

Kapitel 8

Nichtlineare Optik

Bei unseren bisherigen Betrachtungen optischer Phänomene haben wir immer angenommen, dass das betrachtete Medium durch einen frequenzabhängigen Brechungsindex $n(\omega)$ beschrieben werden kann. Dies war möglich, weil wir davon ausgehen konnten, dass die im Medium erzeugte Polarisation dem angelegten Feld proportional ist, das heißt, es galt¹

$$\mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 \tilde{\chi}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \quad \text{mit} \quad \tilde{\chi} = (\tilde{\epsilon} - 1) .$$

Hierbei war die Suszeptibilität $\tilde{\chi}$ ein Tensor, d.h. eine (3×3) Matrix mit komplexen Koeffizienten, der jedem \mathbf{E} eindeutig ein \mathbf{P} zuordnet. Die dielektrische Verschiebung ergab sich zu

$$\begin{aligned} \mathbf{D}(\omega) &= \epsilon_0 \mathbf{E}(\omega) + \mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 \mathbf{E}(\omega) + \epsilon_0 \tilde{\chi}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \\ &= \epsilon_0 [1 + \tilde{\chi}(\omega)] \mathbf{E}(\omega) = \epsilon_0 \tilde{\epsilon}(\omega) \mathbf{E}(\omega) . \end{aligned} \tag{8.0.1}$$

Hierbei ist $\tilde{\epsilon}(\omega)$ der Dielektrizitätstensor.

Die Suszeptibilität war nur von der Frequenz, nicht aber von der Amplitude des elektrischen Feldes abhängig. Dieser lineare Zusammenhang wurde in Kapitel 3 diskutiert. Er impliziert automatisch, dass sich die Frequenz des Lichts beim Durchgang durch Materie nicht ändert. Diese Tatsache wurde bei allen bisherigen Diskussionen von der geometrischen Optik bis zur Beugung ausgenutzt².

Wir wollen uns in diesem Kapitel nun Effekten zuwenden, die darauf zurückzuführen sind, dass der einfache lineare Zusammenhang zwischen Polarisierbarkeit und elektrischem Feld nicht mehr gilt.

¹Vergleiche hierzu Kapitel 3, insbesondere Abschnitt 3.3.

²Nun wissen wir schon aus dem täglichen Leben, dass dies nicht immer der Fall ist. So wandeln z.B. die Leuchtstoffe in Leuchtstoffröhren, die durch die Gasentladung entstehende, eingeschränkte Spektralverteilung in weißes oder farbiges Licht um. Ohne diesen Effekt wäre Leuchtstoffreklame nicht denkbar. Man spricht von Fluoreszenz bzw. Phosphoreszenz. Die dabei ablaufenden Vorgänge unterscheiden sich aber grundsätzlich von den in diesem Kapitel diskutierten Phänomenen und sind Thema der Atomphysik.

8.1 Nichtlineare Polarisierbarkeit

Der lineare Zusammenhang zwischen elektrischem Feld und der davon in einem Medium induzierten Polarisation gilt immer für kleine Feldstärken, da hier immer nichtlineare Effekte, die proportional zu höheren Potenzen der Feldstärke sind, vernachlässigt werden können. Für hinreichend kleine Felder kann man dies als den ersten Term einer Taylor-Entwicklung von $P(E)$ ansehen:

$$\mathbf{P} = P(0) + E \left(\frac{dP}{dE} \right)_0 + \frac{1}{2} E^2 \left(\frac{d^2P}{dE^2} \right)_0 + \frac{1}{6} E^3 \left(\frac{d^3P}{dE^3} \right)_0 + \dots \quad (8.1.1)$$

Wir wollen uns in diesem Kapitel nun den Effekten zuwenden, die man beobachten kann, wenn die höheren Ordnungen der Taylor-Entwicklung von Bedeutung werden. Für ein Material ohne statisches Dipolmoment ist $P(0) = 0$ und wir können (8.1.1) schreiben als

