodulation kann mit einem Gitterspektrometer gemessen werden. Hierbei mißt man $I(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|^2$, wobei $\tilde{E}(\omega)$ durch

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

gegeben ist.

3.3.0.3 Anwendung

Die Frequenzmodulation kann angewandt werden, um aus einer monochromatischen Welle ein Kontinuum von Wellen verschiedener Frequenzen zu erzeugen. Der Effekt der Selbst–Phasenmodulation kann aber auch verwendet werden, um Impulse zu komprimieren (ursprünglich wurden Radarimpulse komprimiert). Eine Kompression um den Faktor n in Verbindung mit einer dispersiven Laufzeitänderung entspricht hierbei einer Steigerung des Intensitätsmaximums um den gleichen Faktor n. In der Praxis wird ein Signal zunächst moduliert und dann komprimiert. Durch Impulskompression wurde der Rekord[5] (1986) bei den fs–Lichtimpulsen erreicht ($50fs \rightarrow 6fs$). Der maximal erreichte Kompressionsfaktor liegt bei ca. 10^6.

Wird ein amplitudenmoduliertes Signal[6] durch eine Glasfaserleitung geschickt, so findet eine Konvertierung der Amplituden- in eine Frequenzmodulation des Signales durch die hier beschriebene Selbst–Phasenmodulation statt. Zur Rückgewinnung des amplitudenmodulierten Signals, kann das Signal über ein Gitterpaar (anomale Dispersion) aufgespaltet werden.

Bemerkungen

- Die Dispersion ist ein reversibler Prozeß, d.h. das aus dem Gitterpaar erhaltene Spektrum kann wieder in ein frequenzmoduliertes Signal umgewandelt werden.
- Die Begrenzung der Impulskompression ist hauptsächlich durch Terme höherer (> 2) Ordnung der Dispersion beschränkt. Hierdurch kann es im Experiment notwendig sein, daß das Gitterpaar zweimal durchlaufen werden muß.

[5] $8fs$: Knox et al., Appl. Phys. Lett. 46, 1120, (1985)
$6fs$: Fork et al., Appl. Phys. Lett. 12, 483, (1986)
$4,5fs$ 1996

[6] Im Zeitbild erkennt man bei einem amplitudenmodulierten Signal eine Trägerwelle der Frequenz ω_t, deren Amplitude mit der Modulationsfrequenz $\omega_m \ll \omega_t$ moduliert ist. Betrachtet man dieses Signal allerdings im Frequenzbild (durch Fouriertransformation der Welle), so stellt man fest, daß hier nur Seitenbänder der Frequenzen $\omega_t - \omega_m$ und $\omega_t + \omega_m$ existieren. Das amplitudenmodulierte Signal enthält also keine Frequenzkomponente der Trägerfrequenz ω_t.

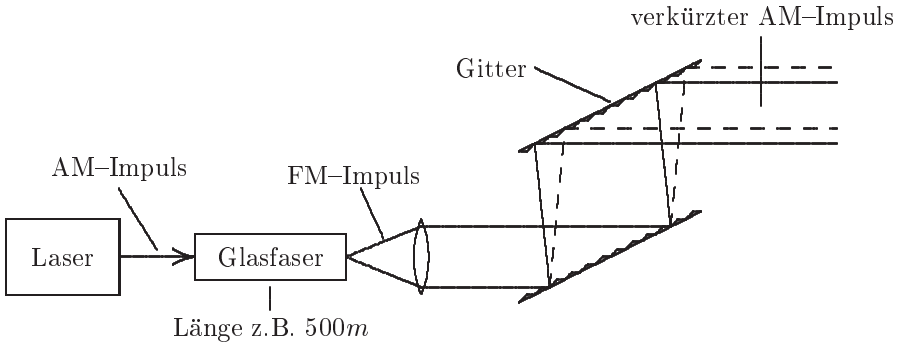


Abbildung 3.12: Verkürzung eines Impulses, dessen Amplitudenmodulation durch die Benutzung einer Glasfaserleitung in eine Frequenzmodulation konvertiert wurde. Man wandelt hierbei das frequenzmodulierte Signal wieder in ein amplitudenmoduliertes Signal um.

- Für die Umwandlung des frequenzmodulierten Signals in ein amplitudenmoduliertes Signal ist $\frac{\mathrm{d}^2 k}{\mathrm{d}\omega^2}$ ausschlaggebend, da hier festgelegt wird, wie „genau“ der Effekt, der zu Frequenzmodulation führt, kompensiert wird. (Terme höherer Ordnung werden vernachlässigt.)

In der Faserkommunikation werden Materialien mit nichtlinearer Impulspropagation eingesetzt, weil so dem Auseinanderlaufen der Signalimpulse durch Dispersion in der Glasfaser entgegengewirkt werden kann. Man erreicht somit eine stationäre Impulsform (*Solitonen*).

Beispiel Bei einer gewünschten Übertragungsrate von $> 10\frac{Gbit}{s}$ folgt $\tau_p < 10ps$. Für ideale Rechteckimpulse ist, aufgrund der großen spektralen Verteilung, der oben beschriebene Effekt des Auseinanderlaufens besonders groß.

Kapitel 4

Streuprozesse

4.1 Spontane Streuprozesse

Führt man ein Streuexperiment an einem Medium durch, erhält man etwa das in Abb. 4.1 skizzierte Spektrum. Für das Zustandekommen dieses Spektrums sind die

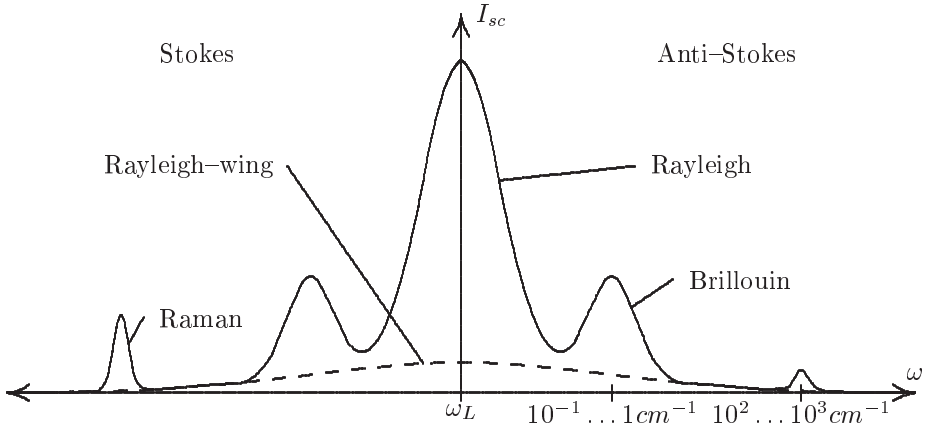


Abbildung 4.1: Ergebnis eines Streuexperimentes an einem Medium mit Nichtlinearitäten dritter Ordnung

Mechanismen der *Rayleigh-*, *Brillouin-*, *Rayleigh–wing* und *Ramanstreuung* verantwortlich. Allen vier Mechanismen ist die Linearität[1] $I_{sc} = \sigma N l I_L \Delta\Omega$ gemeinsam. Bei der folgenden Untersuchung der Mechanismen werden wir uns für die Größen *Streuintensität*, *Linienbreite*, *Linienposition* und *Polarisation* interessieren.

4.1.1 Rayleighstreuung

Die *Rayleighstreuung* tritt auf, wenn die mittlere freie Weglänge l der Moleküle in der Probe, bzw. die Größe der Moleküle klein im Vergleich zur eingestrahlten Wellenlänge λ ist. In Flüssigkeiten sind Temperatur- und damit Dichtefluktuationen für die Rayleighstreuung verantwortlich. In Gasen ist bei hinreichend kleinen Dichten zudem noch die Streuung an einzelnen Molekülen, in Festkörpern die Streuung an Phononen zu berücksichtigen. Aufgrund der Unschärferelation ist die Linienbreite der

[1] Hierbei ist σ der Streuquerschnitt, N die Teilchenzahldichte der Streuer, l die Wechselwirkungslänge und $\Delta\Omega$ der Raumwinkel, unter dem die Streuung beobachtet wird.

gestreuten Welle in Flüssigkeiten mit der Relaxationszeit der Dichte- bzw. Temperaturfluktuation τ, in Festkörpern mit der Phononenlebensdauer τ korreliert. Es ergibt sich[2]:

$$\Gamma_R \simeq \frac{1}{\tau} \tag{4.1}$$

Die thermischen Dichteschwankungen sind ortsfest und relaxieren durch Wärmeleitung, d.h. sehr langsam. Die Relaxationszeit hängt von der effektiven Größe der Fluktuationen und damit von der Streueometrie ab.

Bei Streuung an Quasiteilchen im Festkörper ist die Linienbreite durch

$$\Gamma_R = \frac{\Lambda}{\rho c_p} k^2 = ak^2 \tag{4.2}$$

gegeben[3]. Abbildung 4.2 zeigt eine solche Streuung. Der Streuwinkel θ ist hierbei durch $k = 2k_L \sin(\theta/2)$ mit der Wellenzahl k des Quasiteilchens korreliert. Die Inten-

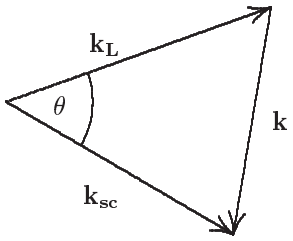


Abbildung 4.2: Streuung eines Photons an einem Quasiteilchen

sität der gestreuten Strahlung ergibt sich zu[4]

$$I_R \propto \frac{1}{(\omega - \omega_L)^2 + \Gamma_R^2} \tag{4.3}$$

Die physikalische Aussage der Abb. 4.2 ist, daß das Streuexperiment ($\mathbf{k}_L$ und $\mathbf{k}_{sc}$) die Dichtefluktuationen nahe dem eingestellten Wellenvektor $\mathbf{k} = \mathbf{k}_{sc} - \mathbf{k}_L$ analysiert, d.h. die räumliche Fourierkomponente mit dem Wellenvektor $\mathbf{k}$ selektiert wird. (Amplitude des Dichtegitters mit der Wellenlänge $\frac{2\pi}{k}$)

Beispiel Für CS_2 ist $a = 2 \cdot 10^{-3} \frac{cm^2}{s}$. Unter einem Beobachtungswinkel von $\theta = 180°$ beobachtet man ein Γ von $\Gamma = 2\pi \cdot 1MHz$.

4.1.2 Rayleigh–wing Streuung

Bei der *Rayleigh–wing–Streuung* handelt es sich um Streuung an Orientierungsfluktuationen. Nach einigen Stößen der Gas- bzw. Flüssigkeitmoleküle ändert sich die Orientierung der anisotropen Moleküle vollständig. Die Zeit zur Umorientierung liegt also in der Größenordnung der mittleren freien Flugzeit der Moleküle und ist somit wesentlich kürzer als die Relaxationszeit der Dichte- bzw. Temperaturfluktuationen bei der Rayleighstreuung. Die Linienbreite, die hierdurch verursacht wird, ist also wesentlich größer als die der Rayleighstreuung. Für die Rayleigh–wing–Streuung gilt

[2] Γ_R ist die halbe Halbwertsbreite des Impulses.

[3] ρ ist hierbei die Massendichte, c_p die spezifische Wärme und Λ die Wärmeleitfähigkeit.

[4] siehe z.B. Landau, Lifschitz - Lehrbuch der theoretischen Physik Band 8 - Elektrodynamik der Kontinua §120

eine, zur Gleichung (4.3) analoge, Gleichung. Nach Debye gilt für die Zeit zur Umorientierung eines Moleküls

$$\tau_{or} \simeq \frac{4\pi a^3 \eta}{3kT}$$

Hier ist a der Radius des Moleküls und η die Viskosität des Fluids.

4.1.3 Brillouinstreuung

Die ersten Nebenmaxima in Abbildung 4.1 entstehen durch Streuung an Dichteschwankungen, die mit Schallgeschwindigkeit propagieren. Solche Schwankungen treten in Gasen, Flüssigkeiten und Festkörpern auf. Im Festkörper heien diese Schwankungen thermisch angeregte akustische Phononen.

Eine sehr anschauliche Herleitung betrachtet die Streuung an Dichtefluktuationen (d.h. an deren Fourierkomponenten mit Wellenvektor $k = 2\pi/\lambda_{ph}$) wie die Bragg–Streuung in Kristallen. Nur wenn die Streuung an verschiedenen Dichtemaxima „phasenrichtig“ überlagert wird, tritt ein Maximum in der Intensität auf. Mit λ_{Ph} als Wellenlänge der Dichteschwankung (vgl. Abb. 4.3) lautet die Bragg–Beziehung[5]:

$$2\lambda_{Ph} \sin\frac{\theta}{2} = \lambda_L \tag{4.4}$$

oder

$$2|\mathbf{k}_L| \sin\frac{\theta}{2} = |\mathbf{k}| \tag{4.5}$$

Dabei ist θ der Streuwinkel wie in Abb. 4.2 definiert. Im Prinzip kann man die Bragg–Beziehung auch aus der Impulserhaltung ableiten (siehe Abb. 4.2).

