Kapitel 4

Wellenausbreitung in linearen und nichtlinearen Medien

In diesem Kapitel werden wir uns ansehen, wie elektromagnetische Felder mit Materie wechselwirkt und wie diese Wechselwirkung effektiv in die Maxwellschen Gleichungen eingebaut werden können. Dabei gehen wir zurück zu den Materialgleichungen (2.2), die wir in der folgenden Weise erweitern: Ein elektromagnetisches Feld trifft auf ein Medium, das aus (im allgemeinen gebundenen) Ladungsverteilungen besteht. Dieses Feld wird die Ladungsverteilungen verschieben, was zu einem induzierten Polarisationsfeld führt (und ebenfalls zu einer Magnetisierung, wenn das Medium magnetisch ist). Wir können also ganz allgemein die Materialgleichungen als

$$\mathbf{D}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}[\mathbf{E}(\mathbf{r},t)], \qquad (4.1a)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}(\mathbf{r},t) - \mathbf{M}[\mathbf{B}(\mathbf{r},t)]$$
(4.1b)

schreiben. Hierbei ist gemeint, das die Polarisierung \mathbf{P} und die Magnetisierung \mathbf{M} funktional von den Feldern \mathbf{E} und \mathbf{B} abhängen soll, die genaue Abhängigkeit aber noch spezifiziert werden muss.

4.1 Lineare Medien

Im einfachsten Fall können wir annehmen, dass die Polarisierung direkt proportional zum einwirkenden elektrischen Feld und die Magnetisierung direkt proportional zur magnetischen Induktion ist. Das heisst, wir nehmen an, dass

$$\mathbf{P} \propto \mathbf{E} \quad \rightsquigarrow \quad \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon \mathbf{E}(\mathbf{r}, t),$$
 (4.2a)

$$\mathbf{M} \propto \mathbf{B} \quad \rightsquigarrow \quad \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\mu} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$$
 (4.2b)

gelten soll, wobei die Konstanten ε die Permittivität des Mediums und μ die Permeabilität des Mediums darstellen. Damit folgt sofort die Wellengleichungen für das elektrische Feld als

$$-\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r},t) + \varepsilon \mu \ddot{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = 0. \qquad (4.3)$$

Ein Vergleich mit der Wellengleichung (2.5) im Vakuum zeigt, dass wir den Ausdruck $\varepsilon \mu$ mit der Lichtgeschwindigkeit im Medium in Verbindung bringen können,

$$\varepsilon \mu = \frac{1}{c^2} \quad \rightsquigarrow \quad c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon \mu}}.$$
(4.4)

Bezeichnen wir die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum mit c_0 , so bildet das Verhältnis

$$\frac{c_0}{c} = \sqrt{\frac{\varepsilon\mu}{\varepsilon_0\mu_0}} = n \tag{4.5}$$

gerade den (konstanten) Brechungsindex n des Mediums.

Die Annahme einer über alle Frequenzen konstanten Reaktion auf ein von außen angelegtes Feld ist sicher eine sehr starke Näherung, die nicht aufrecht erhalten werden kann, da sie alle Details der Materialantwort vernachlässigt. Insbesondere wird angenommen, dass das Medium auch bei sehr hohen Frequenzen, im Extremfall Röntgen- oder Gammastrahlung, immer noch denselben Brechungsindex besitzt, was offensichtlich unserer Erfahrung widerspricht.

4.1.1 Dispersion und Absorption

Wir wollen nun ein realistischeres Modell der linearen Antwort eines Mediums aufstellen, das sich, wie wir sehen werden, mit der Polarisierung eines Dipols bzw. eines Ensembles von Dipolen verknüpfen lässt. Wir nehmen zunächst der Einfachheit halber an, dass das Medium nicht magnetisch ist, so dass die magnetische Materialgleichung im Vakuum, $\mathbf{H} = \mathbf{B}/\mu_0$, weiterhin ihre Gültigkeit behält. In der Tat sind in den allermeisten natürlich vorkommenden Medien magnetische Effekte für die Lichtausbreitung bedeutungslos¹.

Eine allgemeine lineare Verknüpfung zwischen Polarisierung und elektrischem Feld kann als

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \int d^3 r' \int_{-\infty}^t dt' \, \boldsymbol{\chi}^{(1)}(\mathbf{r},\mathbf{r}',t-t') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}',t')$$
(4.6)

geschrieben werden. Hierbei bezeichnet $\chi^{(1)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$ die tensorielle **lineare Suszeptibilität**. Die Struktur von (4.6) ist die einer zeitlichen kausalen Antwort der Polarisierung auf ein äußeres elektrisches Feld. Es ist kausal, weil nur elektrische Felder zu Zeiten vor t zur Polarisierung beitragen. Zum anderen ist auch die Möglichkeit vorgesehen, dass die Antwort des Materials an einem anderen Punkt stattfindet als die Anregung (räumliche Dispersion). In der Regel kann dieser Effekt vernachlässigt werden². Weiterhin ist in (4.6) die Möglichkeit vorgesehen, dass das Material doppelbrechend ist, so dass eine tensorielle Beschreibung nötig ist.

Wir wollen uns hier auf eine vereinfachte Beschreibung konzentrieren, in der Effekte der Anistropie sowie der räumlichen Dispersion vernachlässigt werden. Wir werden von jetzt an die lineare Suszeptibilität

$$\chi_{ij}^{(1)}(\mathbf{r},\mathbf{r}',t) = \chi^{(1)}(\mathbf{r},t)\delta_{ij}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}')$$
(4.7)

eines isotropen Mediums, $\chi^{(1)}({\bf r},t),$ betrachten, dessen Polarisierung

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \int_0^\infty dt' \,\chi^{(1)}(\mathbf{r},t') \mathbf{E}(\mathbf{r},t-t') \tag{4.8}$$

lautet. Gleichung (4.8) hat die mathematische Struktur einer Faltung. Fouriertransformation der Gleichung liefert den Zusammenhang

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\mathbf{r},\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$$
(4.9)

im Frequenzraum mit der Relation $\chi^{(1)}(\mathbf{r},\omega) = \chi^{(1)*}(\mathbf{r},-\omega).$

¹Eine wichtige Ausnahme stellen sogenannte Metamaterialien (*metamaterials*) dar, die auf Materialstrukturierungen auf Längenskalen kleiner als der relevanten Lichtwellenlänge basieren. Mit solchen meist periodischen Strukturen lassen sich nahezu beliebige, auch magnetische, *effektive* Materialeigenschaften herstellen.

