Karlsruher Institut für Technologie

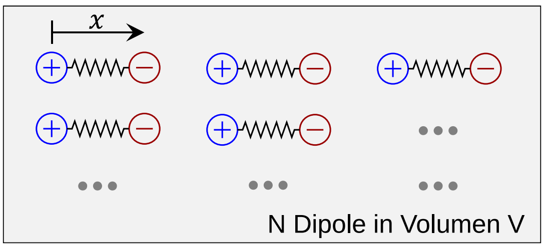
Optik – WS 18/19

6. Nichtlineare Optik

Erinnerung: Lorentz-Oszillator

Vereinfacht: Das elektrische Feld $\vec{\boldsymbol{E}}$ induziert ein elektrisches Dipolmoment $\vec{\boldsymbol{p}}$ durch Auslenkung der Elektronen (vgl. Kap. 2, Licht in Materie).

$$p = -Q \cdot x$$



Polarisation

$$P = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^{N} p_i = \frac{N}{V} \cdot p$$

Newtonsche Bewegungsgleichung

$$m\ddot{x} + (D_1 x + D_2 x^2 + D_3 x^3 + \ldots) = -Q\,E$$

mit Masse m und Kraftkonstanten D_1, D_2, D_3, etc.

Die höheren Terme werden jetzt nicht weggelassen!

Bei großen Feldern E (meist nur durch Laser erzielbar) wird x groß und $D_2 x^2$ ist im Vergleich zu $D_1 x$ nicht mehr vernachlässigbar.

Wie können die nichtlinearen Differentialgleichungen gelöst werden?

Störungsrechnung

Idee: Führe Kleinheitsparameter λ ein mit $\lambda \ll 1$:

$$\begin{aligned} E &\rightarrow \lambda \cdot E \\ x &= \lambda\, x^{(1)} + \lambda^2\, x^{(2)} + \lambda^3\, x^{(3)} + \dots \end{aligned}$$

Einsetzen und sortieren nach Potenzen von λ ergibt

$$\begin{array}{llcll} \lambda^1: & m\,\ddot{x}^{(1)} & = & -Q\,E & -D_1\,x^{(1)} \\ \lambda^2: & m\,\ddot{x}^{(2)} & = & & -D_1\,x^{(1)} \quad -D_2\,\left(x^{(2)}\right)^2 \\ \lambda^3: & \dots & = & \dots & \end{array}$$

Die lineare Ordnung λ^1 wurde in Kap. 2 diskutiert:

$$\left.\begin{array}{lll} x & \rightarrow & x^{(1)} \\ P & \rightarrow & P^{(1)} = \varepsilon_0\,\chi^{(1)}\,E \\ \chi & \rightarrow & \chi^{(1)} \end{array}\right\} \Rightarrow \boxed{\chi^{(1)} = \frac{NQ^2}{Vm\varepsilon_0}\,\frac{1}{\Omega^2-\omega^2} \quad ; \Omega = \sqrt{\frac{D_1}{m}}}$$

Linear optische Suszeptibilität

Zweite Harmonische durch nichtlineare Rückstellkraft

Für die Ordnung λ^2 wird dann

$$\ddot{x}^{(2)} + \Omega^2\,x^{(2)} = -\frac{D_2}{m}\left(x^{(1)}\right)^2$$

Aus Kap. 2 entnehmen wir

$$x^{(1)} = -\frac{V\varepsilon_0}{NQ}\,\chi^{(1)}(\omega)\,E \quad \Rightarrow \quad \ddot{x}^{(2)} + \Omega^2\,x^{(2)} = -\frac{D_2}{m}\left(\frac{V\varepsilon_0}{NQ}\,\chi^{(1)}(\omega)\,E\right)^2$$

und mit

$$E = E_0\,\cos(\omega t) = \frac{E_0}{2}\left(\mathrm{e}^{+i\omega t} + \mathrm{e}^{-i\omega t}\right)$$

oszilliert mit 2ω!