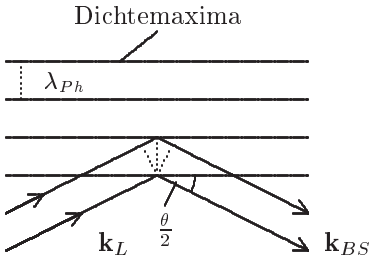


Abbildung 4.3: Skizze zur Brillouinstreuung. Streuung an propagierenden Dichtefluktuationen

Wegen der statistischen Verteilung von $\mathbf{k}_{Ph}$ wird das Streulicht bei der Brillouinstreuung in alle Raumrichtungen abgestrahlt. Berücksichtigt man nun, daß sich die Dichteschwankungen mit der Schallgeschwindigkeit v_S fortbewegen, ergibt sich eine Doppler–Verschiebung des gestreuten Lichts:

$$\frac{\omega_{BS}}{\omega_L} = 1 \pm 2\frac{v_S}{c} \sin\frac{\theta}{2} \tag{4.6}$$

Setzt man hierin noch die Bragg–Beziehung, $k_L = \frac{\omega_L}{c}$ und $k = \frac{\omega_{Ph}}{v_S}$ ein, so erhält man schließlich:

$$\omega_{BS} = \omega_L \pm \omega_{Ph} \tag{4.7}$$

Die Brillouinstreuung unterscheidet sich von der Ramanstreuung in zwei wesentlichen Punkten:

[5]Dieser Ansatz ist nur gerechtfertigt, wenn $\lambda_L \simeq \lambda_{BS}$ gilt. Weil aber $\frac{\delta\nu}{\nu_L} \simeq 10^{-5}$ gilt, ist diese Näherung gut erfüllt.

- Die Frequenzverschiebung ist vom Streuwinkel θ abhängig. Die maximale Verschiebung entsteht bei Rückstreuung $\theta = \pi$.

- Die relative Verschiebung ist kleiner. Mit $v_S \approx 10^5 cms^{-1}$ läßt sich folgende Abschätzung angeben:

$$\frac{\delta\omega}{\omega_L} = \frac{\omega_L - \omega_{BS}}{\omega_L} \approx 10^{-5}$$

  Im Vergleich hierzu liegt $\frac{\delta\omega}{\omega_L}$ bei der Ramanstreuung bei $\frac{\delta\omega}{\omega_L} = 10^{-3} \ldots 10^{-2}$.

Die Intensität der gestreuten Strahlung ist bei der spontanen Brillouinstreuung durch eine Lorentzfunktion gegeben:

$$\begin{aligned} \text{Stokes: } I_B &\propto \frac{1}{(\omega - \omega_L + \omega_{Ph})^2 + \Gamma_B^2} \\ \text{Antistokes: } I_B &\propto \frac{1}{(\omega - \omega_L - \omega_{Ph})^2 + \Gamma_B^2} \end{aligned} \tag{4.8}$$

Γ_B ist die Linienbreite ($\frac{1}{2} \cdot$ FWHM) der Brillouinstreuung und hängt mit der Phononenlebensdauer τ_{Ph} über $\Gamma = \frac{1}{2\tau_{Ph}}$ zusammen. Man definiert den Absorptionskoeffizienten α durch $\alpha = \frac{1}{v_S \tau_{Ph}}$.

In der Festkörperphysik wird die Brillouinstreuung zur Aufnahme der Dispersionsrelation von akustischen Phononen eingesetzt. Allerdings kann man wegen des geringen Impulses der Photonen nur den Anfang der Dispersionsrelation ausmessen. Mit der nun folgenden Ramanstreuung kann man als Ergänzung noch die optischen Äste der Dispersionrelation im Zentrum der Brillouinzone erfassen.

4.1.4 Ramanstreuung

4.1.4.1 Molekülschwingungen, optische Phononen

Strahlt man eine schmalbandige optische Welle (etwa einen Laserstrahl oder eine Linie einer Spektrallampe) auf eine Probe ein, so erhält man nach einer spektralen Analyse der gestreuten Strahlung Frequenzen, die um die Vibrationsfrequenz der Probe, gegenüber der eingestrahlten Welle, „nach oben“, bzw. „nach unten“ verschoben sind. Die Intensität der Anti–Stokes Komponente ($\omega_{AS} = \omega_L + \omega_\nu$) ist hierbei in der Regel um Größenordnungen kleiner als die Intensität der Stokes ($\omega_S = \omega_L - \omega_\nu$) Komponente. Das Zustandekommen der beiden Komponenten läßt sich anhand von Abbildung 4.4 verstehen.

Es wird nun klar, warum die Anti–Stokes–Komponente eine geringere Intensität als die Stokes–Komponente aufweist. Um die Anti–Stokes–Komponente erzeugen zu können, muß das streuende Molekül angeregt sein. Befindet sich die Probe aber im thermischen Gleichgewicht, so ist die Besetzung des Niveaus $\nu = 1$ gegenüber dem Niveau $\nu = 0$ um den Faktor $e^{-\hbar\omega_\nu/kT}$ geringer (nichtentartete Zustände). Der Anti–Stokes–Prozeß tritt gegenüber den Stokes–Prozeß entsprechend seltener auf.

Beide Prozesse sind Drei–Quanten–Prozesse, bei denen sowohl die Energieerhaltung als auch die Impulserhaltung erfüllt sind. Um also die Ramanstreuung beschreiben zu können, muß man auf die Quantenmechanik zurückgreifen.[6] Hierzu nimmt man an, daß die Energie der betrachteten Molekülbindung durch

$$V(x) = ax^2 + bx^3 + \ldots$$

[6] Die Ramanstreuung kann man sich auch klassisch vorstellen. Man geht hier von einer Polarisierbarkeit aus, die mit der Eigenschwingung des Moleküls durch $\alpha(t) = \alpha_0 \cos(\omega_M t)$ zusammenhängt. Berechnet man nun die dielektrische Polarisation, so treten Terme auf, die mit $\omega_L + \omega_M$ oder mit $\omega_L - \omega_M$ oszillieren.

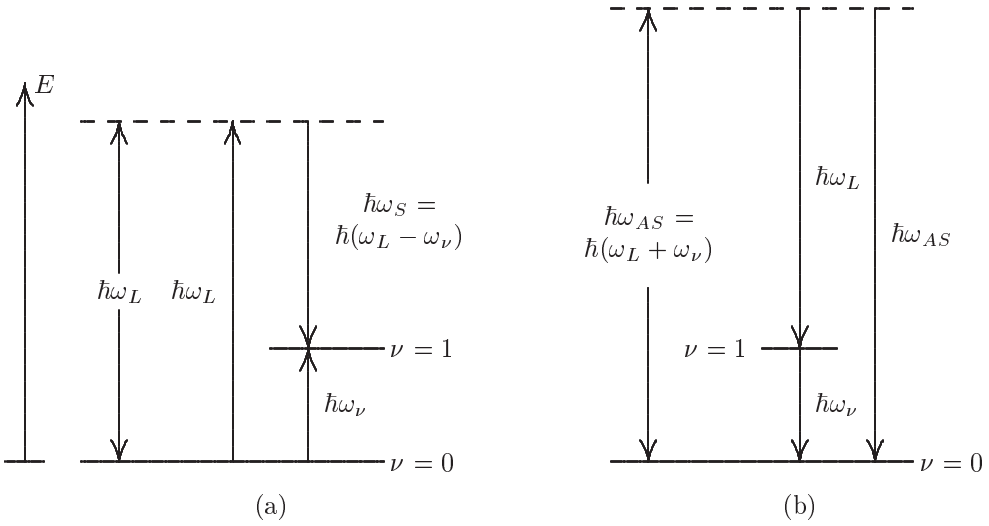


Abbildung 4.4:
(a) zeigt die Stokes–Streuung. Hier wird das eingestrahlte Laserphoton, unter Emission des Stokes–Photons, absorbiert. Die Probe geht hierbei in einen energetisch höheren Zustand über.
(b) zeigt die Anti–Stokes–Streuung. Hier wird das Laserphoton absorbiert und die Probe geht in einen energetisch tieferen Zustand über. Dabei wird ein Anti–Stokes–Photon erzeugt.

gegeben ist. Vernachlässigt man die Terme einschließlich der Ordnung x^3, so ergibt sich der harmonische Oszillator. Im allgemeinen können diese Terme nicht vernachlässigt werden, was hier aber dennoch geschieht. Man hat noch die Energie des elektrischen Dipolmoments im eingestrahlten elektrischen Feld zu berücksichtigen. Das induzierte Dipolmoment ist durch $\mu_i = \varepsilon_0 \alpha E$ gegeben. Hier ist eine Abhängigkeit der molekularen Polarisierbarkeit α von x durch $\alpha(x) = \alpha_0 + (\partial\alpha/\partial x)|_0 x$, mit der differentiellen Polarisierbarkeit $(\partial\alpha/\partial x)|_0$, zu verwenden. Liegt ein antisymmetrisches Molekül vor, so besitzt dies ein permanentes Dipolmoment μ_p, dessen Abhängigkeit von x durch $\mu_p(x) = \mu_p^0 + (\partial\mu_p/\partial x)|_0 x$ approximiert wird. Zum Hamiltonoperator des Systems muß also der folgende Störterm addiert werden:

$$\mathcal{H}' = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} = -\left(\mu_p^0 + \left.\frac{\partial \mu_p}{\partial x}\right|_0 x + \varepsilon_0 \alpha_0 E + \varepsilon_0 \frac{1}{2} \left.\frac{\partial \alpha}{\partial x}\right|_0 xE\right) E \tag{4.9}$$

Da die Eigenfunktionen $\psi_\nu(x)$ des Gesamthamiltonoperators orthogonal sind, können der erste und der dritte Term in der Klammer keinen Übergang zwischen benachbarten Vibrationszuständen bewirken. Der zweite Term bewirkt eine direkte Absorption von Infrarotkomponenten bei der Frequenz[7] ω_ν. Für die Ramanstreuung ist also lediglich der vierte Term relevant.

$$\mathcal{H}_{Raman} = -\frac{1}{2} \left.\frac{\partial \alpha}{\partial x}\right|_0 xE^2$$

4.1.4.2 Elektronischer Ramaneffekt

Wird an einem Halbleiter ein Magnetfeld angelegt, können die Elektronen im Leitungsband nur diskrete Energieniveaus (*Landauniveaus*) einnehmen. Die Elektronen

[7] Dies sieht man sofort, da dieser Term nur einmal mit dem elektrischen Feld multipliziert wird, und somit nur an einem zwei–Quanten–Prozeß (Absorption der Infrarotstrahlung und Anregung des Moleküls) beteiligt sein kann. D.h. wenn ein Molekül trotz einer vorhandenen Schwingung kein Dipolmoment aufweist, ist es nicht IR–aktiv.

können nun wie oben durch den Einfluß der einfallenden Laserphotonen auf energetisch höher gelegene Landauniveaus gelangen. Hierbei wird wieder ein Stokes–Photon der Frequenz $\omega_S = \omega_L - \delta\omega_{Landau}$ emittiert. Die Energiedifferenz zwischen zwei benachbarten Landauniveaus ist durch

$$\hbar\omega_c = \hbar\frac{eB}{m^*} \tag{4.10}$$

gegeben. Hierbei sind ω_c die Zyklotronfrequenz und m^* die effektive Masse des Elektrons. Da die Zyklotronfrequenz direkt propotional zu B ist, kann hier die Frequenz der Stokes– bzw. der Anti–Stokes–Komponente über B durchgestimmt werden. Der Anti–Stokes–Mechanismus funktioniert analog.

Bei der „*Spin–Flip–Ramanstreuung*“ wird die Aufspaltung der Landauniveaus durch den Spin der Elektronen brücksichtigt. Die Energiedifferenz, die durch einen Spin–Flip auftritt, läßt sich als

$$\hbar\omega_L = g\frac{eB}{2m^*} \tag{4.11}$$

schreiben. Es ist hier zu berücksichtigen, daß das gyromagnetische Verhältnis g für Elektronen im Festkörper i.a. nicht gleich 2 ist.

4.2 Stimulierte Ramanstreuung

Die stimulierte Ramanstreuung wurde 1962 von Woodbury und Ng entdeckt. Sie verwendeten eine *Kerrzelle*, um einen *Q–Switch*[8] bei einem Rubinlaser zu erreichen. Hierbei stellten sie fest, daß die Anordnung neben der Frequenz $14430cm^{-1}$ des Rubinlasers auch noch eine Frequenz von $13080cm^{-1}$ emittiert. Die Differenzfrequenz von $1350cm^{-1}$ ist auf einen Ramaneffekt an den polaren Molekülen der Kerrzelle zurückzuführen. Die hohe Intensität der Ramanlinie ist nicht durch die spontane Ramanstreuung zu erklären.

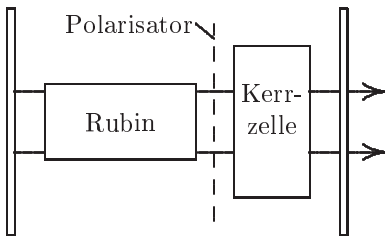


Abbildung 4.5: Anordnung des Experimentes von Woodbury und Ng, welches zur Entdeckung der Stimulierten Ramanstreuung führte.

4.2.1 Experimentelle Beobachtung

Die stimulierte Ramanstreuung kann in verschiedenen experimentellen Anordnungen verifiziert werden.

4.2.1.1 Generatoranordnung

Bei der Generatoranordnung wird nur der Laserstrahl in das streuende Medium eingestrahlt. Beim Austritt aus dem Medium können die ursprüngliche Laserfrequenz, die erste und die zweite Stokes–Linie und die erste Antistokes–Linie nachgewiesen werden.