²Ausnahmen sind Metalle und Supraleiter, bei denen auf der Skala der Thomas–Fermi-Länge bzw. Kohärenzlänge die räumliche Dispersion wichtig wird. Dies spielt bei dem modernen Feld der Plasmonik eine wesentliche Rolle.

4.1.2 Kramers–Kronig-Relation

Die Fourierkomponenten $\chi^{(1)}(\mathbf{r},\omega)$ der linearen Suszeptibilität erfüllen eine wichtige Integralrelation, die wir nun herleiten wollen. Dazu gehen wir noch einmal zu Gleichung (4.8) zurück und stellen zunächst fest, dass es sich hierbei nur um eine halbseitige Fouriertransformation handelt. Um die Integration auf die ganze Zeitachse ausdehnen zu können und gleichzeitig der Kausalität der dielektrischen Antwort Rechnung zu tragen, müssen wir fordern, dass die Suszeptibilität bei negativen Zeiten verschwindet. Dies lässt sich erreichen, indem man

$$\chi^{(1)}(t) = \Theta(t)\chi^{(1)}(t) \tag{4.10}$$

schreibt, wobei $\Theta(t)$ die Heaviside-Funktion darstellt³. Wir transformieren nun beide Seiten der Gleichung (4.10) mithilfe der Relationen

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \, e^{i\omega t} \chi^{(1)}(t) \,, \quad \chi^{(1)}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \, e^{-i\omega t} \chi^{(1)}(\omega) \tag{4.11}$$

und erhalten

$$\chi^{(1)}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \, e^{i\omega t} \Theta(t) \chi^{(1)}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \, e^{i(\omega-\omega')t} \Theta(t) \chi^{(1)}(\omega')$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \, \chi^{(1)}(\omega') \int_{0}^{\infty} dt \, e^{i(\omega-\omega')t}$$

$$= \frac{1}{2\pi i} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \, \chi^{(1)}(\omega') \left[i\pi \delta(\omega-\omega') - \mathcal{P} \frac{1}{\omega-\omega'} \right]$$

$$= \frac{1}{2} \chi^{(1)}(\omega) - \frac{1}{2\pi i} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\chi^{(1)}(\omega')}{\omega-\omega'}. \qquad (4.12)$$

³Die Heaviside-Funktion, auch Sprungfunktion genannt, hat die Eigenschaft

$$\Theta(t) = \begin{cases} 1, & t \ge 0\\ 0, & t < 0 \end{cases}.$$

Fasst man die Gleichung noch etwas weiter zusammen, so erhält man eine Relation der Fourierkomponenten der Suszeptibilität an einer Frequenz ω mit einem Integral über alle Fourierkomponenten an allen Frequenzen,

$$\chi^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{i\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\chi^{(1)}(\omega')}{\omega - \omega'}.$$
(4.13)

Dies ist eine spezielle Form der **Kramers–Kronig-Relation**⁴ für die lineare Suszeptibilität. Nehmen wir den Real- bzw. Imaginärteil der Gleichung (4.13), so erhalten wir mit

$$\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega')}{\omega - \omega'}, \quad \operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega) = \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega')}{\omega - \omega'}$$
(4.14)

zwei Beziehungen, die die Real- und Imaginärteile der linearen Suszeptibilität miteinander verbinden. Aus (4.14) wird ersichtlich, dass es unmöglich ist, eine rein reelle Suszeptibilität im Frequenzraum zu erzeugen.

Die Konsequenzen der Kramers-Kronig-Relationen werden besonders deutlich, wenn man die im Medium dissipierte Energie berechnet. Dazu müssen wir uns daran erinnern, dass der Quellterm für die elektromagnetische Feldenergie gerade $-\mathbf{j} \cdot \mathbf{E}$ ist. Wir interpretieren nun die Stromdichte \mathbf{j} als die durch das elektrische Feld im Medium induzierte Stromdichte

$$\mathbf{j}_{\text{ind}}(\mathbf{r},t) = -\dot{\mathbf{P}}(\mathbf{r},t) + \boldsymbol{\nabla} \times \mathbf{M}(\mathbf{r},t)$$
(4.15)

und berechnen die gesamte, dem elektromagnetischen Feld zugeführte, Energie als

$$E = -\int dt \int d^3r \,\mathbf{j}_{ind}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\int d\omega \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \operatorname{Re}[\mathbf{j}_{ind}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{E}^*(\mathbf{k}, \omega)]$$
$$= -\int d\omega \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \frac{1}{2} \left[\mathbf{j}_{ind}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{E}^*(\mathbf{k}, \omega) + \mathbf{j}^*_{ind}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \right]. \quad (4.16)$$

Setzt man nun für die induzierte Stromdichte die Fouriertransformierte der Polarisierung ein und verwendet die Beziehung $\mathbf{P}(\mathbf{k},\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\mathbf{k},\omega) \mathbf{E}(\mathbf{k},\omega)$,

⁴Diese Integraltransformation heisst auch *Hilberttransformation*. Die Kramers–Kronig-Relationen werden in der mathematischen Literatur auch als *Plemelj-Formeln* bezeichnet.

wobei wir die allgemeine lineare Beziehung inklusive räumlicher Dispersion benutzt haben, so findet man

$$E = -\int d\omega \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \,\omega \,\mathrm{Im}\chi^{(1)}(\mathbf{k},\omega) |\mathbf{E}(\mathbf{k},\omega)|^2 \,. \tag{4.17}$$

Die Gesamtenergie des elektromagnetischen Feldes nimmt also proportional zum Imaginärteil der Suszeptibilität ab. Der Imaginärteil beschreibt demnach **dissipativen** Anteil der dielektrischen Antwort des Mediums, der Realteil den **reaktiven** Teil der Antwort. Nach der Kramers–Kronig-Relation sind beide Anteile unmittelbar miteinander verknüpft. Jedes Medium, das in irgendeiner Weise auf ein äußeres elektromagnetisches Feld reagiert, muss notwendigerweise auch Strahlung absorbieren. Allerdings kann man sich Materialien vorstellen, bei denen die Absorption in begrenzten Frequenzintervallen vernachlässigbar klein ist (z.B. Gläser), außerhalb dieser Regionen müssen selbst ansonsten transparente Medien absorbieren.