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \epsilon_0 [\tilde{\chi}_1 \mathbf{E} + (\tilde{\chi}_2 \mathbf{E}) \mathbf{E} + ((\tilde{\chi}_3 \mathbf{E}) \mathbf{E}) \mathbf{E} + \dots] \\ &= \mathbf{P}_{\text{lin}} + \epsilon_0 [(\tilde{\chi}_2 \mathbf{E}) \mathbf{E} + ((\tilde{\chi}_3 \mathbf{E}) \mathbf{E}) \mathbf{E} + \dots] \\ &= \mathbf{P}_{\text{lin}} + \mathbf{P}_{\text{nl}} \end{aligned} \quad (8.1.2)$$

Hierbei ist $\tilde{\chi}_1$ die *lineare Polarisierbarkeit* oder Suszeptibilität erster Ordnung und $\tilde{\chi}_n$ mit $n \geq 2$ die *nicht-lineare Polarisierbarkeit* oder Suszeptibilität n -ter Ordnung. Im Allgemeinen sind dabei die verschiedenen Suszeptibilitätstensoren komplex, da sie die Absorption mit beinhalten müssen.³ Für Festkörper sind die Größenordnungen der Suszeptibilitäten⁴ $|\tilde{\chi}_1| \sim 1$, $|\tilde{\chi}_2| \sim 10^{-10} \text{ cm/V}$ und $|\tilde{\chi}_3| \sim 10^{-17} \text{ cm}^2/\text{V}^2$, das heißt, die höheren Terme sind sehr klein, so dass ihr Beitrag erst bei sehr hohen Feldstärken wichtig wird. Bei einer korrekten Behandlung des Vektorcharakters von \mathbf{P} müssen die Suszeptibilitäten $\tilde{\chi}_n$ als Tensoren der Ordnung $(n+1)$ geschrieben werden. Für die qualitative Behandlung in diesem Kapitel wollen wir dies aber nicht ausführen. Wir werden im Folgenden die Suszeptibilität meist als Skalar betrachten.

Die explizite Behandlung der Ausbreitung von Licht in einem nichtlinearen Medium erfordert die Benutzung der Maxwell-Gleichungen. Dazu setzt man $\mathbf{D} = \mathbf{P} + \epsilon_0 \mathbf{E}$ in die Maxwell'sche Wellengleichung (2.3.6) ein und erhält für den eindimensionalen Fall die *nichtlineare Wellengleichung*

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial x^2} - (\chi_1 + 1) \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{\text{nl}}}{\partial t^2}. \quad (8.1.3)$$

Dabei ersetzt $(\chi_1 + 1) = n_1^2$ das Quadrat des Brechungsindex n_1 bei kleinen Lichtintensitäten. In der Wellengleichung tritt nun aber auf der rechten Seite ein zusätzlicher Term auf, der zu nichtlinearen Effekten führt, die in der normalen, linearen Optik nicht auftreten.

³Man beachte, dass die Ordnung der Tensoren mit wachsendem n zunimmt.

⁴siehe z.B. L. Bergmann, C. Schäfer, *Lehrbuch der Experimentalphysik, Band III Optik*, Walter de Gruyter, Berlin (1978). Natürlich kann man keine Größe für einen Tensor angeben. Dazu bedarf es eines Maßes, d.h. einer Abbildung vom Raum der Tensoren in die reellen Zahlen. Dies liefert z.B. die Determinante (verallgemeinertes Volumen) oder die Spur des Tensors. Der maximale Betrag der Elemente ist eigentlich nicht geeignet, da er von der Darstellung, d.h. dem verwendeten Koordinatensystem abhängt. Für unsere einfache Abschätzung kommt aber auch er in Betracht.

8.2 Effekte zweiter Ordnung

8.2.1 Frequenzverdoppelung und optische Gleichrichtung

Wir betrachten den Fall einer monochromatischen Welle $E = E_0 \cos \omega t$ im verlustfreien nichtlinearen Medium, wobei zunächst nur der Term zweiter Ordnung berücksichtigt werden soll. Dann ist

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 [\chi_1 \mathbf{E}_0 \cos \omega t + (\chi_2 \mathbf{E}_0 \cos \omega t) \mathbf{E}_0 \cos \omega t] . \quad (8.2.1)$$

Etwas Trigonometrie ergibt⁵

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi_1 \mathbf{E}_0 \cos \omega t + \frac{\epsilon_0}{2} [(\chi_2 \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 + (\chi_2 \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 \cos 2\omega t] . \quad (8.2.2)$$