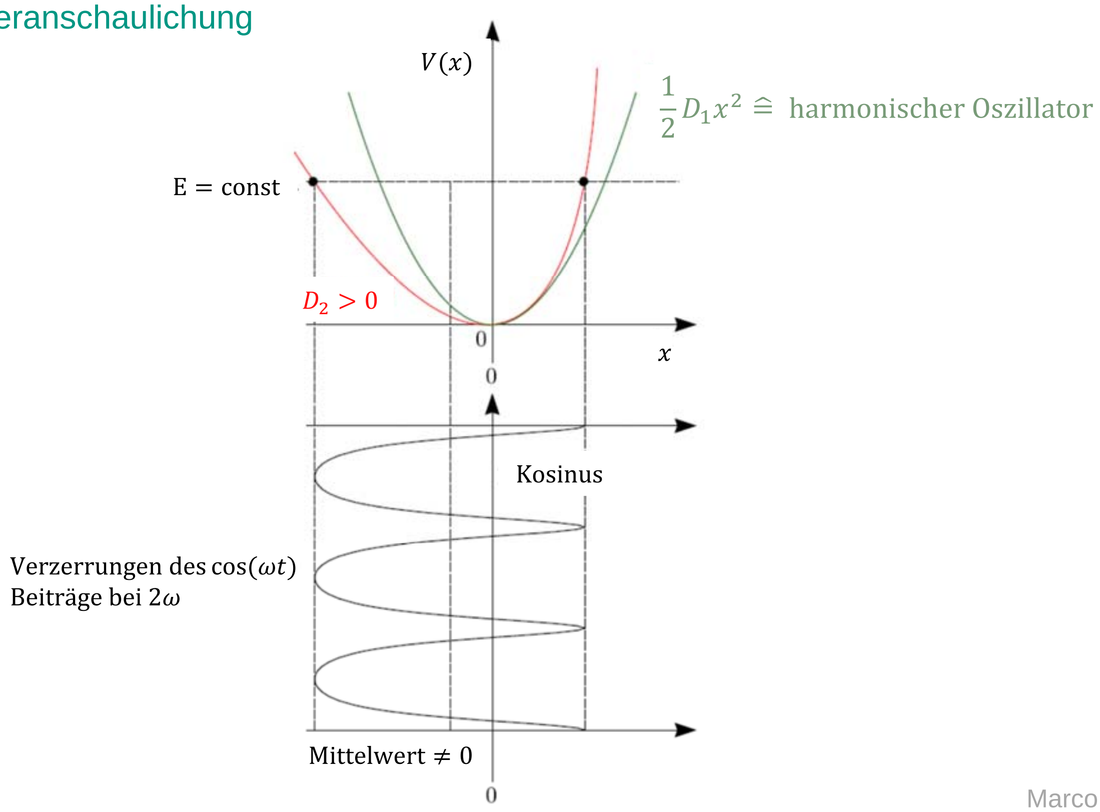
oszilliert nicht

$$\Rightarrow \quad \ddot{x}^{(2)} + \Omega^2\,x^{(2)} = -\frac{D_2}{m}\left(\frac{V\varepsilon_0}{NQ}\right)^2\left(\chi^{(1)}(\omega)\right)^2\,\frac{E_0^2}{2}\left(\cos(2\omega t) + 1\right)$$

Lösung

$$\boxed{x^{(2)}(t) = -\frac{D_2}{m}\left(\frac{V\varepsilon_0}{NQ}\right)^2\left(\chi^{(1)}(\omega)\right)^2\,\frac{E_0^2}{2}\left\{\overbrace{\frac{1}{\Omega^2-(2\omega)^2}\,\cos(2\omega t)}^{\text{2. Harmonische}} + \overbrace{\frac{1}{\Omega^2}}^{\text{optische Gleichrichtung}}\right\}}$$

Veranschaulichung



Marco Schreck

Die nichtlinear optischen Suszeptibilitäten

Mit

$$P = \lambda P^{(1)} + \lambda^2 P^{(2)} + \dots$$

$$\Rightarrow \quad P^{(2)} = -\frac{NQ}{V} x^{(2)} \quad =: \quad \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2$$

oder verallgemeinert

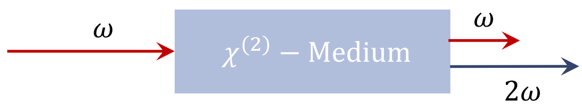
$$\boxed{P = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E + \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \dots}$$

mit den nichtlinear optischen Suszeptibilitäten $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \dots$

$$\boxed{\chi^{(n)} = \chi^{(n)}(\omega)}$$

Frequenzverdopplung

Mittels eines Materials mit nichtlinearer Suszeptibilität soll mit Laserlicht der Frequenz ω Licht der doppelten Frequenz 2ω erzeugt werden.



Welche Bedingungen müssen erfüllt werden?

Symmetrie

Für einen Kristall, der bei Vertauschung der Koordinaten seiner Atome mittels $x \to -x$, $y \to -y$ und $z \to -z$ in sich selbst übergeht (Inversionssymetrie), gilt offenbar

$$\begin{aligned} P &\to -P \\ E &\to -E \end{aligned}$$

d.h. P enthält keine quadratischen Terme von E !