4.1.3 Dipolmodell für lineare Polarisierung

Wir wollen nun ein einfaches Modell konstruieren, das die wesentlichen Eigenschaften der linearen Suszeptibilität wiederspiegelt. Dazu betrachten wir einen Dipol, der aus zwei entgegengesetzt geladenden Punktteilchen mit Ladungen $\pm e$ besteht, die einen Abstand **r** voneinander haben sollen (Abb. 4.1). Die Newtonschen Bewegungsgleichungen für geladende Punktmassen mit La-



Abbildung 4.1: Dipol aus zwei Ladungen im Abstand **r** voneinander.

dung q_i und Position \mathbf{r}_i nehmen die Form

$$m_i \ddot{\mathbf{r}}_i = q_i \left[\mathbf{E}(\mathbf{r}_i, t) + \dot{\mathbf{r}}_i \times \mathbf{B}(\mathbf{r}_i, t) \right] + \mathbf{F}_{\text{diss}} + \sum_j \mathbf{F}_{ij}$$
(4.18)

an, wobei die einzelnen Kräfte die Lorentzkraft, mögliche dissipative (Reibungs-)kräfte und konservative Bindungskräfte zwischen den Ladungen bezeichnen. Wir nehmen nun an, dass $q_i = \pm e$ ist und dass ein in x-Richtung (Dipolrichtung) polarisiertes elektrisches Feld anliegt, $\mathbf{E} = E\mathbf{e}_x$.

Hat die anregende Welle die harmonische Form $E(t) = E_0 e^{-i\omega t}$, so erhalten wir eine Bewegungsgleichung für den Dipol

$$\ddot{x} + \gamma \dot{x} + \omega_0^2 x = \frac{e}{m} E_0 e^{-i\omega t} , \qquad (4.19)$$

was einem getriebenen gedämpften harmonischen Oszillator entspricht. Dabei bezeichnet x die Auslenkung des Dipols, γ den Reibungskoeffizienten und ω_0 die Eigenfrequenz des Dipols, die aus der konservativen Bindungskraft folgt. Mit dem Ansatz $x(t) = x_0 e^{-i\omega t}$ erhalten wir als Lösung

$$(-\omega^2 - i\gamma\omega + \omega_0^2)x(t) = \frac{e}{m}E(t) \quad \rightsquigarrow \quad x(t) = \frac{\frac{e}{m}E(t)}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}.$$
 (4.20)

Das elektrische Dipolmoment ist damit

$$p(t) = ex(t) = \frac{e^2/m}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} E(t) = \alpha(\omega)E(t), \qquad (4.21)$$

wobei

$$\alpha(\omega) = \frac{e^2/m}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} \tag{4.22}$$

die **Polarisierbarkeit** eines Dipols darstellt. Denkt man sich das Medium aus vielen solcher Dipole mit einer Anzahldichte n zusammengesetzt, so erhält man für die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}(\omega) = n\alpha(\omega)$.

Teilt man die Polarisierbarkeit (4.22) in Real- und Imaginärteil auf, so findet man

$$\operatorname{Re}\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2}{m} \frac{(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}, \quad \operatorname{Im}\chi^{(1)}(\omega) = \frac{ne^2}{m} \frac{\gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \gamma^2 \omega^2}.$$
(4.23)

Beide Funktionen sind schematisch in Abb. 4.2 dargestellt. In den Bereichen $\omega < \omega_1$ und $\omega > \omega_2$ wird das Licht mit wachsender Frequenz stärker gebrochen (normale Dispersion). Im Intervall $\omega_1 < \omega < \omega_2$ spricht man hingegen von anormaler Dispersion. Der Imaginärteil hat an der Resonanzfrequenz ω_0 sein Maximum. Man erkennt auch, dass über den gesamten Frequenzraum Absorption stattfindet. Man kann explizit nachprüfen, dass die so erhaltene Suszeptibilität tatsächlich die Kramers-Kronig-Relationen erfüllt.



Abbildung 4.2: Real- und Imaginärteil der linearen Suszeptibilität eines Ensembles identischer Dipole.

Im allgemeinen besteht ein Medium aus unterschiedlichen Oszillatoren mit verschiedenen Resonanzfrequenzen und verschiedenen Oszillatorstärken. Selbst innerhalb eines Atoms existieren eine Vielzahl von Dipolübergängen, deren Übergangsmatrixelemente aus einer quantenmechanischen Behandlung folgen. Wir können also ein allgemeineres Medium durch eine Suszeptibilität

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{e^2 n}{m} \sum_k \frac{f_k}{\omega_k^2 - \omega^2 - i\gamma_k \omega}$$
(4.24)

modellieren, wobei über alle möglichen Dipolübergänge mit Oszillatorstärken f_k , Resonanzfrequenzen ω_k und Dämpfungen γ_k summiert wird. Gleichung (4.24) ist das **Drude–Lorentz-Modell** eines dielektrischen Mediums, mit dessen Hilfe die Wellenausbreitung zumindest bei geringen Intensitäten bzw. Energiedichten sehr gut beschrieben wird.

4.1.4 Dispersion und optische Pulse

Die Dispersion, also die Frequenzabhängigkeit der Suszeptibilität, hat direkte Auswirkungen auf die Propagation von elektromagnetischen Wellen durch dielektrische Medien. Der Brechungsindex ist nun ebenfalls frequenzabhängig, $n(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}$. Wir betrachten nun eine in z-Richtung propagierende und senkrecht dazu polarisierte Welle, die durch ein elektrisches Feld

$$E(z,t) = \frac{1}{2} \left[E_0(z,t)e^{-i\omega_0 t} + \text{c.c.} \right]$$
(4.25)

beschrieben ist⁵. Die Einhüllende $E_0(z,t)$ sei am Ort z = 0 durch ein Gaußsches Profil

$$E_0(0,t) = Ae^{-t^2/(2t_0^2)}$$
(4.26)

gegeben. Die Fouriertransformation von $E_0(0,t)e^{-i\omega_0 t}$ ist dann

$$E_0(0,\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \, e^{i(\omega-\omega_0)t} E_0(0,t) = \sqrt{2\pi} A t_0 e^{-(\omega-\omega_0)^2 t_0^2/2} \,, \tag{4.27}$$

also ebenfalls eine Gaußsche Funktion. Das Feld an einem Ort z bestimmt man nun über $E_0(z, \omega) = E_0(0, \omega)e^{ik(\omega)z}$. Wir entwickeln nun die Wellenzahl $k(\omega)$ in eine Taylorreihe um die Frequenz ω_0 der Trägerwelle (*carrier wave*) herum,