Die Polarisation enthält also neben dem bekannten linearen Anteil

$$\mathbf{P}_1 = \epsilon_0 \chi_1 \mathbf{E}_0 \cos \omega t , \quad (8.2.3)$$

der mit der gleichen Frequenz ω wie die einfallende Welle schwingt, einen konstanten Term. Man spricht von *optischer Gleichrichtung*.

$$\mathbf{P}_0 = \frac{\epsilon_0}{2} (\chi_2 \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 \quad (8.2.4)$$

sowie einen Term

$$\mathbf{P}_2 = \frac{\epsilon_0}{2} (\chi_2 \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 \cos 2\omega t , \quad (8.2.5)$$

der mit der doppelten Frequenz variiert. Die schwingenden Dipole werden wegen \mathbf{P}_2 Licht mit der doppelten Frequenz abstrahlen (siehe Abb. 8.1a), d.h. man erhält eine Frequenzverdoppelung. Diesen Vorgang nennt man auch *Erzeugung der zweiten Harmonischen*. Im Photonenbild ausgedrückt bedeutet dies, dass zwei Photonen der Frequenz ω zu einem Photon der Frequenz 2ω kombinieren, weswegen dieser Prozess auch in die Kategorie des *Drei-Wellen-Mischens* fällt.

Es sei hier noch darauf hingewiesen, dass Frequenzverdoppelung in verlustfreien Kristallen mit Inversionssymmetrie nicht möglich ist. Ist $P(E)$ für ein bestimmtes Medium eine ungerade Funktion – das bedeutet, bei einer Richtungsumkehr des elektrischen Feldes kehrt sich gleichzeitig die Richtung von

⁵Man benutzt $\cos \alpha \cos \beta = 1/2[\cos(\alpha - \beta) + \cos(\alpha + \beta)]$.

\mathbf{P} um $-$, so verschwinden die geraden Potenzen von E in (8.1.2). Dies ist leicht einzusehen, wenn man (8.1.2) invertiert und dabei die Invarianz der Suszeptibilitätstensoren beachtet:

$$-\mathbf{P} = \varepsilon_0 (-\tilde{\chi}_1 \mathbf{E} + (\tilde{\chi}_2 \mathbf{E}) \mathbf{E} - ((\tilde{\chi}_3 \mathbf{E}) \mathbf{E}) \mathbf{E} + \dots) . \quad (8.2.6)$$

Gleichzeitig ist aber natürlich

$$-\mathbf{P} = \varepsilon_0 (-\tilde{\chi}_1 \mathbf{E} - (\tilde{\chi}_2 \mathbf{E}) \mathbf{E} - ((\tilde{\chi}_3 \mathbf{E}) \mathbf{E}) \mathbf{E} - \dots) \quad (8.2.7)$$

und damit

$$(\tilde{\chi}_2 \mathbf{E}) \mathbf{E} = 0 . \quad (8.2.8)$$

Effekte zweiter Ordnung treten also insbesondere auch nicht in amorphen Strukturen (Gläsern) auf.

8.2.2 Frequenzmischung

Werden zwei Felder $\mathbf{E}_1 = E_{01} \cos \omega_1 t$ und $\mathbf{E}_2 = E_{02} \cos \omega_2 t$ der Frequenz ω_1 und ω_2 eingestrahlt ($\omega_1 > \omega_2$), so treten neben den Oberwellen der Frequenzen ω_1 und ω_2 auch die Summen- und Differenzterme $\omega_{3,4} = \omega_1 \pm \omega_2$ auf (siehe Abb. 8.1b). Dies sieht man sofort durch die Betrachtung des Terms 2. Ordnung in (8.2.2), der

$$P = \varepsilon_0 \chi_2 (E_{01}^2 \cos^2 \omega_1 t + E_{02}^2 \cos^2 \omega_2 t + 2E_{01}E_{02} \cos \omega_1 t \cos \omega_2 t) \quad (8.2.9)$$

ergibt. Unter Benutzung von $\cos \alpha \cos \beta = 1/2[\cos(\alpha - \beta) + \cos(\alpha + \beta)]$ erhält man daraus

$$P = \varepsilon_0 \chi_2 \{ E_{01}^2 \cos^2 \omega_1 t + E_{02}^2 \cos^2 \omega_2 t + E_{01}E_{02} \cos[(\omega_1 - \omega_2)t] + E_{01}E_{02} \cos[(\omega_1 + \omega_2)t] \} , \quad (8.2.10)$$

das heißt, Beiträge bei der Summen- und Differenzfrequenz.