$\chi^{(2)} \neq 0$ ist nur möglich für Materialien ohne Inversionssymmetrie!

Phasenanpassung

Die entlang des Wegs L von der Erregerwelle E_1 der Frequenz ω an verschiedenen Orten erzeugten Sekundärwellen E_2 der Frequenz 2ω müssen in Ausbreitungsrichtung konstruktiv interferieren. Die phasenrichtige Überlagerung gelingt wenn

$$\boxed{k_2 = 2\,k_1}$$

Es folgt mit der Dispersionsbeziehung $\omega = c\,k$

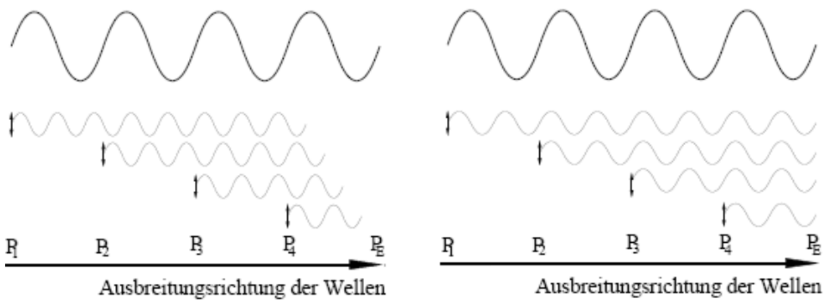
$$\frac{2\omega}{c(2\omega)} = 2\,\frac{\omega}{c(\omega)} \quad \Rightarrow \quad \boxed{n(\omega) = n(2\omega)}$$

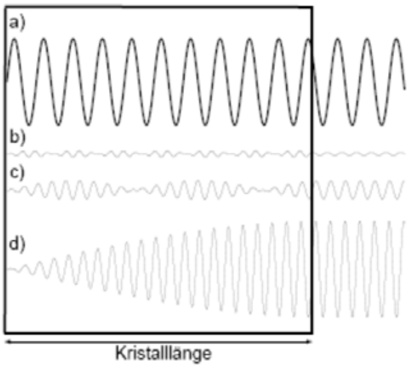
Quantenoptische Betrachtung

Zwei Anregungsphotonen erzeugen Photon doppelter Energie und doppeltem Impuls ($\hbar = h/2\pi$):

$$\begin{aligned} \hbar\cdot\omega \;+\; \hbar\cdot\omega &= \hbar\cdot 2\omega \\ \hbar\cdot k_1 \;+\; \hbar\cdot k_1 &= \hbar\cdot k_2 \end{aligned}$$

Anschaulich





Christoph Przeszlakowski, Diplomarbeit, Ulm 2007

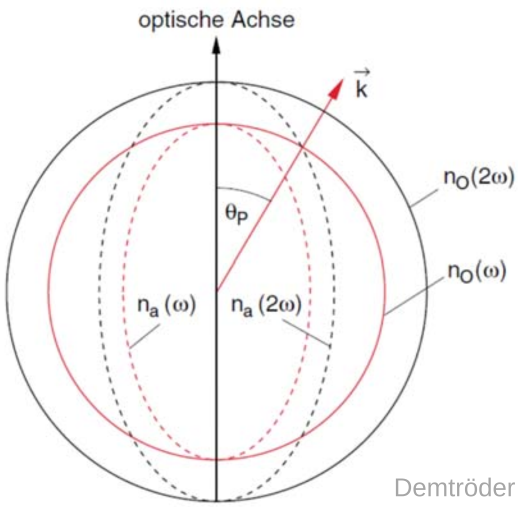
Experimentelle Realisierung

Doppelbrechendes Medium

- Der Brechungsindex hängt von der Richtung von $\vec{E}(\omega)$ bzw. $\vec{E}(2\omega)$ ab.
- Drehe den Kristall so, dass die Ausbreitungsrichtung $\vec{k}$ einem Kreuzungspunkt der Kurven für $n(\omega)$ und $n(2\omega)$ entspricht.
- Da außerordentliche Welle und ordentliche Welle orthogonal zueinander polarisiert sind, gilt $\vec{E}(\omega) \perp \vec{E}(2\omega)$.

Anforderungen

- Keine Inversionssymmetrie
- Doppelbrechend, $n_o(\vartheta)$ und $n_e(\vartheta)$ schneiden sich
- Großes $\chi^{(2)}$
- Keine Absorption bei ω und 2ω
- Große Homogenität, d.h. $\Delta n \leq 10^{-5}$
- Hohe Zerstörschwelle



Demtröder 2