[8] siehe z.B. F.K. Kneubühl, M.W. Sigrist: Laser, Kapitel 9

Die Erzeugung der Ramanlinien erfolgt kohärent. Bei der Verwendung von ns–Pulsen ist die stimulierte Ramanstreuung sowohl in Vorwärts- als auch in Rückwärtsrichtung zu beobachten. Dagegen ist sie bei ps–Impulsen nur in Vorwärtsrichtung nachzuweisen. Dieses Experiment ist sehr effektiv, u.U. tritt dabei auch Selbstfokussierung auf. Das Verhältnis $\frac{I_S}{I_L}$ liegt hier in günstigen Fällen etwa bei $0.3 \ldots 0.5$.

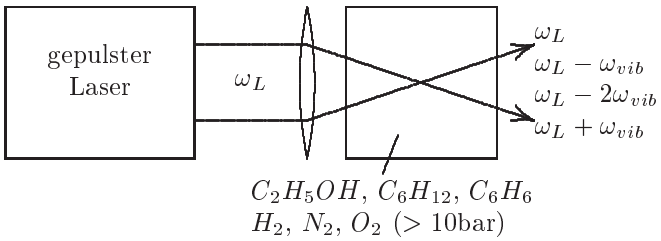


Abbildung 4.6: Nachweis der stimulierten Ramanstreuung in der Generatoranordnung.

In der Abbildung 4.6 ist ω_{vib} durch die Vibration mit dem größten Wirkungsquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\omega}$ gegeben. D.h. ω_{vib} ist die Vibration mit dem größten Verstärkungsfaktor für die stimulierte Ramanstreuung.

4.2.1.2 Verstärkeranordnung

In der Verstärkeranordnung ist das Verhältnis $\frac{I_S}{I_L}$ durch[9]

$$\frac{I_S}{I_L} = f(I_L) = e^{g_S I_L l} \tag{4.12}$$

gegeben. Hierbei ist l die Länge des durchlaufenen streuenden Mediums. Im allgemeinen ist bei dieser experimentellen Anordnung die Intensität so gering, daß keine (katastrophale) Selbstfokussierung auftritt.

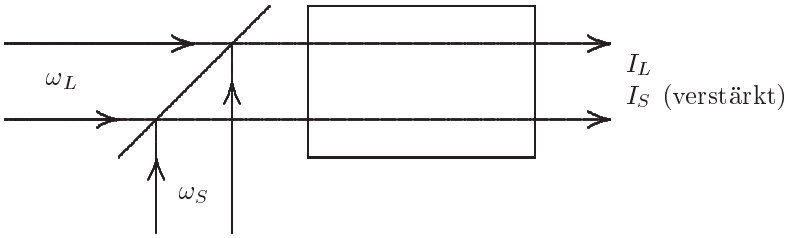


Abbildung 4.7: Nachweis der stimulierten Ramanstreuung in der Verstärkeranordnung.

4.2.1.3 Rückkopplungsanordnung

Wird die Probe mit dem streuenden Medium in einen optischen Resonator gestellt, so wird die stimulierende Stokes–Linie der Verstärkeranordnung vom Medium selbst erzeugt. Man spricht hier vom *Raman Maser*, bzw. vom *stimulierten Raman–Resonator*. Sind die Reflektivitäten der beiden Resonatorspiegel durch R_1 bzw. R_2 gegeben, läßt sich mit der Gleichung (4.12) eine Schwellwertbedingung für das Einsetzen der Emission der Ramanlinien angeben[10]:

$$R_1 R_2 e^{2 g_S I_L l} \geq 1 \tag{4.13}$$

[9] Gl. (4.12) gilt unter (quasi-) stationären Bedingungen (hinreichend lange Laserimpulse).

[10] Hier wurde die Absorption vernachlässigt. Sie trägt einen Term $-\alpha l$ im Exponenten von Gleichung (4.13) bei.

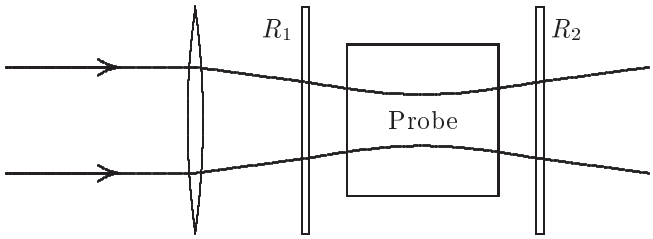


Abbildung 4.8: Stimulierte Ramanstreuung mit Rückkopplung

Die Intensität der ausgekoppelten Stokes–Linie ist durch

$$I_S(l) = I_S^{eff}(0)e^{g_S I_L l} \tag{4.14}$$

gegeben. Hier ist $I_S^{eff}(0)$ die im Resonator rückgekoppelte Intensität der Stokes–Linie. Die theoretische Ausgangsintensität des stimulierten Raman Resonators ist in Abbildung 4.9, die gemessene Ausgangsintensität in Abbildung 4.10 gezeigt. Die in Abb. 4.10 angedeutete Begrenzung der Intensität der Stokeslinie ist durch den Abbau der eingestrahlten Laserphotonen bestimmt. D.h. hier wird annähernd jedes Laserphoton vernichtet, um ein Stokesphoton zu erzeugen. Die Ramanlinien werden leicht divergent in Vorwärts- und in Rückwärtsrichtung emittiert (geometrischer Effekt).

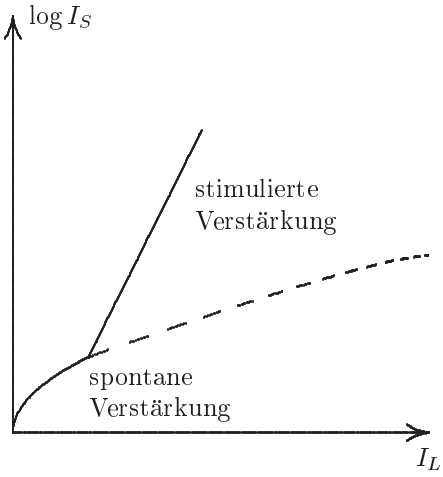


Abbildung 4.9: Theoretische Ausgangsintensität des Ramanresonators

Abbildung 4.10: Gemessene Ausgangsintensität des Ramanresonators

4.2.2 Theoretische Beschreibung

Die stimulierte Ramanstreuung wird hier mittels der elektromagnetischen Feldtheorie beschrieben. Die Beschreibung gliedert sich in zwei Teile. Zum einen wird die exponentielle Verstärkung, unter Annahme einer Nichtlinearität dritter Ordnung, hergeleitet und zum anderen wird die Nichtlinearität dritter Ordnung selbst aus den Eigenschaften des Streuers abgeleitet. Auf eine quantenmechanische Herleitung soll hier verzichtet werden.

Zunächst betrachten wir die nichtlineare Wellengleichung (1.11):

$$\triangle \mathbf{E} - \frac{\varepsilon}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2 \varepsilon_0}\frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \tag{4.15}$$

Es wird angenommen, daß eine Nichtlinearität dritter Ordnung, d.h. $\mathbf{P}_{NL} = \chi^3\mathbf{EEE}$ vorliegt. Bei der nichtlinearen Wellengleichung wird nur diejenige Frequenzkomponente betrachtet, die mit der Frequenz $\omega_S = \omega_L - \omega_{vib}$ oszilliert. Um die Gleichungen zu vereinfachen, werden $\mathbf{E}_L$, $\mathbf{E}_S$ und $\mathbf{P}_{NL}$ als parallel angenommen. $\mathbf{E}_L$ wird so gewählt, daß keine Sättigung auftritt. Die Propagation soll in z–Richung stattfinden. Unter der Voraussetzung, daß die Stokes–Komponente als ebene Welle

$$E_S = A_S(z)e^{i(k_S z - \omega_S t)}$$

geschrieben werden kann, vereinfacht sich der erste Term in der nichtlinearen Wellengleichung also zu

$$\begin{aligned} \triangle\mathbf{E} \longrightarrow \frac{\partial^2}{\partial z^2}E_S &= \frac{\partial}{\partial z}\left(ik_S A_S e^{i(k_S z-\omega_S t)} + \frac{\partial A_S}{\partial z}e^{i(k_S z-\omega_S t)}\right) \simeq \\ &\simeq -k_S^2 A_S e^{i(k_S z-\omega_S t)} + 2ik\frac{\partial A_S}{\partial z}e^{i(k_S z-\omega_S t)} \end{aligned}$$

Beim letzten Schritt wurde die zweite Ableitung der Amplitude vernachlässigt. Setzt man das Gefundene in die Geichung (4.15) ein, so erhält man:

$$-k_S^2 A_S + 2ik\frac{\partial A_S}{\partial z} + \frac{\varepsilon}{c^2}\omega_S^2 A_S = -\frac{1}{c^2\varepsilon_0}\omega_S^2\chi^3|E_L|^2 A_S$$

Berücksichtigt man, daß $k_S = \frac{\omega_S}{c}\sqrt{\varepsilon}$ gilt, können der erste und der dritte Term herausgestrichen werden und diese Gleichung reduziert sich zu

$$\frac{\partial A_S}{\partial z} = \frac{i\chi^3\omega_S^2}{2c^2 k_S\varepsilon_0}|E_L|^2 A_S \tag{4.16}$$

Diese Gleichung wird im Resonanzfall durch

$$\ln\frac{A_S}{A_S(0)} = \frac{|\chi^3|\omega_S^2}{2c^2 k_S\varepsilon_0}|E_L|^2 z$$

gelöst[11]. Man erhält also die exponentielle Verstärkung der Stokeslinie:

$$A_S(z) = A_S(0)\exp\left\{\frac{|\chi^3|\omega_S^2}{2c^2 k_S\varepsilon_0}2\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\frac{1}{n}I_L z\right\} = A_S(0)\exp\left\{\frac{|\chi^3|\omega_s}{\varepsilon_0^2}I_L z\right\} \tag{4.17}$$

Führt man die Abkürzung $g_S := 2\frac{|\chi^3|\omega_s}{\varepsilon_0^2}I_L$ ein, so ergibt sich die folgende Gleichung für $I_S(z)$:

$$I_S(z) = I_S(0)e^{g_S I_L z} \tag{4.18}$$

Nun soll die Nichtlinearität dritter Ordnung für ramanaktive Medien hergeleitet werden. Die Koordinate der Molekülschwingung, an der gestreut wird sei $\langle q\rangle$. Für sie kann die Bewegungsgleichung

$$\langle\ddot{q}\rangle + \frac{2}{T_2}\langle\dot{q}\rangle + \omega_{vib}^2\langle q\rangle = \frac{F(\langle q\rangle, t)}{m} \tag{4.19}$$

mit der *Phasenrelaxationszeit* der Schwingung T_2 ($= 2\cdot$ Phononenlebensdauer), aufgestellt werden. $F(q,t)$ gibt eine treibende Kraft an, die durch die eingestrahlten Felder, E_L und E_S, hervorgerufen wird. Analog zur Herleitung der Gleichung (4.9) läßt sich hierfür[12]

$$F(\langle q\rangle, t) = \frac{\varepsilon_0}{2}\left(\frac{1}{4}\left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 E_L E_S^* + c.c.\right) \tag{4.20}$$

[11] Vgl. Abb. 4.11 zum Auftreten der Betragsstriche beim Term $|\chi^3|$

[12] Die mit $\omega_L+\omega_S$ oszillierenden Terme werden bei der Produktbildung $\frac{1}{2}(E_L+E_S+c.c.)\cdot\frac{1}{2}(E_L+E_S+c.c.)$ vernachlässigt.

mit der molekularen Polarisierbarkeit α, schreiben. Das induzierte Dipolmoment des Moleküls ist durch

$$\langle\hat{p}\rangle = \varepsilon_0 \left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 \langle q\rangle E$$

gegeben. E ist hierbei die Summe der eingestrahlten Felder E_L und E_S:

$$E(z,t) = \frac{1}{2}\left(A_L(z)e^{-i(k_L z-\omega_L t)} + A_S(z)e^{-i(k_S-\omega_S t)} + c.c.\right)$$

Die nichtlineare Polarisation hängt mit dem Dipolmoment eines Moleküls über $P_{NL} = N\langle\hat{p}\rangle$ zusammen. Deshalb gilt die folgende Gleichung für die nichtlineare Polarisation.

$$P_{NL} = N\varepsilon_0 \left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 \langle q\rangle E \tag{4.21}$$

Setzt man für $\langle q\rangle$ eine zeitlich harmonische Funktion ($\langle q\rangle = \frac{1}{2}\left(Q(z)e^{-i(kz-\omega t)} + c.c.\right)$) an, so ergibt sich für die Bewegungsgleichung (4.19):

$$\begin{aligned}\frac{1}{2}\left(Q(z)\left(-\omega^2 + i\frac{2}{T_2} + \omega_{vib}^2\right)e^{-i(kz-\omega t)} + c.c.\right) = \\ = \frac{\varepsilon_0}{8m}\left(\left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 A_L(z)A_S^*(z)e^{-i((k_L-k_S)-(\omega_L-\omega_S)t)} + c.c.\right)\end{aligned} \tag{4.22}$$

