

# COMPLEX NONLINEAR FOURIER OPTICS: NONLINEAR SINGULARITY OF SURFACE SECOND HARMONIC GENERATION (SHG) AND SUBHARMONICS (SubHG) BY NONCENTROSYMMETRIC MEDIA – NEW EXTENDED EXACT SOLUTIONS OF THE SURFACE NONLINEAR OPTICAL EQUATION

Peter Krampfl<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> ©2011, xxx, xxx, Germany

<sup>1</sup> E-mail: [p.krampfl@t-online.de](mailto:p.krampfl@t-online.de) (P. Krampfl).

\* Corresponding author.

Received xxxxxx

Accepted for publication xxxxxx

Published xxxxxx

## Abstract

Based on the principles of non-linear optics, we calculate the exact non-linear amplitude  $\alpha\tilde{x}^2$  (parameter) for light-matter interaction on surfaces, which is so far unresolved and we give a numerical, as well as the corresponding analytical solution up to the 8th order. It is shown that with the developed formulas the problem of Heisenberg's uncertainty relation, the impossibility of determining the place and impulse of a particle at the same time is solvable, or as Einstein already said, "Dogs cannot fly." With these developed formulas, it is also possible to determine the exact optical parameters, such as the non-linear susceptibility or the non-linear refractive index, analytically.

Wir berechnen ausgehend von den Prinzipien der Nichtlinearen Optik die exakte nichtlineare Amplitude  $\alpha\tilde{x}^2$  (Parameter) für die Licht- Materie Wechselwirkung an Oberflächen, welche bislang ungelöst ist und geben hierfür eine numerische, sowie die dazugehörige analytische Lösung bis zur 8. Ordnung an. Es wird gezeigt, dass mit den entwickelten Formeln die Problematik der Heisenberg'schen Unschärferelation, der Unmöglichkeit der gleichzeitigen Bestimmung von Ort und Impuls eines Teilchens, lösbar ist oder wie Einstein schon sagte „Hunde können nicht fliegen“. Mit diesen entwickelten Formeln ist es zudem möglich die exakten optischen Parameter, wie z. B. die nichtlineare Suszeptibilität oder der nichtlineare Brechungsindex, analytisch exakt zu bestimmen.

Keywords: Condensed matter, Photonics, Nonlinear Optics, Laser, SBHM, SHG, Higher Harmonics, Subharmonics

## 1. INTRODUCTION.

Die in den letzten Jahren veröffentlichten theoretischen und experimentellen wissenschaftlichen Aufsätze [PA04, AHPPW03, PWA02, HPA03] haben uns veranlasst, das Verhalten von nichtzentrosymmetrisch gebundenen

Elektronen im nichtlinearen Regime zu untersuchen. Diese sind in dieser Arbeit insbesondere die Generation höherer Harmonischer an nichtzentrosymmetrischer Materie - SHG. Nichtzentrosymmetrische Medien dagegen sind simulationstechnisch sehr viel schwerer zugänglich und nur wenig erforscht. Bislang gibt es keine analytische Lösung der Bewegungsgleichung für nichtzentrosymmetrisch gebundene