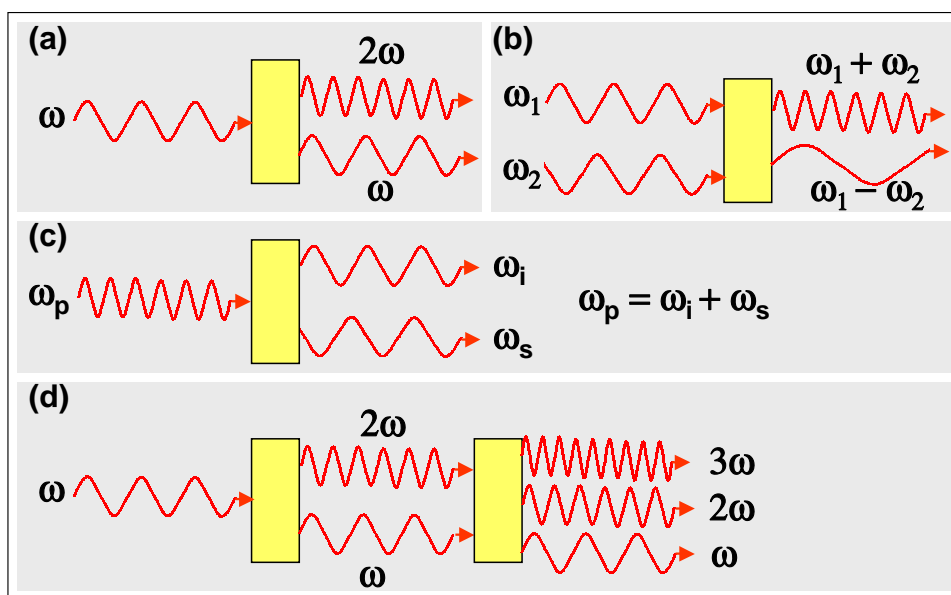


Abbildung 8.1: (a) Frequenzverdoppelung, (b) Frequenzmischen, (c) parametrischer Prozess und (d) technisch eingesetzte Frequenzverdreifung.

8.2.3 Vertiefungsthema: Parametrischer Prozess

Während bei der Frequenzmischung aus zwei Photonen durch Summen- und Differenzbildung ein drittes erzeugt wird, kann auch der umgekehrte Prozess beobachtet werden. In diesem optisch parametrischen Prozess (siehe Abb. 8.1c) zerfällt ein so genanntes Pump-Photon⁶ in zwei Photonen, ein so genanntes Signal- und ein Idler-Photon, wobei für die Frequenzen $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ gilt (Energieerhaltung). Der optisch parametrische Prozess wird dann eingesetzt, wenn aus intensiven Lichtpulsen abstimmbares Licht erzeugt werden soll. Die Frequenz von Signal- und Idler-Photon lässt sich dabei durch die Wahl der Phasenanpassung variieren, die im nächsten Abschnitt beschrieben wird.

Optisch-parametrischer Oszillator

Schickt man in einen nichtlinearen Kristall eine intensive Welle mit der Frequenz ω_p (Pumplicht) auf eine schwache Signalwelle mit einer niedrigeren Frequenz ω_s , so kann diese verstärkt werden. Die Pumpwelle wird dabei in eine Signalwelle und eine Differenzwelle (Idler-Licht) mit der Frequenz $\omega_i = \omega_p - \omega_s$ umgewandelt. Bei diesem Verfahren handelt es sich um eine Erweiterung der bereits in den 1940er Jahren für Mikrowellen angewandten parametrischen Verstärkung auf den optischen Frequenzbereich.