Führt man nun einen Koeffizientenvergleich der Exponentialfunktionen durch und zieht man in Betracht, daß bei der spontanen Ramanstreuung ω_S durch $\omega_S = \omega_L - \omega_{vib}$ gegeben ist, so erkennt man, daß hier $\omega = \omega_L - \omega_S$ und $k = k_L - k_S$ gelten muß. Für die positiven Frequenzkomponeten folgt also aus Gleichung (4.22):

$$Q(z) = \frac{\varepsilon_0 \left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 A_L(z)A_S^*(z)}{4m\left(\omega_{vib}^2 - (\omega_L-\omega_S)^2 + i\frac{2}{T_2}(\omega_L-\omega_S)\right)} \tag{4.23}$$

Im Resonanzfall gilt $\omega_{vib} = \omega_L - \omega_S$, wodurch sich die Gleichung (4.23) auf

$$Q(z) = -i\frac{1}{4m}\varepsilon_0 \left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 \frac{T_2}{2\omega_{vib}} A_L(z)A_S^*(z) \tag{4.24}$$

reduziert. Mit Gleichung (4.21) erhält man also für die nichtlineare Polarisation[13]

$$\begin{aligned}P_{NL} = N\varepsilon_0 \left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 \frac{1}{2}\left(A_L(z)e^{-i(kz-\omega_L t)} + A_S(z)e^{-i(kz-\omega_S t)} + c.c.\right)\cdot \\ \cdot\frac{1}{2}\left(\frac{\varepsilon_0 \left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0 A_L(z)A_S^*(z)}{4m\left(\omega_{vib}^2 - (\omega_L-\omega_S)^2 + i\frac{2}{T_2}(\omega_L-\omega_S)\right)}e^{-i((k_L-k_S)z-(\omega_L-\omega_S)t)} + c.c.\right)\end{aligned} \tag{4.25}$$

Derjenige Teil der nichtlinearen Polarisation, der mit ω_L oszilliert, läßt sich also als

$$\begin{aligned}P_{NL}^{\omega_L}(z,t) = \frac{1}{2}\frac{N\varepsilon_0^2}{2}\left(\left.\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\right|_0\right)^2 \cdot \\ \cdot\left(\frac{|A_S(z)|^2}{4m\left(\omega_{vib}^2 - (\omega_L-\omega_S)^2 + i\frac{2}{T_2}(\omega_L-\omega_S)\right)}A_L(z)e^{-i(k_L z-\omega_L t)} + c.c.\right)\end{aligned} \tag{4.26}$$

[13] Wegen des Layouts wurde hier der Faktor E vorgezogen.

schreiben. Definiert man $P_{NL}^{\omega_L}(z)$ durch $P_{NL}^{\omega_L}(z,t) = \frac{1}{2}P_{NL}^{\omega_L}(z)e^{-i(k_L z-\omega_L t)} + c.c.$, so folgt für $P_{NL}^{\omega_L}(z)$:

$$P_{NL}^{\omega_L}(z) = \frac{N\varepsilon_0^2\left(\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\Big|_0\right)^2|E_S(z)|^2}{8m\left(\omega_{vib}^2-(\omega_L-\omega_S)^2+i\frac{2}{T_2}(\omega_L-\omega_S)\right)}A_L(z) \tag{4.27}$$

Die Suszeptibilität dritter Ordnung wird in Gleichung (1.6) definiert. Für $P_{NL}^{\omega_L}(z)$ gilt:

$$P_{NL}^{\omega_L}(z,t) = \varepsilon_0\chi_R(\omega_L)|E_S(z)|^2E_L(z,t)$$

Vergleicht man dies mit der Gleichung (4.27), so ist $\chi_{R(aman)}$ durch

$$\chi_R = \frac{N\varepsilon_0\left(\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\Big|_0\right)^2}{8m\left(\omega_{vib}^2-(\omega_L-\omega_S)^2+i\frac{2}{T_2}(\omega_L-\omega_S)\right)} \tag{4.28}$$

gegeben.

Zerlegt man χ_R in Real- und Imaginärteil ($\chi_R = \chi_R' + i\chi_R''$), so folgt für χ_R' und χ_R'', mit der Approximation $\omega_{vib} + (\omega_L - \omega_S) \approx 2\omega_{vib}$ und der Substitution $\Delta\omega = \omega_{vib} - (\omega_L - \omega_S)$:

$$\chi_R' = \frac{N\varepsilon_0\left(\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\Big|_0\right)^2}{16m\omega_{vib}}\frac{\Delta\omega}{\Delta\omega^2+\frac{1}{T_2^2}} \tag{4.29}$$

$$\chi_R'' = -\frac{N\varepsilon_0\left(\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\Big|_0\right)^2}{16m\omega_{vib}}\frac{\frac{2}{T_2}}{\Delta\omega^2+\frac{1}{T_2^2}} \tag{4.30}$$

Die beiden Suszeptibilitäten sind in Abbildung 4.11 gegen $\omega_L - \omega_S$ aufgetragen.

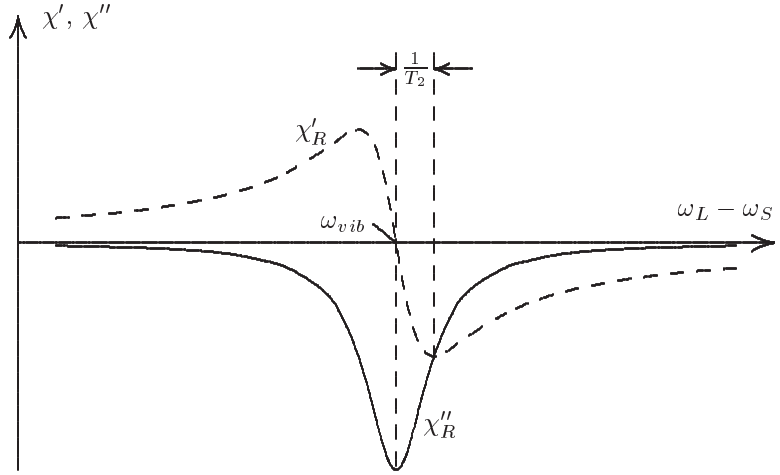


Abbildung 4.11: Suszeptibilitäten der stimulierten Ramanstreuung. Die Suszeptibilitäten χ_R' und χ_R'' sind hier gegen $\omega_L - \omega_S$ aufgetragen. Es gilt $\chi_R = \chi_R' + i\chi_R''$

Wie man aus der Abbildung 4.11 und aus den Gleichungen (4.29) und (4.30) erkennt, ist $|\chi^3|$ in Gleichung (4.17) durch $|\chi^3| = -\chi_R''$ gegeben[14]. Für $g(\Delta\omega)$ in Gleichung (4.18) erhält man also:

$$g(\Delta\omega) = \frac{NT_2\omega_S\left(\frac{\partial\alpha}{\partial\langle q\rangle}\Big|_0\right)^2}{8m\omega_{vib}\varepsilon_0}\frac{1}{1+\Delta\omega^2T_2^2} = \frac{g_S}{1+\Delta\omega^2T_2^2}$$

[14] In Gleichung (4.17) wird der Resonanzfall $\Delta\omega = 0$ betrachtet.

Zahlenwerte: $g(\Delta\omega)$ liegt etwa bei $1 \ldots 22 cm/GW$. Für $N_2(77K)$ liegt $g(\Delta\omega)$ z.B. bei $22 cm/GW$. Erzielt man in einer Generatoranordnung eine Verstärkung von etwa e^{30}, so ist die Eingangsintensität des Lasers ca. $300 MW/cm^2$. Die Schadensschwelle liegt für ns–Impulse bei etwa $1 GW/cm^2$

4.2.2.1 Anwendung

Bei der *Raman–gain–Spectroscopy* bzw. der *Raman–loss–Spectroscopy* wird die Intensität der Stokes–Linie vor und nach dem Durchgang durch das nichtlineare Medium bestimmt. Gewöhnlich verwendet man für ω_S einen durchstimmbaren Farbstofflaser (*dye–Laser*) und fährt so, bei festem ω_L, $\Delta\omega$ durch. Somit kann $g(\Delta\omega)$ für die einzelnen Vibrationsfreiheitsgrade der Probe bestimmt werden.

4.2.3 Erzeugung weiterer Frequenzkomponenten

Im Experiment beobachtet man neben der Stokes- und der Antistokeslinie noch weitere Linien ($\omega_{S2}, \omega_{AS2}, \omega_{S3} \ldots$), wobei z.B. $\omega_{S2} = \omega_L - 2\omega_{vib} = \omega_S - \omega_{vib}$ gilt (weitere Linien analog). Da die Schwingungsenergien (typisch $1000 cm^{-1} = 0.12 eV$) i.a. größer als Raumtemperatur sind, werden keine höheren Schwingungsniveaus angeregt sein. Es handelt sich also nicht um einen Ramaneffekt höherer Ordnung, sondern um einen Folgeprozeß in Form einer Kaskade.

Für die Erzeugung der weiteren Frequenzkomponenten sind zwei Mechanismen verantwortlich. Zunächst ist die Hierarchie der stimulierten Ramanstreuung zu berücksichtigen. D.h. nur dann, wenn bereits Ramanstreuung stattgefunden hat, können höhere Stokes- bzw. Antistokeslinien erzeugt werden. So kann z.B. eine 2. Stokeslinie nur dann erzeugt werden, wenn eine Vibrationsanregung des Moleküls durch eine vorhergehende Raman–Stokes–Streuung vorhanden ist. Dann ist es möglich, daß eine Selbststreuung der erzeugten Linien an der kohärenten Materialanregung auftritt (*kohärente Ramanstreuung*). Wird z.B. durch stimulierte Ramanstreuung eine Reihe von Molekülen angeregt, so hat diese Anregung eine feste Phasenbeziehung zum einfallenden Feld des Laserstrahls bzw. zu der erzeugten Stokes–Linie (*Kohärenz*). Aufgrund dieser Kohärenz der Molekülanregung kommt es zur stimulierten Antistokes–Streuung bzw. durch die Kohärenz der Stokes–Linie zur stimulierten Erzeugung der Stokes Komponente zweiter Ordnung, usw.

Liegt für eine Komponente eine Fehlanpassung des Wellenvektor vor, kommt es ähnlich wie bei der Erzeugung der zweiten Harmonischen zu einem räumlich oszillierenden Auftreten der Ramanlinien. Es gilt z.B. für die Stokes–Linie:

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} \propto E_L \langle q^* \rangle$$

Setzt man ebene Wellen ein, so folgt:

$$\frac{\partial A_S}{\partial z} \propto A_L Q^* e^{-i \overbrace{(k_L - k_{S1} - k_{vib})}^{\Delta k_{S1}}} \tag{4.31}$$

analog erhält man

$$\frac{\partial A_{A1}}{\partial z} \propto A_L Q e^{-i \overbrace{(k_L - k_{A1} + k_{vib})}^{\Delta k_{A1}}}$$

Der Ausgangsprozeß läuft automatisch mit $\Delta k_{S1} = 0$ ab ($k_{vib} = k_L - k_{S1}$); entprechend ist i.a. $\Delta k_{A1} \neq 0$.

4.2.4 CARS (Coherent Antistokes Raman Spectroscopy)

Bei dieser Methode wird die Selbststreuung an der kohärenten Materialanregung benutzt, um eine Antistokes–Linie zu erzeugen. Wie aus Abbildung 4.12 ersichtlich ist, kann eine eventuelle Fehlanpassung der Wellenvektoren durch Veränderung der Einfallsrichtung des Laser- und des Stokes–Strahls kompensiert werden, so daß $\Delta k_{A1} = 0$ gilt.

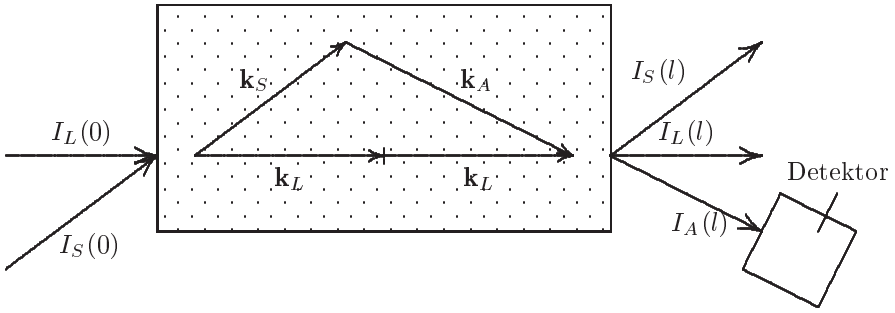


Abbildung 4.12: Schematischer Aufbau eines CARS Experiments. Die Winkel zwischen den Wellenvektoren sind im realen Experiment wesentlich kleiner.

Analog zur Herleitung der Gleichung (4.16) kann man für die kohärente Antistokes–Ramanstreuung folgendes finden:

$$\frac{\partial A_A}{\partial z} = \frac{i\chi^3\omega_A^2}{2c^2 k_A \varepsilon_0} A_L A_L A_S^* e^{i\Delta k z} \tag{4.32}$$

Aufgrund der, im Vergleich mit A_L und A_S, kleinen Amplitude der Antistokeslinie trägt der kohärente Prozeß mehr zu einem Anwachsen der Amplitude E_A bei als der stimulierte Prozeß[15]. Gleichung (4.32) wird durch eine Exponentialfunktion gelöst. Für die Intensität der kohärent erzeugten Antistokeslinie erhält man also:

$$I_A(z) \propto |\chi^3|^2 I_L^2 I_S z^2 \left(\frac{\sin\left(\Delta k \frac{z}{2}\right)}{\left(\Delta k \frac{z}{2}\right)} \right)^2 \tag{4.33}$$

Wählt man die Geometrie so, daß $\Delta k = 0$ gilt, steigt die Intensität der kohärenten Antistokeslinie quadratisch mit der durchschrittenen Probenlänge an. Neben dieser hohen Intensität der Linie ist auch ihre Kollimation wegen der definierten Richtung, die durch die einfallenden Strahlen vorgegeben ist, im Experiment von Vorteil. Mit CARS wird eine hohe Auflösung erreicht.