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \beta_1(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\beta_2(\omega - \omega_0)^2 + \dots$$
(4.28)

mit den Entwicklungskoeffizienten

$$\beta_1 = \frac{dk}{d\omega}\Big|_{\omega_0} = \frac{1}{v_g} = \frac{\tau_g}{z}, \quad \beta_2 = \frac{d^2k}{d\omega^2}\Big|_{\omega_0} = \frac{1}{z}\frac{d\tau_g}{d\omega} = -\frac{D_\lambda\lambda^2}{2\pi c}.$$
 (4.29)

Hier bezeichnen v_g die Gruppengeschwindigkeit, also die Geschwindigkeit, mit der sich die Einhüllende des Pulses bewegt; τ_g ist die Gruppenzeitverzögerung (group time delay), und D_{λ} der sogenannte Dispersionsparameter, der über

$$\frac{d\tau_g}{d\lambda} = -\frac{z\lambda}{c}\frac{d^2n}{d\lambda^2} = D_\lambda z \tag{4.30}$$

gegeben ist.

Transformiert man wieder zurück in den Zeitraum, so erhält man

$$E_0(z,t)e^{-i\omega_0 t} = \frac{Ae^{-i\omega_0(t-z/v_p)}}{\sqrt{1+i\xi}} \exp\left[-\frac{(t-\tau_g)^2}{2t_0^2(1+\xi^2)}\right] \exp\left[\frac{i\xi(t-\tau_g)^2}{2t_0^2(1+\xi^2)}\right],$$
(4.31)

wobei $v_p = \omega/k$ die Phasengeschwindigkeit, also die Geschwindigkeit der Trägerwelle, und $\xi = \beta_2 z/t_0$ eine dimensionslose Länge darstellt. An Gleichung (4.31) erkennt man folgende Eigenschaften der Pulsausbreitung:

• Die Trägerwelle bewegt sich mit der Phasengeschwindigkeit v_p .

⁵Hier wurde explizit darauf geachtet, dass das elektrische Feld im Konfigurationsraum reell ist.

- Die Einhüllende bewegt sich mit der Gruppengeschwindigkeit v_q .
- Der Puls ist um den Faktor $\sqrt{1+\xi^2}$ verbreitert.
- Die Spitzenintensität des Pulses sinkt um den Faktor $(1 + \xi^2)$.
- Die optische Trägerfrequenz ändert sich entlang des Pulses (chirp).

Aus Gleichung (4.27) lesen wir ab, dass die spektrale Bandbreite des Pulses

$$\Delta \nu = \frac{1}{\Delta t_0} \frac{2 \ln 2}{\pi} \tag{4.32}$$

ist, wobei $\Delta t_0 = t_0 \sqrt{4 \ln 2}$ die Halbwertsbreite (full width at half maximum, FWHM) des ursprünglichen Gaußschen Pulses ist. Nach Propagation durch das Medium ist die Halbwertsbreite des Pulses aber nach (4.31) auf

$$\Delta t = \Delta t_0 \sqrt{1 + \xi^2} \tag{4.33}$$

angewachsen. Das Zeit-Bandbreite-Produkt (*time-bandwidth product*) ist demnach wegen

$$\Delta\nu\Delta t = 0.441\sqrt{1+\xi^2} \tag{4.34}$$

ein Spezialfall des Bandbreitentheorems

$$\Delta t \Delta \nu \ge K \,, \tag{4.35}$$

wobei K eine Zahl in der Größenordnung von Eins ist und von der Pulsform abhängt. Wenn ein Puls das Minimum des Zeit-Bandbreiten-Produkts erreicht (hier für $\xi = 1$), so spricht man von einem bandbreitenlimitierten Puls (*bandwidth-limited* oder *transform-limited*).

Den Frequenzchirp erhält man aus dem letzten Term in Gleichung (4.31), den wir als $e^{i\psi}$ schreiben und bedenken, dass $d\psi/dt$ die Verschiebung der Trägerfrequenz darstellt. Der Chirp, also die Frequenzverschiebung, ist dann

$$\frac{d\omega}{dt} = \frac{d^2\psi}{dt^2} = \frac{\xi}{t_0^2(1+\xi^2)} \stackrel{|\xi|\gg 1}{\simeq} \frac{1}{t_0^2\xi} = \frac{1}{\beta_2 z}.$$
(4.36)

Wenn β_2 positiv ist, das heisst, die Gruppenzeitverzögerung mit der Frequenz ansteigt, ist also auch der Chirp positiv. Demzufolge werden höhere Frequenzen stärker verzögert als niedrigere. Dieses Verhalten ist in Abb. 4.3 gezeigt, in der das elektrische Feld eines ursprünglich Gaußschen Pulses vor und nach der Propagation durch ein lineares dispersives Medium mit $\xi = 3$ dargestellt ist.



Abbildung 4.3: Ein Gaußscher Puls vor (gestrichelte Linie) und nach der Propagation durch ein lineares Medium mit positiver Dispersion (durchgezogene Linie).

4.2 Nichtlineare Medien

Gehen wir zurück auf die Wellengleichung in einem dielektrischen Medium, so können wir diese als

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r},t) - \frac{1}{c^2} \ddot{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \mu_0 \ddot{\mathbf{P}}(\mathbf{r},t)$$
(4.37)

schreiben, wobei die Polarisierung funktional vom elektrischen Feld abhängt. Wir nehmen nun an, dass die Polarisierung in eine Taylorreihe bezüglich des elektrischen Feldes entwickelt werden kann,

$$P_{i} = \varepsilon_{0} \left(\chi_{ij}^{(1)} E_{j} + \chi_{ijk}^{(2)} E_{j} E_{k} + \chi_{ijkl}^{(3)} E_{j} E_{k} E_{l} + \dots \right) , \qquad (4.38)$$

wobei $\chi^{(2)}$ und $\chi^{(3)}$ nichtlineare Suszeptibilitäten zweiter bzw. dritter Ordnung sind, die im allgmeinen Tensoren dritter bzw. vierter Stufe sind. Dies suggiert zunächst, dass der Koeffizient $\chi^{(2)}$ 27 Komponenten und $\chi^{(3)}$ 81 Komponenten besitzt. Das ist zum Glück nicht so. Die Anzahl der unabhängigen Komponenten hängen stark von den Punktsymmetrien der eingesetzten Kristalle ab, die die allermeisten Matrixeinträge verschwinden lassen.