Realisieren kann man einen optisch-parametrischen Verstärker z.B. dadurch, dass man mit einem nichtlinearen Kristall (z.B. LiNbO_3) eine Resonator aufbaut, der als Resonanzfrequenzen die Signal- und Idler-Frequenz besitzt. Bestrahlt man dann diesen Resonator mit intensivem Laserlicht der Frequenz ω_p , so emittiert der Resonator kohärente Strahlung mit den Frequenzen ω_s und ω_i . Durch kontinuierliche Änderung des Brechungsindex des nichtlinearen Kristalls (z.B. durch Temperaturänderung oder durch ein angelegtes elektrisches Feld) kann der Oszillator durchgestimmt werden.

⁶von engl. *idler*: Faulenzer, Faulpelz.

8.2.4 Vertiefungsthema: Phasenanpassung

Bisher haben wir nichts über die Effizienz der Frequenzverdoppelung, bzw. der Frequenzmischung gesagt. Es ist einleuchtend, dass die Effizienz dieser Effekte davon abhängen wird, ob die von den einzelnen Oszillatoren des Dielektrikums abgestrahlten Teilwellen konstruktiv interferieren. Konstruktive Interferenz wird generell in dispersiven Medien mit frequenzabhängigen Brechungsindex $n(\omega)$ nicht eintreten. Die Welle der verdoppelten Frequenz wird von der einfallenden Welle kohärent erzeugt. Eilt die Erzeugende der Erzeugten voraus ($n(\omega) < n(2\omega)$) oder hinterher ($n(\omega) > n(2\omega)$), so kommt es nicht zur vollen konstruktiven Interferenz.⁷ Einen Ausweg bieten die in Abschnitt 3.3 angesprochenen doppelbrechenden Kristalle. Für diese Materialien besteht ein Unterschied im Brechungsindex n_o und n_e von ordentlichem und außerordentlichem Strahl, welcher vom Winkel α des einfallenden Lichts zur optischen Achse abhängt. Wählt man als Erzeugende den ordentlichen Strahl und als Erzeugte den außerordentlichen Strahl (bzw. umgekehrt), so lässt sich α so einstellen, dass der Unterschied von n_o und n_e den Unterschied zwischen $n(\omega)$ und $n(2\omega)$ gerade kompensiert. Die Phasen sind dann angepasst und man kann eine Effizienz der Frequenzverdoppelung von nahezu 100% erreichen. Häufig benutzte doppelbrechende Kristalle sind z.B. Kaliumdihydrogenphosphat (KDP), Ammoniumdihydrogenphosphat (ADP), Lithiumniobat (LiNbO_3), Lithiumjodat (LiIO_3) oder β -Bariumborat (BBO).

Phasenanpassung kann man am besten dadurch verstehen, dass man die Bedingung der gleichen Geschwindigkeiten zur Erfüllung sowohl der Energie- als auch der Impulserhaltung bei der Kombination zweier Photonen zu einem einzigen benötigt. Offensichtlich ist die Energieerhaltung durch die Beziehung $\hbar 2\omega = \hbar\omega + \hbar\omega$ gewährleistet. Aus der Impulserhaltung der Photonen, die in die gleiche Richtung laufen, folgt dann $k(2\omega) = 2k(\omega)$, was gleiche Brechungsindizes für beide Frequenzen bedeutet. Dem folgenden Kapitel zur Quantenoptik vorausgreifend können wir ganz allgemein formulieren, dass die Energie und der Impuls der (durch Vermittlung des dielektrischen Mediums) wechselwirkenden Photonen erhalten bleiben muss. Frequenzerzeugung und Phasenanpassung schreiben sich dann in der kompakten Form:

$$\sum_i \hbar\omega_i^{\text{in}} = \sum_j \hbar\omega_j^{\text{out}} \quad (8.2.11)$$

$$\sum_i \mathbf{k}_i^{\text{in}} = \sum_j \mathbf{k}_j^{\text{out}} . \quad (8.2.12)$$

Die Vorteile des Quantenbilds in diesem Kontext sind evident.

⁷Die Phasengeschwindigkeit der Wellen ist durch $v_{\text{ph}}(\omega) = c/n(\omega)$ gegeben.