Im Experiment läßt man die Frequenz des Lasers fest und variiert ω_S. So kann ein weites Spektrum von Molekülresonanzen durchgefahren werden.

4.2.4.1 Anwendungen

- Mit CARS werden z.B. Verbrennungsvorgänge in Ottomotoren untersucht[16].
- Da die Intensität von der dielektrischen Suszeptibilität dritter Ordnung abhängt, kann bei bekannten Molekülresonanzen die Teilchenzahldichte (vgl. Gl. (4.28)) in der Probe mit CARS bestimmt werden.

[15] Die der Gleichung (4.32) entsprechende Gleichung für den stimulierten Prozeß erhält man, wenn man in Gleichung (4.16) den Index $_S$ durch den Index $_A$ ersetzt.

[16] Ob der Name „CARS“ aufgrund dieser Anwendung abgeleitet wurde, ist nicht bekannt :-).

4.2.5 Transiente stimulierte Ramanstreuung

Bei der stimulierten Ramanstreuung, die mit ultrakurzen ($t_P \simeq ps \ldots fs$) Lichtimpulsen wird die gleiche Theorie angewandt, wie bei der stimulierten Ramanstreuung. Aufgrund der verwendeten kurzen Lichtimpulse kann die Stationaritätsbedingung aber nicht aufrecht erhalten werden. Man erhält hier für das elektrische Feld der Stokeslinie E_S, die Koordinate der Molekülschwingung Q und die Besetzungszahl der Vibrationsanregung n die folgenden Differentialgleichungen:

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right] E_S = \frac{i\omega_S^2}{4c^2 k_S}\frac{\partial \alpha}{\partial q} N E_L Q^* \tag{4.34}$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_2}\right] Q = \frac{i}{4m\omega_0}\frac{\partial \alpha}{\partial q} E_L E_S^* (1-2n) \tag{4.35}$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_1}\right] n = \frac{i}{8\hbar}\frac{\partial \alpha}{\partial q} E_L E_S^* Q^* + c.c. \tag{4.36}$$

Hieraus ergeben sich mit den jeweiligen Randbedingungen $E_S(z,t)$, $Q(z,t)$ und $n(z,t)$. Die Zeit T_1 gibt die Besetzungslebensdauer der angeregten Molekülvibrationen an, und die Phasenrelaxationszeit T_2 ist die doppelte Phononenlebensdauer. $\frac{1}{2}\cdot T_2$ ist also derjenige Zeitraum, in dem die Molekülanregungen und das eingestrahlte elektromagnetische Feld des Lasers bzw. die erzeugte Stokeslinie eine feste Phasenbeziehung zueinander besitzen.

Aus den Lösungen des Differentialgleichungssystems (4.34) bis (4.36) kann die Bedingung für Stationarität abgelesen werden. Für $t_P > 10T_2$ kann das System als stationär betrachtet werden, für $t_P \leq 10T_2$ muß die transiente Beschreibung herangezogen werden.

4.2.6 Nachweis der zeitabhängigen Materialanregung

Die Phasenrelaxationszeit $\frac{T_2}{2}$ der kohärenten Materialanregung kann mit zeitaufgelöster, transienter CARS gemessen werden. Das Probenmaterial wird zunächst durch einen ersten kurzen Laserimpuls angeregt, um dann durch einen zeitverzögerten Abfrageimpuls eine CARS–Linie zu erzeugen (*pump and probe*). Beide Laserimpulse entstehen durch eine Strahlteilung und eine Verzögerungsstrecke aus einem Impuls ($\rightarrow$ Synchronisation der beiden Impulse). Die Erzeugung der CARS–Linie findet nur dann statt, wenn die vom ersten Laserimpuls geschaffene Materialanregung bis zum Eintreffen des zweiten Laserimpulses überlebt. Es kommt nicht auf die Phasenbeziehung zwischen Feld und Materialanregung an, sondern auf die Phasenbeziehung zwischen den Molekülen (Superposition der induzierten Dipolmomente). Man ermittelt aus der gemessenen Intensität der CARS–Linie durch das auf Seite 17 ff. dargestellte Korrelationsverfahren die Zeitabhängigkeit der kohärenten Materialanregung.[17]

Für das elektrische Feld der Antistokes–Linie erhält man mit der in Kapitel 2 bereits mehrfach angewandten Transformation $t' = t - \frac{x}{v}$ und $x' = x$ eine zu Gl. (4.34) analoge Differentialgleichung:

$$\frac{\partial E_{AS}(x',t')}{\partial x'} = \frac{i\omega_{AS}^2}{c^2 k_{AS}} N \frac{\partial \alpha}{\partial q} e^{i\Delta k x} Q(t'+t_D) E_{L2}(t') \tag{4.37}$$

t_D bezeichnet hier die Zeit, um die der zweite Laserstrahl verzögert eintrifft. Aus der Lösung der Gleichung (4.37) erhält man für die Intensität des beobachteten CARS–

[17] Das „pump & probe“–Verfahren ist das wichtigste Messprinzip in der fs–Spektroskopie. Der größe Vorteil dieser Korrelationsverfahren ist, daß der Detektor nicht die zeitliche Auflösung des Signals haben muß (*Sampling–Verfahren*).

Signals:

$$I(t_D) \propto \left(\frac{i\omega_{AS}^2}{c^2 k_{AS}}\right)^2 N^2 \left(\frac{\partial\alpha}{\partial q}\right)^2 \left(\frac{sin(\frac{1}{2}\Delta kl)}{\frac{1}{2}\Delta kl}\right)^2 l^2 \int Q^2(t'+t_D)|E_{L2}(t')|^2 \mathrm{d}t' \quad (4.38)$$

Das in Gleichung (4.38) auftretende Integral ist im Wesentlichen eine Faltung zwischen dem Amplitudenquadrat der Materialanregung und der Intensität des Abfrageimpulses[18].

4.3 Stimulierte Brillouin–Streuung (SBS)

In 4.1.3 wurde bereits die Streuung an akustischen Phononen als spontane Brillouinstreuung behandelt. Im Unterschied dazu erzeugt bei der *stimulierten Brillouinstreuung* das eingestrahlte Licht die Dichtefluktuationen (akustische Phononen) selbst. Eine Möglichkeit Phononen zu erzeugen, ist z.B. die Erwärmung des Mediums. Durch die Absorption von Licht wird eine Temperaturfluktuation hervorgerufen, die wiederum eine mit Schallgeschwindigkeit propagierende Dichtefluktuation ($\rightarrow$ im FK Phononen) bewirkt. Durch diese Dichtefluktuation wird der Brechungsindex um δn verändert, wodurch eine Kopplung der Dichteschwankung mit der Lichtwelle entsteht. Deshalb nennt man diesen Fall (absorbierendes Medium) häufig auch *Stimulierte thermische Brillouin–Streuung (STBS)*. Das Fachwort für den Mechanismus der Phononenerzeugung durch das elektrische Feld ohne Temperaturänderung ist die *Elektrostriktion*.

4.3.1 Theoretische Behandlung

Für einen allgemeinen Ansatz stellt man zunächst wieder eine nichtlineare Polarisation auf

$$\mathbf{P}^{NL} \propto \mathbf{E} \cdot \left[\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T \rho + \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial T}\right)_\rho T\right] . \quad (4.39)$$

Für die nachfolgenden Gleichungen definieren wir noch den *elektrostriktiven Kopplungskoeffizienten*

$$\gamma_e := \rho_0 \left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T \quad (4.40)$$

wobei ρ_0 die mittlere Dichte im thermischen Gleichgewicht ist[19].
Mit dieser Polarisation kann man nun wieder Wellengleichungen für E_L und E_S aufstellen, worauf wir hier verzichten wollen. Diese beiden gekoppelten DGLs sind im allgemeinen Fall kaum lösbar. Deshalb macht man folgende Vereinfachungen, die für die meisten Fälle gültig sind:

1. $T\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial T}\right)_\rho \ll \rho\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_T$
2. Starke Dämpfung von akustischen Phononen:
   $\Gamma_B \frac{\rho}{v_S} \gg 2\frac{\partial\rho}{\partial z}$; v_S: Schallgeschwindigkeit

[18] Siehe: D. von der Linde, A. Laubereau und W. Kaiser: Phys. Rev. Lett. 26, 954 (1971)

[19] Anmerkung für den „aufmerksamen“ Leser ;-)
Worin besteht der Unterschied zwischen BS und RS?
Bei beiden Streumechanismen sind Entropie S und Druck p unabhängige Variablen. Aber:

BS: Streuung an isentropen ($\mathrm{d}S = 0$), adiabatischen, mit Schallgeschwindigkeit propagierenden Druckschwankungen $\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial p}\right)_S$

RS: Streuung an isobaren Entropiefluktuationen $\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial S}\right)_p$ (im Wesentlichen Ortsfest)

Als Lösungen der Differentialgleichungen erhält man im stationären Fall ($\frac{\partial}{\partial t} \ldots = 0$) dann

$$\frac{dI_S}{dz} = -g_B I_L I_S + \alpha I_S \tag{4.41}$$

$$\frac{dI_L}{dz} = -g_B I_L I_S - \alpha I_L \tag{4.42}$$

Der Verstärkungsfaktor g_B hat dabei die Form

$$g_B = \underbrace{g^e_{B,max} \cdot \frac{1}{1+\left(\frac{2\Delta\omega}{\Gamma_B}\right)^2}}_{\text{elektrostriktiver Anteil}} + \underbrace{g^a_{B,max} \cdot \frac{\frac{4\Delta\omega}{\Gamma_B}}{1+\left(\frac{2\Delta\omega}{\Gamma_B}\right)^2}}_{\text{Absorptionsanteil}} \tag{4.43}$$

mit $\Delta\omega = \omega_L - \omega_{Ph} - \omega_B$ und

$$g^e_{B,max} = \frac{\omega_S^2 \gamma_e^2 \tau_B}{c^3 n v_S \rho_0 \Gamma_B} \tag{4.44}$$

$$g^a_{B,max} \propto \omega_S^2 \gamma_e \alpha \tag{4.45}$$

Die hierbei eingeführte Linienbreite Γ_B entspricht der halben Breite bei der Hälfte des Maximums (*HWHM*). Außerdem ist der Verstärkungsfaktor noch vom Streuwinkel θ abhängig:

$$g^e_B(\theta) = \frac{g^e_{B,max}}{\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \quad ; 1^\circ < \theta < 180^\circ \tag{4.46}$$

Bemerkungen:

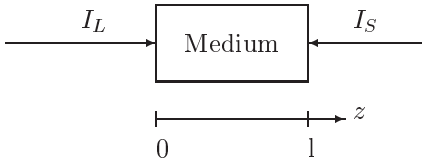
- Aus der obigen Herleitung ergeben sich 2 Möglichkeiten, um die Phononendämpfung zu bestimmen:
  1. Frequenzabhängigkeit von g_B in transparenten Medien messen $\Rightarrow \Gamma_B$
  2. Absolutwert von $g^e_{B,max}$ messen $\Rightarrow$ Berechnung von Γ_B mit Gl. (4.44).
- Es wurde experimentell überprüft, daß die Werte von Γ_B aus der SBS mit denen aus der spontanen BS übereinstimmen .[20]
- Für $\Delta\omega > 0$ (Stokes) gilt: $g_B > 0$.
- Für $\Delta\omega < 0$ (Anti-Stokes) gilt: $g_B \gtrless 0$; $g_B < 0$, falls α groß genug.

4.3.1.1 Beispiel

$g_B(\mathrm{CS_2}) = 0.14\frac{\mathrm{cm}}{\mathrm{MW}} > g_S(\mathrm{CS_2}) = 24 \cdot 10^{-3}\frac{\mathrm{cm}}{\mathrm{MW}}$
$\frac{\omega_B}{2\pi} = \nu_B = 5850\mathrm{MHz}$; $\Gamma_B \cdot \frac{1}{2\pi} = 70\mathrm{MHz}$

Die Lösung der Gl. (4.41) betrachten wir in der sog. *Kleinsignaltheorie* ($I_S \ll I_L$). Dann gilt in optisch dünnen Medien ($\alpha l \ll 1$)

$$I_S(z) = I_S(l) e^{(g_B I_L(0) - \alpha)\cdot(l-z)} . \tag{4.47}$$



[20] Laubereau et al., IEEE J. Quantum Electronics **2**, 649

Die Intensität der Brillouinstreuung kann also nur verstärkt werden, wenn $g_B > 0$ und $g_B I_L(0) - \alpha > 0$ gilt.

4.3.2 Experimentelle Durchführung

4.3.2.1 SBS Generator und Verstärker

In Abb. 4.14 ist der experimentelle Aufbau für die Erzeugung von Brillouinlicht dargestellt. Durch die grau angedeuteten Ergänzungen wird aus dem Generator ein Verstärker.