Die Entwicklung (4.38) zeigt auch, dass nichtlineare Effekte in der Polarisierung erst mit größeren Feldstärken sichtbar werden. Erst durch die Entwicklung des Lasers in den 1960'ern gelang es, Felder mit genügend hoher räumlicher und spektraler Energiedichte zu erzeugen. Damit wurde der Grundstein für die nichtlineare Optik gelegt⁶.

Um zu sehen, wie solche Nichtlinearitäten auftreten können, begeben wir uns zurück zu unserem Dipolmodell eines dielektrischen Mediums, in welchem wir die Bewegungsgleichung des Dipols in harmonischer Näherung als

$$m(\ddot{x} + \gamma \dot{x} + \omega_0^2 x) = eE \tag{4.39}$$

geschrieben haben. Dabei hatten wir angenommen, dass die konservative Bindungskraft linear in der Auslenkung ist (Hookesches Gesetz). Das dazugehörige Potential muss demnach quadratisch (harmonisch) sein. Das ist sicherlich nur in erster Näherung richtig. Betrachten wir zum Beispiel das Potential eines Elektrons bei seiner Bewegung um den Atomkern. Das effektive Potential setzt sich aus dem Coulombpotential und der Zentrifugalbarriere zusammen (Keplerproblem der klassischen Mechanik, siehe Abb. 4.4),



Abbildung 4.4: Effektives Potential eines Elektrons bei der Bewegung um den Atomkern.

$$V_{\rm eff}(r) = -\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 r} + \frac{L^2}{2mr^2}.$$
 (4.40)

Nur für sehr kleine Auslenkungen aus der Ruhelage kann das Potential durch eine Parabel approximiert werden.

⁶Eine der ersten wichtigen Arbeiten dazu war J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P.S. Pershan, Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).

Entwickeln wir das Potential in eine Taylorreihe um die Ruhelage x_0

$$V(x) = V(x_0) + \frac{1}{2!}V''(x_0)(x - x_0)^2 + \frac{1}{3!}V'''(x_0)(x - x_0)^3 + \dots$$
(4.41)

und nehmen den ersten nichtlinearen Term mit, dann modifiziert sich $\left(4.39\right)$ zu einer nichtlinearen Differentialgleichung

$$m(\ddot{x} + \gamma \dot{x} + \omega_0^2 x) = eE - \frac{1}{2}V'''x^2.$$
(4.42)

Wir lösen diese Gleichung mit dem Ansatz

$$x(t) = x_1(t) + x_2(t) + \ldots = \tilde{x}_1 e^{-i\omega t} + \tilde{x}_2 e^{-i2\omega t} + \ldots$$
(4.43)

und nehmen das äußere Feld als monochromatische Welle der Form $E(t)=E_0e^{-i\omega t}$ an.

Geht man mit diesem Ansatz in (4.42) und sortiert nach den einzelnen Fourierkoeffizienten von $e^{-i\omega t}$ und $-i2\omega t$, so findet man

$$m(\ddot{x}_1 + \gamma \dot{x}_1 + \omega_0^2 x_1) = e E_0 e^{-i\omega t}, \qquad (4.44a)$$

$$m(\ddot{x}_2 + \gamma \dot{x}_2 + \omega_0^2 x_2) = -\frac{1}{2} V''' x_1^2.$$
 (4.44b)

Die Lösung von (4.44a) für $x_1(t)$ ist analog zur linearen Theorie

$$x_1(t) = \frac{\frac{e}{m}E_0}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega} e^{-i\omega t}.$$
 (4.45)

Diese Lösung setzen wir in (4.44b) ein und finden

$$\ddot{x}_2 + \gamma \dot{x}_2 + \omega_0^2 x_2 = -\frac{V'''}{2m} \frac{(\frac{e}{m} E_0)^2}{(\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega)^2} e^{-i2\omega t}, \qquad (4.46)$$

das heisst, $x_2(t) \propto e^{-i2\omega t}$ wie im Ansatz. Damit wird die Lösung von (4.44b) zu

$$x_2(t) = -\frac{V'''}{2m} \left(\frac{e}{m}\right)^2 E_0^2 \frac{1}{[\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega]^2 [\omega_0^2 - (2\omega)^2 - i2\omega\gamma]} e^{-i2\omega t} . \quad (4.47)$$

Hier taucht nun zusätzlich zu dem schon bekannten Resonanznenner (der hier quadriert erscheint), ein neuer Resonanznenner mit der Resonanzfrequenz $\sim 2\omega$ auf. Die Frequenzabhängigkeit dieses Teils der Lösung ist $e^{-i2\omega t}$, obwohl nur mit einem elektrischen Feld der Frequenz $e^{-i\omega t}$ eingestrahlt wurde. Die Amplitude des elektrischen Feldes erscheint wie erwartet quadratisch als E_0^2 .

Die Polarisierung dieses nichtlinearen Mediums kann nun in der Form

$$P(t) = \alpha^{(1)} E(t) + \alpha^{(2)} E^2(t)$$
(4.48)

geschrieben werden, wobei $\alpha^{(1)}$ die schon bekannte lineare Polarisierbarkeit und $\alpha^{(2)}$ die nichtlineare Polarisierbarkeit zweiter Ordnung bezeichnet. Wir lesen aus den obigen Gleichungen ab, dass

$$\alpha^{(1)} = \frac{e^2}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}, \qquad (4.49a)$$

$$\alpha^{(2)} = -\frac{V'''e^3}{2m^3} \frac{1}{[\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega]^2 [\omega_0^2 - (2\omega)^2 - i2\omega\gamma]}$$
(4.49b)

gilt. Der erste Term entspricht einer linearen Polarisierung \mathbf{P}_{L} , der zweite einer nichtlinearen Polarisierung \mathbf{P}_{NL} .