8.3 Effekte dritter Ordnung

In Medien mit Inversionszentrum ist der niedrigste nicht verschwindende, nichtlineare Term von 3. Ordnung. Ohne Herleitung wollen wir festhalten, dass dieser kubische Term zu einem intensitätsabhängigen Brechungsindex n führt, den man für kleine Brechungsindexänderungen vereinfacht als

$$n = n_1 + n_3 |E|^2 . \quad (8.3.1)$$

schreiben lässt. Typischerweise liegt n_3 im Bereich zwischen 10^{-14} bis 10^{-16} cm²/W. Einen ähnlichen Sachverhalt wie in (8.3.1) haben wir bereits bei der Behandlung des optischen Kerr Effekts in Abschnitt 3.4.1 kennengelernt. Die Ursachen sind in beiden Fällen sehr ähnlich. Durch das elektrische Feld werden die Dipole des Dielektrikums teilweise ausgerichtet, was zu einer Modifikation der Wechselwirkung mit der einfallenden Lichtwelle führt, d.h. der Brechungsindex wird modifiziert. Im Falle der nichtlinearen Wechselwirkung wird diese Ausrichtung durch das intensive Lichtfeld selbst erzeugt.

8.3.1 Selbstfokussierung

Wir betrachten nun einen intensiven Laserpuls, welcher räumlich begrenzt sein soll (siehe Abb. 8.2). Im Zentrum befindet sich die höchste Intensität, die dann zu den Flanken hin abnimmt. Lassen wir diesen Puls durch ein Dielektrikum laufen, so wird sich der Brechungsindex $n(\mathbf{r})$ im Zentrum aufgrund der Nichtlinearitäten vergrößern, während er sich in den Flanken kaum ändert. Damit wird im Zentrum auch der optische Weg nach Durchlaufen einer Materialdicke der Länge L um $n_3 I_0 L$ größer als in den Flanken. Dadurch werden die Phasenflächen gekrümmt. Das Medium wirkt dann wie eine Linse und fokussiert den Puls, was zur weiteren Steigerung der Intensität im Zentrum und damit des Brechungsindex führt. Diese positive Rückkopplung kann, falls der Fokus im Medium selbst liegt, letztendlich die Zerstörung des Mediums, d.h. der optischen Komponente nach sich ziehen.

Selbstfokussierung tritt bei allen Hochleistungslasersystemen auf, bei denen hohe Lichtintensitäten und lange Wege in optischen Komponenten notwendig sind. Die zerstörerische Wirkung der Selbstfokussierung lässt sich aber durch geschicktes Design und Verwendung von genügend großen Strahlquerschnitten vermeiden. Beginnende Selbstfokussierung wird auch als erwünschter optischer Schaltmechanismus eingesetzt (z.B. beim so genannten Kerr-Lense-Modelocking in Lasern zur Erzeugung von Lichtpulsen im Bereich von 10 fs).

8.3.2 Selbstphasenmodulation

In der Ultrakurzzeitspektroskopie verwendet man extrem kurze Lichtpulse (im fsec-Bereich), die gleichzeitig hohe Spitzenintensitäten aufweisen. Im nichtlinearen Medium wird dadurch der Brechungsindex an einem Ort x zeitlich variieren. In diesem Fall wirkt die Nichtlinearität des Brechungsindex über die Wellenzahl $k = 2\pi n/\lambda$ direkt auf die Phase der Lichtpulse. Nimmt man an, dass der Puls an der Stelle x im Medium mit dem Feldverlauf

$$E(x, t) = E_0(t) \cos[-\phi(x, t)]$$

und der Phase

$$\phi(x, t) = kx - \omega_0 t = -\omega_0 t + 2\pi n_1 x/\lambda_0 + 2\pi n_3 I(t)x/\lambda_0$$