Oberflächenelektronen in Wechselwirkung mit bichromatischen photonischen Feldern. Dabei spielt sich die interessante Physik an der Oberfläche von Festkörpern ab, weil dort die zentrosymmetrische Bedingung verletzt ist, d. h. es findet keine Inversion aufgrund der Abwesenheit von Inversionssymmetrie statt. In dieser Arbeit soll erstmals der genaue Mechanismus dieser speziellen Licht- Materie Wechselwirkung untersucht und eine exakte mathematische Modellbildung gefunden werden, welche für jegliche nichtlineare Systeme relevant wird. Nichtzentrosymmetrische Medien können Schnittstellen zwischen unterschiedlichen Materialien, sowie Flüssigkeiten oder Festkörperoberflächen sein. Wo es nötig war, wurden die Betrachtungen auf das Modell der kondensierten harten Materie kristalliner Festkörper konzentriert. Dabei beschäftigt sich die vorliegende Arbeit ausschließlich mit dem Elektronensystem, wobei die adiabatische Näherung von Born und Oppenheimer (1927) zugrunde gelegt wurde, in der das Elektronensystem und die Gitterdynamik der Atomkerne entkoppelt sind. In dieser Approximation ist die Bewegung der Atomkerne wegen ihrer  $10^4$  bis  $10^5$ -fach größeren Masse sehr viel träger als die der Elektronen. Damit erscheinen für das Elektronensystem die dazu vergleichsweise langsamen Schwingungen der Atomkerne (Phononen) näherungsweise eingefroren zu sein, d. h. dem Atomkern können fixierte Koordinaten zugeordnet werden. Im Modell kondensierter Materie sind die meisten dieser Elektronen als Kern-Elektronen wegen der starken Coulomb-Anziehung fest an die Atomkerne gebunden. Sie bilden mit den Atomkernen eine Einheit, ein Ion. Zur Beschreibung der Valenz-Elektronen sind insbesondere ihre Dynamik und ihr energetischer Zustand wichtig. Ihre Beweglichkeit wird durch die kinetische Energie beschrieben. Sie bewegen sich nicht frei, sondern erfahren ein durch die Kern- Elektronen abgeschirmtes Coulomb-Potential der Atomkerne. Korrelationen zwischen den einzelnen Valenzelektronen werden vernachlässigt. Es verbleiben wenige bewegliche Valenz-elektronen, die jedoch aufgrund ihrer Beweglichkeit die elektrischen, magnetischen sowie einen Teil der thermodynamischen Eigenschaften der Festkörperoberfläche bestimmen. Zur Beschreibung dieser Systeme lassen sich störungstheoretische Analysen, wie die klassische Störungsrechnung, mit asymptotischen Näherungsverfahren sehr erfolgreich anwenden. In diesen Näherungen wird in den höheren Ordnungen eine genauere Beschreibung der einzelnen Valenz- Elektronen in nichtzentrosymmetrischer Materie erreicht.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist eine exakte analytische Beschreibung von nichtzentrosymmetrischer Materie in Wechselwirkung mit multichromatischen Photonenfeldern und dabei das Verhalten der NZS gebundenen Elektronen

beleuchteter Oberflächenmoleküle in der Zeitdomäne und Fourierdomäne zu verstehen. Die dabei interessierenden Fragen beziehen sich dabei vorrangig auf die Konstruktion der nichtlinearen Polarisationswelle, aufgrund der Licht Materie Wechselwirkung, auf der die abgestrahlte Responsewelle basiert und wie die dazugehörigen Responsetensoren, d. h. die nichtlineare Suszeptibilität und der nichtlineare Brechungsindex mathematisch formuliert werden können.

Dazu betrachten wir das nichtlineare System mittels effizienter numerischer Lösungen von nichtlinearen Differentialgleichungen. Unser Ansatz ist insbesondere attraktiv für Probleme in welche die

- effiziente Simulation von nichtlinearen -Systemen und deren Dynamik, sowie Vorhersage des Verhaltens, auch im hoch nichtlinearen Regime, erforderlich ist,
- das rein nichtlineare Subsystem vom gekoppelten dominierenden linearen System für hohe Felder betrachtet werden soll und
- das sogar noch kompliziertere lineare Subsystem entkoppelt vom dominierenden nichtlinearen System im extrem nichtlinearen Regime für hohe Felder betrachtet werden soll.

Derartige Probleme erscheinen in einer großen Bandbreite von Anwendungen, z. B. in dynamischen Vielteilchen- Systemen, in Multi- Photonen Spektroskopie oder in Modellen von elektrischen und optischen Schwingkreisen sowie elektrischen und optischen Netzwerken.

Unsere Forschung ist dabei motiviert von feldgekoppelten Problemen, welche in der Simulation von hoch nichtlinearen Systemen mit multiplen, multichromatischen optischen Feldern erscheinen. In diesem Kontext beschreibt das nichtlineare Subsystem das Abstrahlverhalten von NZS Materie

Die folgenden zwei Standardansätze für derartige nichtlineare Probleme sind derzeit weit genutzt in der Praxis:

- harmonisch approximierter Lösung für lineare Differentialalgebraische Systeme, welche nur gültig sind für genügend schwache optische Felder wo die tatsächliche rücktreibende Kraft, die ein Oberflächenelektron erfährt, nur für genügend kleine Oszillationen um den Gleichgewichtszustand erfährt, die durch ein harmonisches Potential approximiert werden kann.
- Die Darstellung des Frequenz- Domain Response von linearen Subsystemen und sehr kleinen nichtlinearen Subsystemen durch ihre harmonischen Denominatorfunktionen, basierend auf den

korrespondierenden reduzierten nichtlinearen Differentialalgebraischen Problemen.