Die Wellengleichung (4.37) für das elektrische Feld kann somit aufgeteilt werden in

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r},t) - \frac{1}{c^2} \ddot{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \mu_0 \ddot{\mathbf{P}}_{\mathrm{L}}(\mathbf{r},t) + \mu_0 \ddot{\mathbf{P}}_{\mathrm{NL}}(\mathbf{r},t), \qquad (4.50)$$

was im Frequenzraum der Helmholtzgleichung

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = -\mu_0 \omega^2 \mathbf{P}_{\rm L}(\mathbf{r},\omega) - \mu_0 \omega^2 \mathbf{P}_{\rm NL}(\mathbf{r},\omega)$$
(4.51)

entspricht. Mit der Relation $\mathbf{P}_{\mathrm{L}}(\mathbf{r},\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$ und der Definition der (relativen) dielektrischen Permittivität $\varepsilon(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$ erhalten wir

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon(\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = -\mu_0 \omega^2 \mathbf{P}_{\rm NL}(\mathbf{r},\omega) , \qquad (4.52)$$

die nichtlineare Polarisierung existiert demnach als Quelle des elektrischen Feldes. Zunächst müssen wir uns aber im Klaren darüber werden, wie die Frequenzkomponenten der nichtlinearen Polarisierung aussehen.

4.2.1 Nichtlinearität 2. Ordnung

Wir haben gesehen, dass jede lineare Antwort als ein zeitliches Faltungsintegral über die Suszeptibilität geschrieben werden kann, das zusätzlich die Kausalität von Ursache und Wirkung reflektiert (4.6). In derselben Weise kann auch jede nichtlineare Antwort geschrieben werden. Beschränken wir uns auf homogene Medien, so können wir die Ortsargumente der Einfachheit halber weglassen und finden

$$\mathbf{P}_{\rm NL}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \iint_0^\infty d\tau_1 \, d\tau_2 \, \boldsymbol{\chi}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) : \mathbf{E}(t - \tau_1) \mathbf{E}(t - \tau_2)$$
(4.53)

oder, in Komponentenschreibweise,

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \iint_{0}^{\infty} d\tau_1 \, d\tau_2 \, \chi_{ijk}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) E_j(t - \tau_1) E_k(t - \tau_2) \,. \tag{4.54}$$

Fouriertransformation reduziert die Anzahl der Integrale um eins, es bleibt aber noch eine Faltung übrig,

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(2)}(\omega) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \,\chi_{ijk}^{(2)}(\omega;\omega',\omega-\omega')E_j(\omega')E_k(\omega-\omega')\,. \tag{4.55}$$

Wir stellen uns nun die elektrischen Felder als monochromatische Felder mit diskreten Frequenzen ω_n vor. Diese Näherung ist zulässig, wenn es sich um stationäre Felder in schmalen Frequenzbändern handelt. Nehmen wir an, das elektrische Feld kann als

$$\mathbf{E}(t) = \tilde{\mathbf{E}}(\omega_1)e^{-i\omega_1 t} + \tilde{\mathbf{E}}(\omega_2)e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}$$
(4.56)

geschrieben werden. Im Frequenzraum erhalten wir mit

$$\mathbf{E}(\omega) = \tilde{\mathbf{E}}(\omega_1)\delta(\omega - \omega_1) + \tilde{\mathbf{E}}(\omega_2)\delta(\omega - \omega_2) + \tilde{\mathbf{E}}^*(\omega_1)\delta(\omega + \omega_1) + \tilde{\mathbf{E}}^*(\omega_2)\delta(\omega + \omega_2)$$
(4.57)

eine Summe von Deltafunktionen. Multiplikation zweier solcher Felder und Integration über ω' liefert dann die nichtlineare Polarisierung (4.55).

Frequenzverdopplung

Als Beispiel schauen wir uns den Term

$$E_j(\omega')E_k(\omega-\omega') = \tilde{E}_j(\omega_1)\tilde{E}_k(\omega_1)\delta(\omega'-\omega_1)\delta(\omega-\omega'-\omega_1) + (15 \text{ Terme}) \quad (4.58)$$

genauer an. Das Produkt der Deltafunktionen ist äquivalent zu

$$\delta(\omega' - \omega_1)\delta(\omega - \omega' - \omega_1) = \delta(\omega' - \omega_1)\delta(\omega - 2\omega_1).$$
(4.59)

Damit wird (4.55) zu

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(2)}(\omega) = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega_1;\omega_1,\omega_1) \tilde{E}_j(\omega_1) \tilde{E}_k(\omega_1) \delta(\omega - 2\omega_1) + \dots$$
(4.60)

Die nichtlineare Polarisierung hat also hier nur eine Komponente an der doppelten Frequenz einer der monochromatischen Feldmoden, $\omega = 2\omega_1$. Dieser Beitrag ist verknüpft mit einer **Frequenzverdopplung** (second-harmonic generation, SHG). Der Term $P_{\text{NL},i}^{(2)}(2\omega_1)$ treibt also in der Wellengleichung (4.37) eine Welle der Frequenz $2\omega_1$. Analog dazu existiert natürlich auch ein weiterer Term $P_{\text{NL},i}^{(2)}(2\omega_2)$, der eine Welle bei der Frequenz $2\omega_2$ treibt.

Optische Gleichrichtung

Weitere Prozesse erhält man beim Ausmultiplizieren der nichtlinearen Polarisierung. So findet man beispielsweise

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(2)}(\omega) = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(0;\omega_1,-\omega_1) \tilde{E}_j(\omega_1) \tilde{E}_k^*(\omega_1) \delta(\omega-2\omega_1) + \dots , \qquad (4.61)$$

also einen Beitrag, der frequenzunabhängig ist. Diesen Prozess bezeichnet man als **optische Gleichrichtung** (*optical rectification*). Er bewirkt, dass bei der Propagation intensiver Strahlung durch ein nichtlineares Medium eine Gleichspannung erzeugt wird.