beschrieben werden kann, so berechnet man die Momentanfrequenz zu

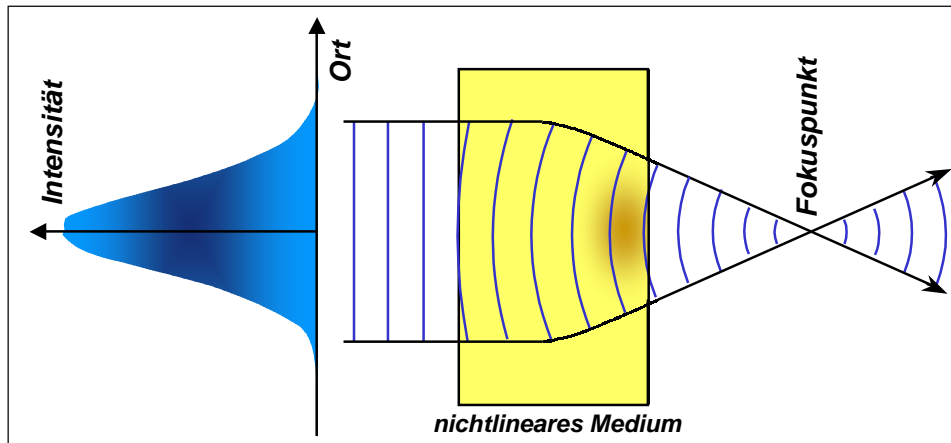


Abbildung 8.2: Selbstfokussierung eines intensiven Laserpulses. Die hohe Intensität im Zentrum des Lichtbündels führt zu einer Erhöhung des Brechungsindex.

$$\omega(t) = -\frac{\partial\phi(x,t)}{\partial t} = \omega_0 - \frac{2\pi n_3 x}{\lambda_0} \frac{\partial I(t)}{\partial t}. \quad (8.3.2)$$

Das heißt, die Frequenz des Lichtpulses wird zeitabhängig. Da die Intensität von Null auf einen Maximalwert ansteigt und dann wieder auf Null abfällt, wird zu Beginn des Pulses die Frequenz zu kleineren Werten (Rotverschiebung, $\frac{\partial I(t)}{\partial t} > 0$) und am Ende des Pulses zu höheren Werten hin verschoben (Blauverschiebung, $\frac{\partial I(t)}{\partial t} < 0$). Über die Selbstphasenmodulation wird das Spektrum des Lichtpulses verbreitert. In der Praxis kann man die Selbstphasenmodulation dazu benutzen, um aus einem kurzen Lichtpuls bei einer Frequenz ω_0 kurze Lichtpulse in einem breiten Frequenzbereich zu erzeugen. Breite Lichtpulse erhält man für große Werte von $\frac{\partial I(t)}{\partial t}$, also für kurze Pulse mit hohen Spitzenintensitäten. In der Praxis lassen sich so bei Verwendung von sichtbarem Lichtpulsen mit einer Energie von wenigen Mikrojoule und Pulsdauern von etwa 100 fs (dies entspricht einer Leistung von 10^7 Watt) ultrakurze Lichtpulse im gesamten sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich erzeugen.

8.3.3 Vierwellenmischen

Wird ein nichtlineares Medium von einem Paar kohärenter Wellen, die in verschiedenen Richtungen laufen, beleuchtet, so stellen sie ein Phasengitter innerhalb des Materials dar, das eine dritte Welle, die nicht notwendigerweise mit den beiden ersten kohärent sein muss, in eine vierte abbeugen kann. Dieser Prozess heißt *Vierwellenmischen* und wurde bereits für mehrere Materialien (z.B. BaTiO₃) gezeigt.

Der Effekt kann im Zusammenhang mit der nichtlinearen Suszeptibilität dritter Ordnung verstanden werden. Nehmen wir Terme bis zur dritten Ordnung mit, lässt sich die Polarisation als

$$P(E) = \chi_1 E + \chi_2 E^2 + \chi_3 E^3 \quad (8.3.3)$$

schreiben. Wir fügen nun ein kleines Feld e hinzu und betrachten die Polarisation, wobei wir Terme bis zur ersten Ordnung in e berücksichtigen:

$$P + \delta P = \chi_1(E + e) + \chi_2(E^2 + 2Ee) + \chi_3(E^3 + 3E^2e) \quad (8.3.4)$$

$$\delta P = e(\chi_1 + 2\chi_2E + 3\chi_3E^2) . \quad (8.3.5)$$

Ist nun e kohärent zu E , so erhält man das Verhältnis $\delta P/e$ durch Mittelung des Terms in Klammern von (8.3.5). Der Mittelwert von $E = E_0 \cos \omega t$ ist null, der von $E^2 = E_0^2 \cos^2 \omega t$ ist $E_0^2/2$. Wir erhalten damit durch die Mittelung