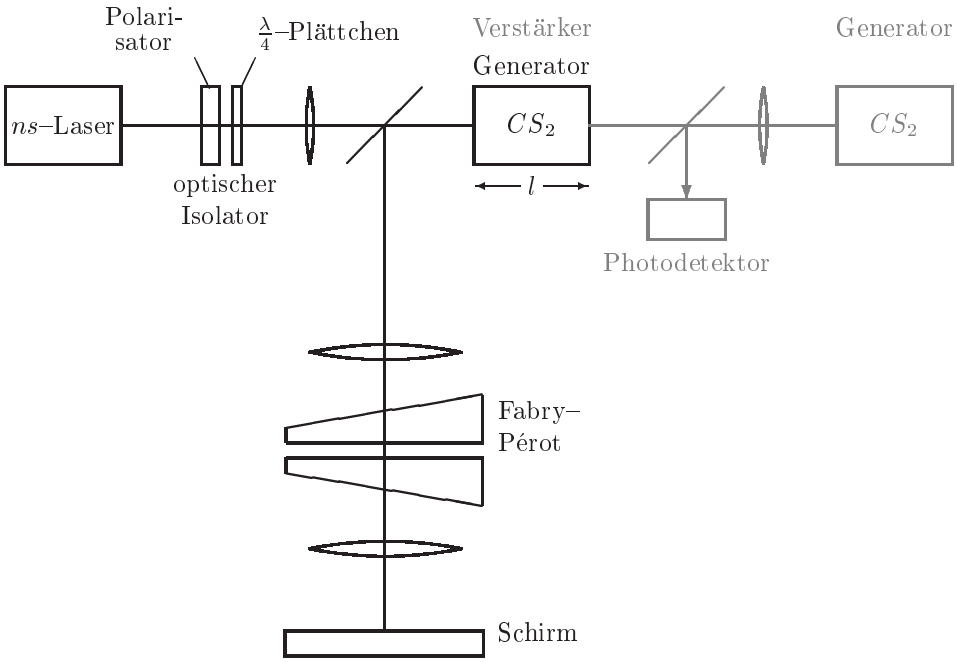


Abbildung 4.13: Aufbau eines SBS–Generator/Verstärker

Auf dem Schirm beobachtet man Kreise, die durch das Fabry–Pérot–Interferometer erzeugt werden (vgl. Abb. 4.14 (a)).

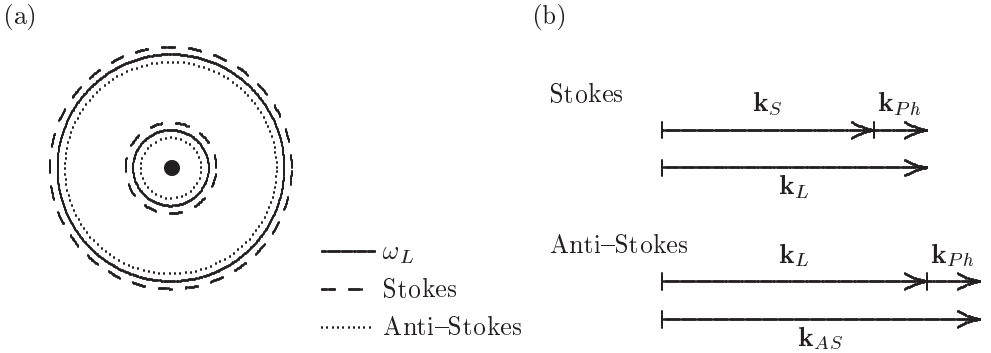


Abbildung 4.14: (a) Interferenzmuster auf dem Schirm. (b) Impulserhaltung bei der Stokes– und Anti–Stokes–Brillouinstreuung

Bemerkung:

- Die AS–Linie ist deutlich schwächer als die S–Linie.
- $\triangle k$ wird hier i.a. nicht durch die Dispersion bestimmt($\frac{\triangle k}{k} \ll 1$) , sondern durch die Geometrie.

4.3.2.2 Zeitaufgelöste Brillouinstreuung

Mit dem Aufbau aus Abb. 4.15 hat man[21] auch das zeitliche Verhalten der BS untersucht.

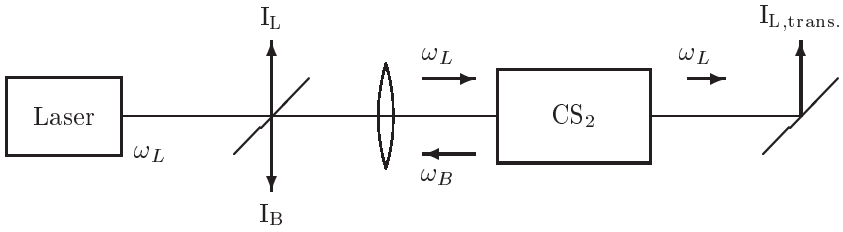


Abbildung 4.15: Schematischer Aufbau zur Aufnahme der Brillouinrückstreuung und gleichzeitig der transmittierten Laserintensität

Die Ergebnisse dieses Experiments sind in Abb. 4.17 zusammengefaßt. Man erkennt zwei wesentliche Eigenschaften :

1. I_B folgt der Laserintensität I_L sehr genau mit einer kleinen Zeitverzögerung
2. Die transmittierte Intensität $I_{L,trans.}$ ist stark reduziert und deformiert.

Man kann nun aus den Abb. 4.17 (a) und (b) die Intensitäten zu gleichen Zeiten gegeneinander auftragen. Dann erhält man das Diagramm in Abb. 4.16. Daraus ergibt sich, daß mittels der SBS ein hochreflektierender Spiegel (R $\lessapprox$ 90%) gebaut werden kann.

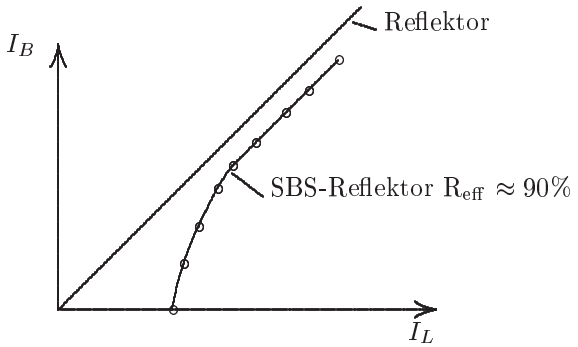


Abbildung 4.16: Diagramm I_B vs. I_L. Die Punkte (∘) sind aus Abb. 4.17 (a) und (b) entnommen. Die Gerade entspricht einem idealen Reflektor mit $R = 1$.

[21] Maier et al. : Phys. Rev. **166**, 18 (1968)

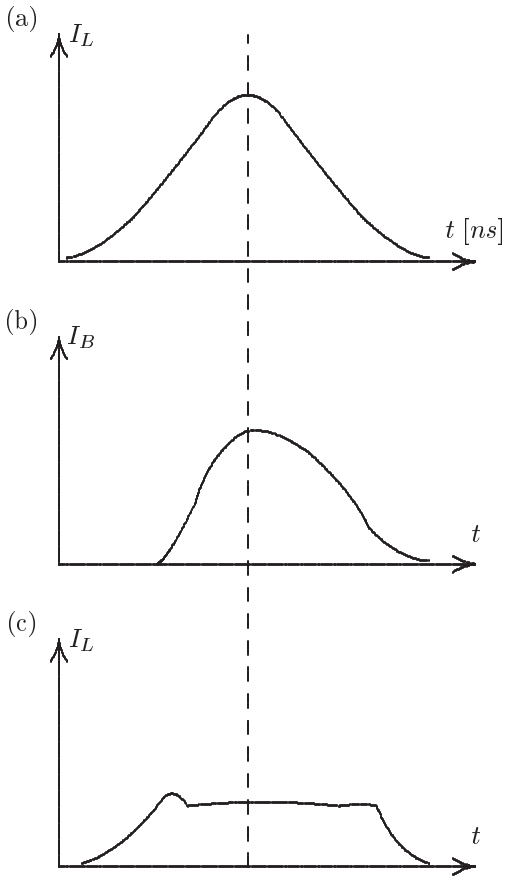


Abbildung 4.17: Zeitlicher Verlauf der Intensitäten bei der Brillouin-Streuung:
(a) Laserimpuls, (b) Intensität der Brillouin-Rückstreuung, (c) transmittierte Laserintensität

Anhang A

Quantenmechanische Beschreibung parametrischer Prozesse

Einige parametrische Prozesse, wie z.B. die spontane parametrische Fluoreszenz, können nicht klassisch erklärt werden. Hierzu ist eine quantenmechanische Betrachtung notwendig.

A.1 Quantisierung des elektromagnetischen Strahlungsfeldes

Das elektromagnetische Feld kann nach Slater[1] durch zwei Sätze orthonormierter Vektorfelder $\mathbf{E}_a$ und $\mathbf{H}_a$ dargestellt werden:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = -\sum_a \frac{1}{\sqrt{\varepsilon}}\, p_a(t)\mathbf{E}_a(\mathbf{r}) \tag{A.1}$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r},t) = \sum_a \frac{1}{\sqrt{\mu}}\, \omega_a q_a(t)\mathbf{H}_a(\mathbf{r}) \tag{A.2}$$

Die Orthonormierungsbedingung von $\mathbf{E}_a$ und $\mathbf{H}_a$ läßt sich wie folgt ausdrücken:

$$\int_V \mathbf{H}_a\mathbf{H}_b \mathrm{d}v = \delta_{a,b}$$
$$\int_V \mathbf{E}_a\mathbf{E}_b \mathrm{d}v = \delta_{a,b}$$

Nimmt man für die Vektorfelder $\mathbf{E}$ und $\mathbf{H}$ ebene Wellen an[2], so folgt die Beziehung[3]

$$k_a\mathbf{E}_a = \nabla\times\mathbf{H}_a \tag{A.3}$$
$$k_a\mathbf{H}_a = \nabla\times\mathbf{E}_a \tag{A.4}$$

[1] Slater, J.C., Microwave Electronics (Princeton, N.J.: Van Nostrand, 1950)

[2] Die Vektorfelder $\mathbf{E}$ und $\mathbf{H}$ sollen also die Gestalt

$$\mathbf{E}_a = \mathbf{E}_a^0 e^{ik_a z}$$
$$\mathbf{H}_a = \mathbf{H}_a^0 e^{ik_a z}$$

annehmen

[3] Mit der Resubstitution $\mathbf{E}_a^0 := \mathbf{E}_a$ (siehe Fußnote 2) und $\mathbf{H}$ analog.

aus den Maxwell–Gleichungen. Setzt man (A.1) und (A.2) in die Maxwell–Gleichungen (1.1) - (1.4) ein, so erhält man, unter Verwendung der Gleichungen (A.3) und (A.4), für q_a und p_a:

$$p_a = \dot{q}_a \tag{A.5}$$
$$\omega^2 q_a = -\dot{p}_a \tag{A.6}$$

Multipliziert man nun die Gleichung (A.1) mit $\mathbf{E}_b$, bzw. die Gleichung (A.2) mit $\mathbf{H}_b$ und integriert über das gesamte Volumen, so ergibt sich

$$p_b(t) = -\sqrt{\varepsilon}\int_V \mathbf{E}(\mathbf{r},t)\mathbf{E}_b(\mathbf{r})\mathrm{d}v$$
$$q_b(t) = \frac{\sqrt{\mu}}{\omega_b}\int_V \mathbf{H}(\mathbf{r},t)\mathbf{H}_b(\mathbf{r})\mathrm{d}v$$

Die Gesamt–Hamiltonfunktion des elektromagnetischen Feldes ergibt sich zu

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2}\int_V (\mu\mathbf{HH} + \varepsilon\mathbf{EE})\,\mathrm{d}v$$

Setzt man hier die Entwicklung (A.1) und (A.2) ein, so ergibt sich:

$$\mathcal{H} = \sum_a \frac{1}{2}(p_a^2 + \omega_a^2 q_a^2) \tag{A.7}$$

Diese Gleichung hat die Form einer Summe von harmonischen Oszillatoren. Betrachtet man die klassischen Bewegungsgleichungen (A.8) und (A.9), so erkennt man bei einem Vergleich mit (A.5) und (A.6), daß es sich bei q und p um kanonisch konjugierte Variable handelt.

$$\dot{p}_a = -\frac{\partial\mathcal{H}}{\partial q_a} = -\omega_a^2 q_a \tag{A.8}$$
$$\dot{q}_a = \frac{\partial\mathcal{H}}{\partial p_a} = p_a \tag{A.9}$$

Die Quantisierung des elektromagnetischen Feldes geschieht nun durch Identifizierung der Variablen p_a und q_a mit dem Impuls- und dem Ortsoperator beim gewöhnlichen harmonischen Ozillator. p_a und q_a gehorchen also den folgenden Vertauschungsrelationen:

$$[p_a, p_b] = [q_a, q_b] = 0$$
$$[p_a, q_b] = -i\hbar\delta_{a,b}$$

Wie beim gewöhnlichen harmonischen Oszillator führt man Leiteroperatoren („Erzeuger“ und „Vernichter“) ein.

$$a_a^\dagger = \sqrt{\frac{1}{2\hbar\omega_a}}\,(\omega_a q_a(t) - ip_a(t))$$
$$a_a = \sqrt{\frac{1}{2\hbar\omega_a}}\,(\omega_a q_a(t) + ip_a(t))$$

Der Hamiltonoperator kann also wie folgt geschrieben werden:

$$\mathcal{H} = \sum_a \hbar\omega_a\left(a_a^\dagger a_a + \frac{1}{2}\right) \tag{A.10}$$

Die Gesamtwellenfunktion des Strahlungsfeldes ist das Produkt der verschiedenen Eigenfunktionen der harmonischen Oszillatoren.