Umgekehrt kann offensichtlich das Anlegen einer Gleichspannung an einem nichtlinearen Kristall eine Beeinflussung einer Welle mit Frequenz ω bewirken. Sei deshalb das elektrische Feld durch $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 + \frac{1}{2}\tilde{\mathbf{E}}(\omega_1)e^{-i\omega_1 t} + \frac{1}{2}\tilde{\mathbf{E}}^*(\omega_1)e^{i\omega_1 t}$ gegeben. Die nichtlineare Polarisierung bewirkt nun gerade, dass eine Welle der Frequenz ω_1 getrieben wird, deren Stärke von dem konstanten Feld \mathbf{E}_0 (d.h. der Gleichspannung) abhängt. Dies ist der **Pockelseffekt**, der bewirkt, dass der Brechungsindex von der Amplitude \mathbf{E}_0 abhängt. Vernachlässigt man alle Feldindizes, d.h. beschränkt man sich auf eine einzige Ausbreitungsrichtung, dann wird der Brechungsindex in einem Pockelselement

$$n = \sqrt{1 + \chi^{(1)} + 2\chi^{(2)}E_0}.$$
(4.62)

Summen- und Differenzfrequenzerzeugung

Die verbleibenden Terme enthalten jeweils Beiträge der beiden monochromatischen Felder, die sich zu unter anderem zu Beiträgen der Form

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(2)}(\omega) = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) \tilde{E}_j(\omega_1) \tilde{E}_k(\omega_2)$$
(4.63)

und

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(2)}(\omega) = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2) \tilde{E}_j(\omega_1) \tilde{E}_k^*(\omega_2)$$
(4.64)

zusammenfügen. Hierbei handelt es um die Prozesse der **Summen- und Differenzfrequenzerzeugung** (sum and difference frequency generation). Das Einstrahlen zweier monochromatischer Wellen mit Frequenzen ω_1 und ω_2 resultiert also in der Erzeugung neuer Wellen mit den Frequenzen

$$\omega_{\pm} = \omega_1 \pm \omega_2 \,. \tag{4.65}$$

Die Frequenzen werden entweder nach oben oder nach unten konvertiert (*fre-quency up-conversion* und *frequency down-conversion*).

Betrachten wir nun den Prozess der up-conversion etwas genauer. Die Beziehung

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 = \omega_+ \tag{4.66}$$

spiegelt dabei die Energieerhaltung des Prozesses wider. Bei der Propagation von Wellen müssen aber auch die räumlichen Faktoren berücksichtigt werden. Die Mischung zweier Wellen

$$e^{i(\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r} - \omega_1 t)} e^{i(\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r} - \omega_2 t)} = e^{i(\mathbf{k}_+ \cdot \mathbf{r} - \omega_+ t)} \tag{4.67}$$

enthält zudem die Bedingung

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_+ \,, \tag{4.68}$$

die eine Konsequenz der Impulserhaltung ist (Abb. 4.5). Diese Phasenanpassung (*phase matching*) bewirkt, dass spezielle Prozesse aus dem Panoptikum der möglichen nichtlinearen Prozesse selektiert werden können. Dies ist insbesondere dann wichtig, wenn im Medium Dispersion zu berücksichtigen ist.

Stellen wir uns nun vor, Licht mit den Frequenzen ω_1 und ω_2 werden zu einer Welle mit Frequenz $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ unter Verwendung der Phasenanpassung gemischt. Diese neue Welle mit ω_3 kann nun wieder mit der ebenfalls noch vorhandenen Welle mit ω_1 eine Welle der Differenzfrequenz $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$



Abbildung 4.5: Phasenanpassung bei der Dreiwellenmischung.

erzeugen, da dieser Prozess ebenfalls phasenangepasst ist. Ebenfalls kann die erzeugte Strahlung bei ω_3 mit ω_2 eine Differenzfrequenz ω_1 erzeugen. Alle drei Wellen sind also wechselseitig miteinander im Rahmen einer **3-**Wellenmischung (*three-wave mixing*) verkoppelt. Solch ein Prozess ist auch als parametrische Wechselwirkung bekannt.

Anwendung finden diese parametrischen Prozesse in

- Optical frequency conversion (OFC): Summen- und Differenzfrequenzerzeugung ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ bzw. $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$) und Frequenzverdopplung ($\omega_3 = 2\omega$)
- Optical parametric amplification (OPA): Einstrahlen von ω_1 und ω_3 (Pumpwelle), Welle ω_1 (Signal) wird verstärkt, Erzeugung von Idler ω_2
- Optical parametric oscillator (OPO): OPA mit Rückkopplung (Resonator), erzeugt kohärente Strahlung
- Spontaneous parametric down-conversion (SPDC): nur Einstrahlung von ω_3 (Pumpwelle), Wellen mit ω_1 und ω_2 entstehen spontan, Entstehung korrelierter Photonen (siehe Kapitel zu Quantentheorie)

4.2.2 Nichtlinearität 3. Ordnung

Nichtlinearitäten zweiter Ordnung sind nicht besonders häufig, weil sie oft durch Symmetriebeziehungen verboten werden. In unserem Potentialmodell heißt das beispielsweise, dass das Molekülpotential symmetrisch ist und damit die erste Korrektur zum harmonischen Potential die Form

$$V(x) = V(x_0) + \frac{1}{2!}V''(x_0)(x - x_0)^2 + \frac{1}{4!}V^{(4)}(x_0)(x - x_0)^4 + \dots$$
(4.69)

besitzt. In der phänomenologischen Beschreibung bedeutet dies, dass die Nichtlinearität die Form

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(3)}(t) = \varepsilon_0 \iiint_0^{\infty} d\tau_1 \, d\tau_2 \, d\tau_3 \, \chi_{ijkl}^{(3)}(\tau_1, \tau_2, \tau_3) E_j(t-\tau_1) E_k(t-\tau_2) E_l(t-\tau_3)$$
(4.70)

annimmt. Im Frequenzraum wird diese Beziehung zu

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(3)}(\omega) = \varepsilon_0 \iint_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \, d\omega_2 \, \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega;\omega_1,\omega_2,\omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) \,, \quad (4.71)$$

wobei Energieerhaltung $\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ gilt.