$$\delta P/e = \left(\chi_1 + \frac{3}{2}E_0^2\chi_3 \right) . \quad (8.3.6)$$

Der Brechungsindex, der vom Feld e gesehen wird, ergibt sich mit $n = \sqrt{\epsilon} = \sqrt{1 + \chi}$ somit zu

$$\begin{aligned} n_d &= \left(1 + \frac{\delta P}{\epsilon_0 e} \right)^{1/2} \\ &= \left[1 + \left(\chi_1 + \frac{3}{2}\chi_3 E_0^2 \right) / \epsilon_0 \right]^{1/2} \end{aligned} \quad (8.3.7)$$

und hängt vom Feld E_0 ab. Überlagern sich nun zwei kohärente Wellen mit der Zeitabhängigkeit $E_0 \cos \omega t$ im Medium, so bildet sich eine stehende Wellenstruktur mit Knoten und Bäuchen des elektrischen Feldes. Der Brechungsindex ist dann entsprechend (8.3.7) in den Knoten und Bäuchen unterschiedlich. Die Welle e sieht deshalb die stehende Wellenstruktur als ein auf den Kristall aufgeprägtes Phasengitter, das zu einer Beugung der Welle e führt.

Die Beschreibung des Vierwellenmischens mit Hilfe der Impulserhaltung ist leicht zu verstehen, wenn man annimmt, dass ein isotropes Medium vorliegt. Die primären Wellen haben die Wellenvektoren \mathbf{k}_1 und \mathbf{k}_2 , die die gleiche Länge besitzen. Ihr Interferenzmuster wird durch den Vektor $\mathbf{K} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$ dargestellt. Fällt die dritte Welle ein, so wird sie zu $\mathbf{k}_4 = \mathbf{k}_3 \pm \mathbf{K}$ abgelenkt. Hierbei wird das Vorzeichen so gewählt, dass $|\mathbf{k}_3| = |\mathbf{k}_4|$ ist (um die Energieerhaltung zu gewährleisten). Dies ist in Abb. 8.3 dargestellt.

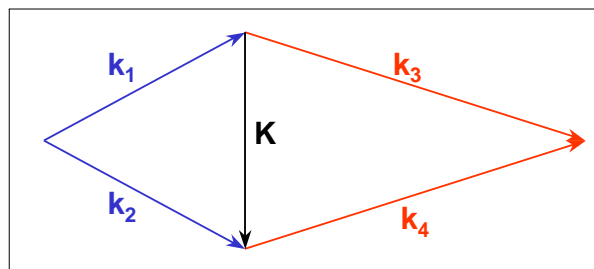


Abbildung 8.3: Vektordiagramm der Wellenvektoren für das Vierwellenmischen.

Zusammenfassung

- Ein einfacher linearer Zusammenhang zwischen dem angelegten elektrischen Feld und der in einem Medium erzeugten Polarisierung gilt nur für kleine elektrische Feldstärken.
- Für große Feldstärken müssen nichtlineare Beiträge berücksichtigt werden. Die Polarisierung

$$P = \varepsilon_0(\chi_1 E + \chi_2 E^2 + \chi_3 E^3 + \dots)$$

setzt sich aus einem linearen Beitrag $P_{\text{lin}} = \varepsilon_0 \chi_1 E$ und einem nichtlinearen Beitrag $P_{\text{nl}} = \varepsilon_0(\chi_2 E^2 + \chi_3 E^3 + \dots)$ zusammen. Hierbei ist χ_1 die lineare Polarisierbarkeit oder die Suszeptibilität erster Ordnung und χ_n ($n \geq 2$) die nichtlineare Polarisierbarkeit oder Suszeptibilität n -ter Ordnung. In allgemeinen Fall (anisotrope Medien) sind die Suszeptibilitäten Tensoren $(n+1)$ -ter Ordnung.

- Für Medien mit Inversionssymmetrie ist aus Symmetriegründen $\chi_2 = 0$.
- Wichtige Effekte zweiter Ordnung sind (i) die optische Gleichrichtung, (ii) die Frequenzverdopplung, (iii) die Frequenzmischung und (iv) parametrische Prozesse.
- Wichtige Prozesse dritter Ordnung sind (i) die Selbstfokussierung, (ii) die Selbstphasenmodulation und (iii) das Vierwellenmischen.