Die beiden Gleichungen (A.3) und (A.4) werden durch

$$\mathbf{E}_l(\mathbf{r},t) = i\hat{\mathbf{x}}\sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{V\varepsilon}}\left(a_l^\dagger(t) - a_l(t)\right)\sin(k_l z) \tag{A.11}$$

$$\mathbf{H}_l(\mathbf{r},t) = i\hat{\mathbf{y}}\sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{V\mu}}\left(a_l^\dagger(t) - a_l(t)\right)\cos(k_l z) \tag{A.12}$$

gelöst[4]. Das gesamte elektromagnetische Feld[5] ergibt sich also zu:

$$\mathbf{E} = \sum_{l,\lambda} -i\hat{\mathbf{e}}_{l,\lambda}\sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{V\varepsilon}}\left(a_l^\dagger(t)e^{-i\mathbf{k}_l\mathbf{r}} - a_l(t)e^{i\mathbf{k}_l\mathbf{r}}\right) \tag{A.13}$$

$$\mathbf{H} = \sum_{l,\lambda} -i\frac{\mathbf{k}}{k}\times\hat{\mathbf{e}}_{\mathbf{k},\lambda}\sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{V\mu}}\left(a_l^\dagger(t)e^{-i\mathbf{k}_l\mathbf{r}} + a_l(t)e^{i\mathbf{k}_l\mathbf{r}}\right) \tag{A.14}$$

A.2 Parametrische Prozesse

Da parametrische Prozesse gewöhnlich mit hohen Pumpintensitäten ablaufen, wird hier das elektrische „Pump"–Feld klassisch betrachtet. Es kann als

$$E_3(\mathbf{r},t) = A_3E_3(\mathbf{r})\cos(\omega_3 t)$$

geschrieben werden[6], wobei hier

$$\int_V {E_i}^2(\mathbf{r})\mathrm{d}v = 1$$

mit $i = 1\ldots3$ gelten soll. Derjenige Teil des Hamilton–Operators, der die Nichtlieaarität (bis zur Ordnung χ^2) beschreibt, ist nach (1.30), (A.1) und (A.2) durch

$$\int_V U\mathrm{d}v = \mathcal{H}' = \frac{d_{eff}A_3\hbar\sqrt{\omega_1\omega_2}}{3\sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}}\int_V E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_3(\mathbf{r})\,\mathrm{d}v\,\cos(\omega_3 t)(a_1^\dagger - a_1)(a_2^\dagger - a_2) \tag{A.15}$$

gegeben. Mit

$$s := \frac{d_{eff}A_3\hbar\sqrt{\omega_1\omega_2}}{6\sqrt{\varepsilon_1\varepsilon_2}}\int_V E_1(\mathbf{r})E_2(\mathbf{r})E_3(\mathbf{r})\,\mathrm{d}v$$

gilt also für den Gesamt–Hamiltonoperator:

$$\mathcal{H} = \sum_{l=1,2}\hbar\omega_l\left(a_l^\dagger a_l + \frac{1}{2}\right) + 2s\hbar\cos(\omega_3 t)(a_1^\dagger - a_1)(a_2^\dagger - a_2) \tag{A.16}$$

Der erste Summand auf der rechten Seite ist der ungestörte Hamiltonoperator, der zweite Summand der Wechselwirkungsanteil. Betrachtet man nun die Leiteroperato-

[4] Die Vektoren $\hat{\mathbf{x}}$ und $\hat{\mathbf{y}}$ sind hierbei Einheitsvektoren in x- bzw. y–Richtung, wobei die Propagation des betrachteten Feldes, nach Fußnote 2, in z–Richtung abläuft.

[5] $\hat{\mathbf{e}}_{l,\lambda}$ ist hier ein Einheitsvektor, der auf der Propagationsrichtung (Richtung von $\mathbf{k}_l$) senkrecht steht. Der Index λ läuft von 1 bis 2 und gibt die beiden möglichen Polarisationsrichtungen an. Diese Schreibweise ist der, in den Gleichungen (A.11) und (A.12), verwendeten Schreibweise vorzuziehen, da die Gleichungen (A.13) und (A.14) so einen koordinatenunabhängigen Sinn erhalten.

[6] Hier wird wieder die Konvention von Fußnote 6 auf Seite 4 verwendet.

ren der elektromagnetischen Felder im Heisenbergbild[7], so ergibt sich

$$\frac{\mathrm{d}a_1^\dagger}{\mathrm{d}t} = -\frac{i}{\hbar}\left[a_1^\dagger, \sum_{l=1,2}\hbar\omega_l\left(a_l^\dagger a_l + \frac{1}{2}\right)\right] - \frac{i}{\hbar}\left[a_1^\dagger, 2s\hbar\cos(\omega_3 t)(a_1^\dagger - a_1)(a_2^\dagger - a_2)\right]$$

Mit den bekannten Vertauschungstrelationen $[a_l, a_m] = 0$, $[a_l^\dagger, a_m^\dagger] = 0$ und $[a_l, a_m^\dagger] = \delta_{l,m}$ ergibt sich hieraus:

$$\frac{\mathrm{d}a_1^\dagger}{\mathrm{d}t} = i\omega_1 a_1^\dagger - \frac{is}{2}\left(e^{i\omega_3 t} + e^{-i\omega_3 t}\right)(a_2^\dagger - a_2) \tag{A.17}$$

Im Grenzfall $s \longrightarrow 0$ (keine nichtlineare Kopplung) wird die Gleichung (A.17) bzw. die entsprechende Gleichung für a_2 durch

$$a_1^\dagger = a_1^\dagger(0)e^{i\omega_1 t} \tag{A.18}$$
$$a_2 = a_2(0)e^{-i\omega_2 t} \tag{A.19}$$

gelöst. Unter der Voraussetzung, daß $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ gilt, ist also der einzige Term, der mit der Frequenz ω_1 oszilliert der Term $e^{i\omega_3 t}a_2(t)$. Vernachlässigt man alle Terme, die nicht mit ω_1 oszillieren (diese oszillieren mit $\omega_2 + \omega_3$ und mitteln sich so nach einigen Perioden heraus[8]). und führt man für a_2 eine analoge Betrachtung durch, so ergibt sich:

$$\frac{\mathrm{d}a_1^\dagger}{\mathrm{d}t} = i\omega_1 a_1^\dagger + isa_2 e^{i\omega_3 t} \tag{A.20}$$
$$\frac{\mathrm{d}a_2}{\mathrm{d}t} = -i\omega_2 a_2 - isa_1^\dagger e^{-i\omega_3 t} \tag{A.21}$$

Dieses Differentialgleichungssystem wird durch

$$a_1^\dagger(t) = \left(a_1^\dagger(0)\cosh(st) + ia_2(0)\sinh(st)\right)e^{i\omega_1 t} \tag{A.22}$$
$$a_2(t) = \left(a_2(0)\cosh(st) - ia_1^\dagger(0)\sinh(st)\right)e^{-i\omega_2 t} \tag{A.23}$$

gelöst.

Die Besetzungszahloperatoren $\hat{n}_1(t) := a_1^\dagger(t)a_1(t)$ und $\hat{n}_2(t) := a_2^\dagger(t)a_2(t)$ bekommt man, indem man die Gleigungen (A.22) und (A.23) mit ihrem hermitesch Konjugierte multipliziert und die Relation $[a_l(t), a_m^\dagger(t)] = \delta_{l,m}$ benutzt:

$$\begin{aligned}\hat{n}_1(t) &= a_1^\dagger(0)a_1(0)\cosh^2(st) + [1 + a_2^\dagger(0)a_2(0)]\sinh^2(st) \\ &\quad -\frac{i}{2}\sinh(2st)[a_1^\dagger(0)a_2^\dagger(0) - a_2(0)a_1(0)]\end{aligned} \tag{A.24}$$
$$\begin{aligned}\hat{n}_2(t) &= a_2^\dagger(0)a_2(0)\cosh^2(st) + [1 + a_1^\dagger(0)a_1(0)]\sinh^2(st) \\ &\quad +\frac{i}{2}\sinh(2st)[a_1^\dagger(0)a_2^\dagger(0) - a_2(0)a_1(0)]\end{aligned} \tag{A.25}$$

[7] Im Heisenbergbild gilt:

$$\frac{\mathrm{d}A}{\mathrm{d}t} = -\frac{i}{\hbar}[A, \mathcal{H}]$$

[8] Setzt man die Gleichungen (A.18) und (A.19) in (A.17) ein, so erhält man

$$\frac{\mathrm{d}a_1^\dagger}{\mathrm{d}t} = \left(i\omega a_1^\dagger + \frac{is}{2}a_2\right)e^{i\omega_1 t} - \frac{is}{2}a_2^\dagger e^{-i\omega_1 t} - \frac{is}{2}\left[a_2^\dagger e^{i(\omega_2+\omega_3)t} - a_2 e^{-i(\omega_2+\omega_3)t}\right]$$

Nach einigen Perioden werden durch den Term in den eckigen Klammern also genauso viele Photonen der Frequenz $\omega_2 + \omega_3$ erzeugt, wie vernichtet. Dieser Term mittelt sich also heraus.

Die Erwartungswerte der Besetungszahloperatoren ergeben sich im Heisenbergbild wie folgt[9]:

$$\langle \hat{n}_l(t) \rangle = \langle \psi(0) | \hat{n}_l(t) | \psi(0) \rangle$$

Mit

$$\psi(0) = |n_{10}, n_{20}\rangle = |n_{10}\rangle |n_{20}\rangle$$

und

$$\begin{aligned} a_l^\dagger |n_{l0}\rangle &= (n_{l0}+1)^{1/2} |n_{l0}+1\rangle \\ a_l |n_{l0}\rangle &= (n_{l0})^{1/2} |n_{l0}-1\rangle \\ \hat{n}_l |n_{l0}\rangle &= n_{l0} |n_{l0}\rangle \end{aligned}$$

folgt schließlich:

$$\langle \hat{n}_1(t) \rangle = n_{10} \cosh^2(st) + (1+n_{20}) \sinh^2(st) \tag{A.26}$$

$$\langle \hat{n}_2(t) \rangle = n_{20} \cosh^2(st) + (1+n_{10}) \sinh^2(st) \tag{A.27}$$

Die Einser in den Faktoren der zweiten Summanden auf den rechten Seiten der Gleichungen (A.26) und (A.27) sind auf den nichtverschwindenden Kommutator von $a_l^\dagger$ und a_l zurückzuführen. Aufgrund dieser quantenmechanischen Erscheinung wird es klar, daß es auch dann zu einer Verstärkung z.B. der ω_1–Komponente kommen kann, wenn ausschließlich Licht der Pumpfrequenz eingestrahlt wird, d.h. $n_{10} = n_{20} = 0$.

[9] Die Besetzungszahl n_{10} ist die Anzahl der Quanten mit ω_1 zur Zeit $t = 0$.

Anhang B

Ausbreitung von Lichtbündeln

Hier soll die Ausbreitung von Lichtbündeln untersucht werden, deren Intensität einen gaußförmigen Verlauf (siehe Abb. 3.1) aufweist.

B.1 Wellengleichung

Zur Lösung des Problems betrachten wir zunächst wieder die Maxwellschen Gleichungen:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mu_0 \left(\sigma(r)\mathbf{E} + \varepsilon_0 \frac{\partial}{\partial t} \varepsilon(r)\mathbf{E} \right) \tag{B.1}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \mu \mathbf{H} \tag{B.2}$$

$$\nabla(\varepsilon(r)\mathbf{E}) = 0 \tag{B.3}$$

Bildet man die Rotation von Gleichung (B.2) und setzt dies in (B.1) ein, so erhält man

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{\partial}{\partial t}(\sigma(r)\mathbf{E}) - \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2}(\varepsilon(r)\mathbf{E}) = -\nabla \left(\frac{1}{\varepsilon(r)} (\nabla \varepsilon(r)) \mathbf{E} \right)$$

Ist die Änderung von $\varepsilon(r)$ über die Größenordnung einer Wellenlänge hin klein, so kann man die rechte Seite der obigen Gleichung vernachlässigen. Wenn das elektrische Feld über $\mathbf{E}(x, y, z, t) = \mathbf{E}(x, y, z, 0)e^{i\omega t}$ von der Zeit abhängt, ergibt sich für die Wellengleichung:

$$\nabla^2 \mathbf{E} + k^2 \mathbf{E} = 0 \tag{B.4}$$

Hierbei ist k durch $k^2 = \omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon(r) \left(1 - i \frac{\sigma(r)}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon(r)} \right)$ gegeben.