Optischer Kerreffekt und intensitätsabhängiger Brechungsindex

Wir betrachten nun einige wichtige Spezialfälle und beginnen mit einer monochromatischen Welle $\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2}\tilde{\mathbf{E}}(\omega)e^{-i\omega t} + \frac{1}{2}\tilde{\mathbf{E}}^*(\omega)e^{i\omega t}$, die in einer vorgegebenen Richtung durch ein isotropes $\chi^{(3)}$ -nichtlineares Medium propagiert. Wir vernachlässigen also alle Tensorindizes und finden unter anderem einen Beitrag

$$P_{\rm NL}^{(3)}(\omega) = \frac{3}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega) |\tilde{E}(\omega)|^2 \tilde{E}(\omega) , \qquad (4.72)$$

der mit derselben Frequenz oszilliert wie die eingestrahlte monochromatische Welle. Eingesetzt in die (Fouriertransformierte) Wellengleichung (4.37) liefert

$$\Delta \tilde{E}(\omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \left[1 + \chi^{(1)}(\omega) + \frac{3}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega) |\tilde{E}(\omega)|^2 \right] \tilde{E}(\omega) = 0, \quad (4.73)$$

was der Lichtausbreitung in einem Medium mit dem effektiven Brechungsindex

$$n = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega) + \frac{3}{4}\varepsilon_0\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega,-\omega)|\tilde{E}(\omega)|^2}$$
(4.74)

entspricht. Dieser Brechungsindex ist nun intensitätsabhängig. Die Propagation einer Welle durch ein solches Medium hängt also von ihrer (momentanen) Intensität ab. Für kleine Nichtlinearitäten können wir schreiben

$$n(\omega, I) = n_{\rm L}(\omega) + \Delta n I(\omega), \quad n_{\rm L} = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}, \quad (4.75)$$

wobei die Änderung des Brechungsindex

$$\Delta n = \frac{3\varepsilon_0}{8n_{\rm L}}\chi^{(3)}(\omega;\omega,\omega,-\omega) \tag{4.76}$$

lautet.

In dem betrachteten Fall des *self-Kerr effects*, also des intensitätsabhängigen Brechungsindex einer einzigen monochromatischen Welle, kommt es zu Effekten wir der **Selbstphasenmodulation** (*self phase modulation*) sowie zur **Selbstfokussierung** (*self focussing*). Diese beiden Effekte können wie folgt verstanden werden. Betrachten wir einen Strahl mit einem Gaußschen transversalen Strahlprofil, $I(r) = I_0 e^{-r^2/r_0^2}$. Das Brechungsindexprofil senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Welle ist demnach wegen

$$n(r) = n_{\rm L} + \frac{3\varepsilon_0}{8n_{\rm L}}\chi^{(3)}I_0e^{-r^2/r_0^2}$$
(4.77)

ebenfalls eine Gaußsche Funktion in radialer Richtung. Die Lichtwelle empfindet also ein ursprünglich homogenes Medium als eine effektive graded index-Linse, die das Strahlprofil einschnürt. Dies ist gerade die Selbstfokussierung, die im schlimmsten Fall zur Zerstörung des nichtlinearen Materials durch zu hohe Intensitätsdichten führen kann.

Währenddessen eine räumliche Intensitätsvariation zur Selbstfokussierung führt, bringt eine zeitliche Intensitätsvariation den Effekt der Selbstphasenmodulation mit sich. Die Phasengeschwindigkeit $v_p = c/n$ variiert nun mit der Intensität I(t) und eine in z-Richtung propagierende Welle e^{-ikz} sammelt also eine Phasenmodulation

$$\varphi(z,t) = -\omega \Delta n I(t) z/c \qquad (4.78)$$

auf. Damit ändert sich die instantane Pulsfrequenz um

$$\frac{d\varphi}{dt} = -\frac{\omega z \Delta n}{c} \frac{dI}{dt} \tag{4.79}$$

und der dazugehörige Frequenzchirp ist

$$\frac{d\omega}{dt} = \frac{d^2\varphi}{dt^2} = -\frac{\omega z \Delta n}{c} \frac{d^2 I}{dt^2}.$$
(4.80)

In einem Puls mit Gaußschem zeitlichen Profil $I(t) = I_0 e^{-t^2/t_0^2}$ ist der chirp im Zentrum des Pulses positiv $(d\omega/dt > 0)$ und am Rand negativ $(d\omega/dt < 0)$.

Beide Effekte müssen nun mit den Eigenschaften der Propagation in einem linearen dispersiven Medium kombiniert werden. Dort hatten wir gesehen, dass die Frequenzabhängigkeit der Gruppenzeitverzögerung ebenfalls zu einem chirp führt. Kombiniert man also den positiven chirp der Selbstphasenmodulation des Kerreffekts mit einer negativen linearen Dispersion, so lässt sich erreichen, dass sich beide chiprs gerade kompensieren und eine stabile Pulsform, ein **zeitliches optisches Soliton**⁷, erzeugt wird.

Bisher hatten wir den Kerreffekt nur sehr eingeschränkt betrachtet, indem wir uns auf eine einzige monochromatische Welle konzentriert haben. Das ist nur ein Spezialfall der Relation

$$P_{\rm NL}^{(3)}(\omega) = \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega', -\omega') |\tilde{E}(\omega')|^2 \tilde{E}(\omega) , \qquad (4.81)$$

nach der im allgemeinen eine intensive Welle der Frequenz ω' einen intensitätsabhängigen Brechungsindex an der Frequenz ω bewirkt. Dieser Prozess wird auch als **Kreuzphasenmodulation** (*cross-phase modulation*, XPM) bezeichnet.

Vierwellenmischung

Im allgemeinen wird in einem $\chi^{(3)}$ -Medium bei drei unterschiedlichen eintreffenden monochromatischen Wellen die nichtlineare Polarisierung die Form

$$P_{\mathrm{NL},i}^{(3)}(\omega_4) = \varepsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)} \tilde{E}_j(\omega_1) \tilde{E}_k(\omega_2) \tilde{E}_l^*(\omega_3)$$
(4.82)

annehmen, wobei

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3 \quad \rightsquigarrow \quad \omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4 \tag{4.83}$$

gilt. Dies ist die sogenannte **Vierwellenmischung** (*four-wave mixing*). Wie früher ist auch dieser Prozess nur dann effektiv, wenn die Phasenanpassung

$$\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3 + \mathbf{k}_4 \tag{4.84}$$

gewährleistet ist. Über die Nichtlinearität ergibt sich damit eine Wechselwirkung von vier Photonen, die in der Quantenelektrodynamik im Vakuum mit einem Faktor $1/\alpha^2$ (α : Feinstrukturkonstante) unterdrückt ist.

⁷Mehr zu diesem Thema in der Vorlesung 'Glasfaseroptik' von Prof. Mitschke.