## 2. PROBLEM DESCRIPTION AND OUTLINE OF THE APPROACH.

Zur Illustration der Ideen wird das nichtlineare System zunächst numerisch mit dem impliziten Runge Kutta Verfahren vierter Ordnung gelöst und danach in hohen Ordnungen basierend auf der Rayleigh- Schrödinger Störungsrechnung formuliert und die Ergebnisse zusätzlich mit der realen Eigendynamik des autonomen Bindungs-Elektrons im nichtzentrosymmetrischen Potential, aufgrund der vorhandenen Materieenergie, betrachtet und diskutiert.

Ausgangspunkt ist dabei die Betrachtung des gekoppelten dynamischen nichtlinearen Systems mit multiplen, multichromatischen photonischen Feldern für Oberflächen mittels der optischen nichtlinearen Differentialgleichung der Form:

$$\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} + \alpha\tilde{x}^2 = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e \quad (1)$$

Dabei wird angenommen, dass die optische Feldstörung nicht mehr moderat ist, sondern sich das System im stark nichtlinearen Regime befindet. Für diese nichtlineare Gleichung mit den optischen Störungstermen  $\tilde{\mathbf{E}}(t) = (E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.)$ , welche Frequenzabhängig sind, ist keine exakte, analytische Lösung bekannt.

Für genügend schwache optische Felder kann die tatsächliche rücktreibende Kraft, die ein Oberflächenelektron für genügend kleine Oszillationen um den Gleichgewichtszustand erfährt, durch ein harmonisches Potential approximiert werden. Durch Vielwellenmischen oder Einstrahlung mehrerer höherer Harmonischer und Kombinationen davon werden aber sehr schnell hohe Felder erreicht die zudem aus mehreren unabhängigen Quellen stammen. Dadurch werden die höheren Terme der Rückstellkraft wichtig und die Bewegung des Elektrons ist nicht länger direkt proportional zum Feld. Für diese Probleme müssen neue Strategien entwickelt werden und diese werden in dieser Arbeit vorgestellt.

Zur Aufhebung dieser Einschränkung und genauen Charakterisierung des hoch nichtlinearen Systems wird das Langzeitverhalten des nicht zentrosymmetrisch gebundenen Partikels störungstheoretisch in hohen Näherungen betrachtet. Dazu wird zur weiteren Untersuchung ein beliebig kleiner Störparameter  $\lambda$  eingeführt gemäß:

$$\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} + \lambda\alpha\tilde{x}^2 = -\lambda \left( e(\mathbf{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.) / m_e \right) \quad (2)$$

mit  $\lambda\alpha$  von elektrischen Multipolen abhängiger nichtlinearer Korrekturkoeffizient als beliebig kleiner Skalar  $0 < \lambda \ll 1$  und  $-\lambda e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e$  als Treiberterm. Gibt es nur Quadrupol- und Dipolbeiträge, dann hängt  $\lambda\alpha$  von der Quadrupolstärke erster Ordnung und von der Dipolstärke zweiter Ordnung ab. Zudem muss die reale Eigendynamik des autonomen Elektrons, aufgrund der vorhandenen Materieenergie berücksichtigt werden.

Die Arbeit ist dabei wie folgt gegliedert: Im Abschnitt (3) diskutieren wir den hergeleiteten Formalismus, welche die Photon- Wechselwirkung beschreibt und auf nichtzentrosymmetrische Materie angewandt. Der Computerphysik- Ansatz wird erklärt in Section (4). In Sec. (5) werden die weiterführenden Berechnungen präsentiert und die Ergebnisse diskutiert. Finally, in Sec. (6) werden die gefundenen Ergebnisse zusammengefasst.

## 3. FORMALISM.

In dieser Arbeit wird das Konzept der asymptotischen Näherungsverfahren nach [BM65] verwendet und auf höhere Ordnungen erweitert, welches hier auf das Problem nichtzentrosymmetrischer Materie angewandt wird. Das Randwertproblem, welches es dabei zu lösen gilt, ist ein konservatives Schwingungssystem der Form:

$$\frac{d^2 \tilde{x}}{dt^2} + \omega_0^2 \tilde{x} = \lambda f \left( \tilde{x}, \frac{d\tilde{x}}{dt} \right) \quad (3)$$

Bei einem stationären Zustand ist die Amplitude konstant und ihre Ableitung folglich Null. Für eine beliebig genaue m- te Näherung erhält man für die Amplitude unveränderliche stationäre Werte  $b$  der Gestalt:

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{b}}{dt} = \phi(\tilde{b}) &= \lambda A_1(\tilde{b}) + \lambda^{(2)} A_2(\tilde{b}) + \dots \\ \dots + \lambda^{(m-1)} A_{m-1}(\tilde{b}) + \lambda^{(m)} A_m(\tilde{b}) &= 0 \end{aligned} \quad (4)$$

Um höhere Näherungen eines stationären Zustands zu erhalten wird die Lösung von (3) in der Form  $\tilde{x} = \tilde{x}(\tilde{\omega}t + \varphi)$  dargestellt, die eine periodische Funktion von  $(\tilde{\omega}t + \varphi)$  mit der Periode  $2\pi$  ist. Die Amplitude  $\tilde{x}$  erfüllt diese Gleichung, wenn  $\tilde{x}(\tilde{\omega}t + \varphi)$  der Gleichung

$$\begin{aligned} \bar{\omega}^2 \frac{d^2 \tilde{x}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x} &= \lambda f\left(\tilde{x}, \frac{d\tilde{x}}{d\xi}\right) \\ &= \lambda P(\omega t, \tilde{x}, \dot{\tilde{x}}) = \underbrace{-2\gamma_j \dot{\tilde{x}} - \lambda \alpha \tilde{x}^2 - \lambda e \tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e}_{P(\tilde{x}, \dot{\tilde{x}})} \end{aligned} \quad (5)$$

genügt, mit  $\omega_0$  und  $\gamma_j$  als natürliche Resonanzfrequenz bzw.

Oszillatorstärke des  $j$ -ten Elektrons des NZS Systems. Dabei wurde in dieser Arbeit die Funktion  $f$  als eine periodische Polynomfunktion der Periodizität  $2\pi$  für  $\omega t$  angesetzt, die man in der Form  $P(\omega t, \tilde{x}, \dot{\tilde{x}}) = \sum_{n=-N}^N e^{-in\alpha} P_n(\tilde{x}, \dot{\tilde{x}})$  anschreiben

kann. Dabei wird vorausgesetzt, dass die Koeffizienten  $P_n(\omega t, \tilde{x}, \dot{\tilde{x}})$  in dieser endlichen Summe bestimmte

Polynome in  $\tilde{x}$  und  $\dot{\tilde{x}}$  sind. Die Lösung der optischen Bewegungsgleichung wird unendlich für exakt resonante Elektronen mit  $\omega_r = \omega_0$ . In der Praxis treten aber nie unendlich scharfe Linien auf, sondern es liegt vielmehr immer eine endliche Linienbreite aufgrund von Verunreinigungen oder der natürlichen Relaxation der Niveaus vor. Diese Effekte können phänomenologisch in unsere Analyse einbezogen werden, in dem man einen Zerfallsterm  $e^{-i2\gamma t}$ , einführt mit der Dämpfungskonstanten  $\gamma$ , dem eine Zerfallszeit des Amplitudenquadrats, also der Intensität der Größe  $1/\gamma$  entspricht. In den Ausdrücken führt das zu einem zusätzlichen Term von  $i2\gamma$  den man zur Resonanzfrequenz addieren muss. Dies führt zur Beseitigung der Singularität und einem ausschmieren der Dispersionsfunktion über den Frequenzbereich der Breite  $2\gamma_m$ . In Anwesenheit von elektronischen Nichtlinearitäten wird die Konstanz der Strahlungsdichte zerstört. Dies verursacht eine Verstimmung, die von der Amplitude linear abhängig ist. Dies wird durch die quadratische Nichtlinearität in  $x$  berücksichtigt. Lässt man diese Eigenschaften mit einfließen, liefert das Polynome in  $\tilde{x}$  und  $\dot{\tilde{x}}$ , welche die oszillierenden Elektronen verschiedener Stärken  $j$  in dissipativer Umgebung von nichtzentrosymmetrischer Materie beschreiben.

Die Lösung mit  $\tilde{x} = \tilde{x}(\xi)$  mit  $\xi = \bar{\omega}t + \varphi$  und  $\bar{\omega}$  erhält man in Gestalt der Reihenentwicklung  $\tilde{x}(\xi) = \sum_n \lambda^n \tilde{x}^{(n)}(\xi)$  und  $\bar{\omega}^2 = \sum_n \lambda^n \alpha_n$  deren Koeffizienten, sich aus den daraus folgenden Gleichungen bestimmen lassen. Dabei sind dann die  $\tilde{x}^{(n)}(\xi)$   $2\pi$  periodische Funktionen in  $\xi$ -abhängigkeit von  $\xi$ .