Im Folgenden soll k von $\mathbf{r}$ über $k^2(\mathbf{r}) = k^2 - k k_2 r^2$ mit $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ abhängen. Das Feld breite sich in z–Richtung aus. k ist hierbei durch

$$k^2 = k^2(0) = \omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon(0) \left(1 - i \frac{\sigma(0)}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon(0)} \right)$$

gegeben, k_2 soll eine Konstante sein. Hier ist es sinnvoll zu Zylinderkoordinaten überzugehen. Es gilt dann:

$$\nabla^2 = \nabla_t^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$$

Hier ist eine azimutale Abhängigkeit der Feldamplitude explizit ausgeschlossen worden. Dies kann i.a. zwar nicht angenommen werden, aber es ist in Bezug auf gaußsche Lichtbündel eine gute Näherung. Nimmt man an, daß das Feld aus einer fast ebenen Welle besteht, die sich in z–Richtung ausbreitet,so kann man schreiben:

$$E = \psi(x, y, z)e^{-ikz}$$

Setzt man dies nun in die gefundene Wellengleichung (B.4) ein, so ergibt sich

$$\nabla_t^2\psi - 2ik\frac{\partial}{\partial z}\psi - kk_2r^2\psi = 0 \tag{B.5}$$

Dabei wurde angenommen, daß $k\frac{\partial}{\partial z}\psi \gg \frac{\partial^2}{\partial z^2}\psi$ und $k^2\psi \gg \frac{\partial^2}{\partial z^2}\psi$ gilt.

Betrachtet man nun die Wellengleichung sowohl im Limes $r \to 0$ als auch im Limes $r \to \infty$, so liegt folgender Ansatz für ψ im Hinblick auf gaußsche Lichtbündel auf der Hand.

$$\psi(r, z) = e^{-i(P(z)+\frac{1}{2}Q(z)r^2)}$$

Wird dieses Ergebnis in die Gleichung (B.5) eingesetzt, erhält man nach einem Koeffizientenvergleich in r:

$$Q^2 + kQ' + kk_2 = 0 \tag{B.6}$$

$$P' - \frac{iQ}{k} = 0 \tag{B.7}$$

Die Wellengleichung (B.4) ist somit auf die Gleichungen (B.6) und (B.7) zurückgeführt.

B.2 Gaußsches Lichtbündel

Liegt ein homogenes Medium vor, so kann $k_2 = 0$ gesetzt werden. Es ergibt sich somit für die Gleichung (B.6):

$$Q^2 + kQ' = 0 \tag{B.8}$$

Definiert man hier die Funktion $s(z)$ durch $Q(z) = k\frac{s'(z)}{s(z)}$, so erhält man aus Gleichung (B.8) $s''(z) = 0$. Somit ist Q durch

$$Q(z) = k\frac{a}{az + b} \tag{B.9}$$

mit den Konstanten a und b gegeben. Im Folgenden ist es bequemer, den Parameter q zu benutzen:

$$q(z) := \frac{k}{Q(z)} = \frac{2\pi n}{\lambda Q(z)}$$

Damit kann man folgende Form für die Gleichung (B.9) angeben:

$$q(z) = z + q_0 \tag{B.10}$$

Aus der Gleichung (B.7) ergibt sich schließlich[1]:

$$P(z) = -i\ln\left(1 + \frac{z}{q_0}\right) \tag{B.11}$$

[1] Die Integrationskonstante wurde hier gleich Null gesetzt, da eine nichtverschwindende Konstante nur einen Phasenfaktor beitragen würde. Da der Zeitursprung aber beliebig gewählt werden kann, kann die Phase o.B.d.A. gleich Null gesetzt werden.

Insgesamt erhält man also für die Funktion ψ:

$$\psi(z) = \exp\left\{-i\left(-i\ln\left(1+\frac{z}{q_0}\right)+\frac{k}{2(q_0+z)}r^2\right)\right\} \tag{B.12}$$

Für die zweite Integrationskonstante q_0 wird angenommen, daß sie rein imaginär ist. Man kann sie somit durch die Konstante[2] w_0, mit $\lambda = \frac{2\pi n}{k}$ ausdrücken:

$$q_0 = i\frac{\pi w_0^2 n}{\lambda}$$

Definiert man im Folgenden die Parameter

$$\begin{aligned} w^2(z) &= w_0^2\left(1+\left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2 n}\right)^2\right) = w_0^2\left(1+\frac{z^2}{z_0^2}\right) \\ R &= z\left(1+\left(\frac{\pi w_0^2 n}{\lambda z}\right)^2\right) = z\left(1+\frac{z_0^2}{z^2}\right) \\ \eta(z) &= \tan^{-1}\left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2 n}\right) = \tan^{-1}(\frac{z}{z_0}) \\ z_0 &= \frac{\pi w_0^2 n}{\lambda} \end{aligned}$$

und berücksichtigt man, daß $\ln(a+ib) = \ln\sqrt{a^2+b^2} + i\tan^{-1}(b/a)$ gilt, so folgt schließlich für das Feld:

$$E(x,y,z) = E_0\frac{w_o}{w(z)}\exp\left\{-i(kz-\eta(z))-i\frac{kr^2}{2q(z)}\right\} \tag{B.13}$$

$$= E_0\frac{w_o}{w(z)}\exp\left\{-i(kz-\eta(z))-r^2\left(\frac{1}{w^2(z)}+\frac{ik}{2R(z)}\right)\right\} \tag{B.14}$$

Der Parameter $w(z)$ kann als derjenige Abstand zur Symmetrieachse angesehen werden, bei dem die Feldamplitude radial um den Faktor e^{-1}, im Vergleich zur Feldamplitude an der Symmetriachse, abfällt. Dieser Parameter gibt also die Lichtbündelgröße bei einem gegebenen z an. Der Parameter w_0 ist also die minimale Lichtbündelgröße. Der Radius der Wellenfront ist durch den Parameter $R(z)$ gegeben. Ein Gaußsches Lichtbündel ist also durch die Parameter w_0 und R gegeben. Der Öffnungswinkel des Lichtbündels ist durch $\theta \approx \frac{\lambda}{\pi w_0 n}$ für kleine θ festgelegt.

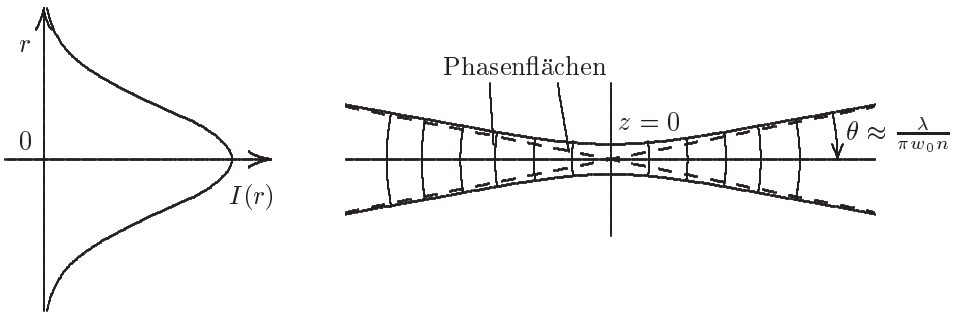


Abbildung B.1: Gaußsches Lichtbündel: Die Begrenzungslinien ($r^2 = w^2(z)$) des Lichtbündels sind durchgezogen gezeichnet.

[2] w_0 hat die Dimension einer Länge (Bündelradius)

Index

Abfrageimpuls, 50
anharmonische Rückstellkraft, 7
anharmonischer Potentialterm, 8
Anwendungen, 16
Arbeit
    vom Feld an der Polarisation verrichtete, 6
Autokorrelation, 16

BANANa, 14
Bewegungsgeichung von Elektronen im anharmonischen Potential, 7
Bragg–Beziehung, 39
Brillouinstreuung, 39
    Antistokeslinie, 40
    spontane, 39
    stimulierte, 51
      Generator, 53
      Verstärker, 53
    stimulierte thermische, 51
    Stokeslinie, 40
    zeitaufgelöste, 54

CARS, 49

dünne thermische Linse, 26
d_{eff}, 5
dicke thermische Linse, 26
dielektrische Polarisation, 1, 6
Differenzfrequenzerzeugung, 9
Dispersion
    anomale, 11
    normale, 11
Drei–Photonen–Wechselwirkung, 3
Drei–Wellen–Wechselwirkung, 3
drei–Wellen–Wechselwirkung, 5

elektronischer Ramaneffekt, 41
Elektrostriktion, 51
elektrostriktiver Kopplungskoeffizient, 51
Energieerhaltungssatz, 4
ENP, 19
equivalent noise input (ENP), 19
Erhaltung des Photonenflusses, 6

Frequenzmodulation, 33
fs-Spektroskopie, 16

gaußsches Lichtbündel, 64

idler, 18
Impulsdauermessung, 16
Impulserhaltungssatz, 4
Impulskompression, 34
intensity delimiter, 32
Inversionssymmetrie, 4
ionische Resonanzen, 6

Kaliumdideuteriumphosphat, 14
Kaliumdihydrogenphosphat (KDP), 5, 14
katastrophale Selbstfokussierung, 32
KDP, 5, 14
Kerr lens modelocking, 32
Kleinmannsche Beziehung, 6, 7
Kleinsignaltheorie, 52
kohärente Ramanstreuung, 48
Kompression von Impulsen, 34
Korrelationsfunktion, 16
Korrelationsverfahren, 16

Landauniveaus, 41
large scale self focussing, 28
Leistungsbegrenzung, 32
l_{koh}, 10

Manley–Rowe Beziehung, 5, 6
Maximum der nichtlinearen Kopplung, 12
Maxwellsche Gleichungen, 1
moving foci, 31

nichtlineare Polarisation, 1
nichtlineare Wellengleichung
    bei Phasenanpassung, 13
    stimulierte Ramanstreuung, 44
    zweite Harmonische, 9
nichtlinearer Brechungsindex, 25
nichtlinearer optischer Tensor, 4
    effektive Komponente (d_{eff}), 5
nichtlinearer Quellterm, 2

OPO, 19, 20
optisch anisotrope Kristalle, 4
optisch parametrischer Oszillator, *siehe* OPO, 20
optische Gleichrichtung, 18
optische Verschlüsse, 18
optischer Bildwandler, 18
optischer Schalter, 20

parametric light gate, 18
parametrische Verstärkung, 18
  Anfangsbedingungen, 19
  stimulierte, 18
parametrischer Oszillator, 18, 20
  einfach resonant, 22
  zweifach resonant, 22
parametrischer Verstärker, 19
parametrisches Mischen, 17
  Intensität, 18
Phasenanpassung, 4
  Bedingung, 12
  erster Art, 11, 12
  in doppelbrechenden Kristallen, 11
  zweiter Art, 12
Phasenanpassungswinkel
  tolerierbarer, 13
Phasenrelaxationszeit, 45
Plasmaschalter, 33
Polarisation
  außerordentliche, 11
  ordentliche, 11
positive chirp, 34
pump and probe, 50

quantenmechanische Beschreibung parametrischer Prozesse, 59
Quantisierung des elektromagnetischen Strahlungsfeldes, 57

Raman Maser, 43
Raman–gain–Spectroscopy, 48
Raman–loss–Spectroscopy, 48
Ramaneffekt
  elektronischer, 41
Ramanstreuung, 40
  an Molekülschwingungen, 40
  an optischen Phononen, 40
  Antistokeslinie, 40
  kohärente, 48
  spontane, 40
  stimulierte, 42
    Generatoranordnung, 42
    Rückkopplungsanordnung, 43
    theoretische Beschreibung, 44
    Vertärkerranordnung, 43
  Stokeslinie, 40
  transiente, 50
Rayleigh–wing Streuung, 38
Rayleighstreuung, 37
  Linienbreite, 37

sampling Verfahren, 50
schwache Selbstfokussierung, 32
Selbstfokussierung, 25, 27
  Anwendung, 32
  katastrophale, 32
  kritische Leistung, 30
    Abschätzung, 30
  schwache, 32
  theoretische Beschreibung, 28
  von Laserpulsen, 31
Selbstphasenmodulation, 25, 33
self mode locking, 32
self trapping, 31
slowly varying amplitude approximation (SVAA), 3
small scale self focussing, 28
Solitonen, 35
spektrale Bandbreite, 15
Spin–Flip–Ramanstruung, 42
spontane parametrische Fluoreszenz, 20
spontane Streuprozesse, 37
stimulierte Brillouin–Streuung (SBS), 51
stimulierte Brillouinstreuung
  Generator, 53
  Verstärker, 53
stimulierte Ramanstreuung, 42
  Generatoranordnung, 42
  Rückkopplungsanordnung, 43
  theoretische Beschreibung, 44
  Verstäkeranordnung, 43
stimulierte thermische Brillouinstreuung, 51
stimulierter Raman–Resonator, 43
Streuprozesse, 37
  spontane, 37
Summenfrequenzerzeugung, 9
Suszeptibilität
  dritter Ordnung, 25
    durch optischen Kerreffekt, 26
    elektronischer Beitrag, 27
    elektrostriktiver Mechanismus, 26
    in ramanaktiven Medien, 45

Ramanaktive Medien, 47
thermischer Mechanismus, 25
höhere Ordnung, 1
lineare, 1, 7
zweiter Ordnung, 4, 8
SVAA, 3

tolerierbare Phase, 10
transiente Ramanstreuung, 50

Ultrakurzzeitspektroskopie, 16
Unschärferelation, 4

vier–Photonen–Wechselwirkung, 5

walk off, 15
walk off angle, 15
Wechselwirkungslänge
charakteristische, 13
Wellengleichung
lineare, 2
nichtlineare, 2, 5
in SVAA, 3
Lösung durch ebene Wellen, 2

zweite Harmonische
2–Photonenabsorption, 14
an Grenzflächen, 17
im Laserresonator, 14
in Gasen, 16
Intensität, 10, 13
nichtlineare Wellengleichung, 9
optimales Fokussieren, 15
sekundäre Resonatoren, 14
Wirkungsgrad, 13