$$\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(1)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(1)} = 0, \quad (6)$$

$$\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(2)} = f(\tilde{x}^{(1)}) - \alpha_2 \frac{d^2 \tilde{x}^{(1)}}{d\xi^2}, \quad (7)$$

$$\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(3)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(3)} = \dot{f}(\tilde{x}^{(1)}) \tilde{x}^{(2)} - \alpha_3 \frac{d^2 \tilde{x}^{(1)}}{d\xi^2} - \alpha_2 \frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2}, \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(4)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(4)} &= \dot{f}(\tilde{x}^{(1)}) \tilde{x}^{(3)} + \frac{1}{2} \ddot{f}(\tilde{x}^{(1)}) (\tilde{x}^{(2)})^2 - \alpha_4 \frac{d^2 \tilde{x}^{(1)}}{d\xi^2} \\ &\quad - \alpha_3 \frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2} - \alpha_2 \frac{d^2 \tilde{x}^{(3)}}{d\xi^2}, \end{aligned} \quad (9)$$

Mit den daraus bestimmten Funktionen  $\tilde{x}^{(1)}, \tilde{x}^{(2)}, \tilde{x}^{(3)}, \dots, \tilde{x}^{(N)}$  und Größen  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \dots, \alpha_N$  lassen sich mit

$\tilde{x}(\xi) = \sum_n \lambda^n \tilde{x}^{(n)}(\bar{\omega}t + \varphi)$  die  $(N+1)$ -te Näherungslösung

für stationäre Schwingungen bestimmen, wobei

$$\bar{\omega}^2 = \sum_{n=1}^N \lambda^n \alpha_n \text{ gilt.}$$

#### 4. COMPUTATIONAL APPROACH – NUMERISCHE INTEGRATION – DETAILS.

Für die hier berichtete numerische Simulation wird der RKF Integrator 4. Ordnung [PFTV92] mit doppelter Präzession genutzt. Das simulierte System besteht aus einem nichtzentrosymmetrisch gebundenen 1-Elektronen-System welches mit ein, zwei und mehr optischen Feldern beliebiger Frequenz und beliebiger Kombinationen davon beleuchtet wird. Die Resonanzfrequenz des Systems für Silizium Grenzflächen skaliert in den atomaren Einheiten mit  $\bar{\omega}_0 = 2eV/\hbar = 3.0386(\text{fs})^{-1}$  unter Voraussetzung der Bindungsenergie des Elektrons im Silizium von 2 eV. Weitere Parameter sind rotes HeNe-Laserlicht,  $\omega_e = 2eV/\hbar = 2,978678 \text{fs}^{-1}$  der nichtlineare Koeffizient  $\alpha$  mit  $\alpha = \bar{\omega}_0^2/x_0 = (3,0386(\text{fs})^{-1})^2/200 \text{pm} = 3,0386^2(\text{fs})^{-2}/200 \text{pm} = 0,046165449(\text{fs})^{-2}(\text{pm})^{-1}$ , wobei ein typischer Atomabstand der Si-Si-Einfachbindung in Festkörpern 2,5 Å beträgt und die maximale Elektronenauslenkung mit 2 Å abgeschätzt wurde. Die spezifische Ladung des Elektrons skaliert in der Größenordnung  $2,9205 \times 10^4 \text{C/u}$ , wobei das E-Feld in V/m berücksichtigt wird. Das Beschleunigungsfeld  $-e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e$  skaliert in der Größenordnung  $10^{16} \text{pm}(\text{fs})^{-2}$ .

Es wurde das Implizite Runge Kutta Verfahren 4.ter Ordnung mit Fehlertoleranzoptimierung verwendet. Für das

initialisierte Value Werteproblem wurde dabei für die allgemeine s- Stufe der Runge Kutta Methode gemäß

$$u_{n+1} = u_n + h \sum_{i=1}^s b_i k_i \quad (10)$$

mit

$$k_i = F \left( t_n + hc_i, u_n + h \sum_{j=1}^s a_{ij} k_j \right) \quad (11)$$

angesetzt, wobei  $c_i = \sum_{j=1}^s a_{ij}$  mit  $i = 1, \dots, s$  gilt.

Die Koeffizienten  $a_{ij}$ ,  $b_i$ ,  $c_i$  wurden abhängig angesetzt und von der Methode benutzt und can dargestellt werden durch die Butcher Methode.

## 5. RESULTS FOR NONCENTROSYMMETRIC MATTER LIKE SURFACES.

### A. MICROSCOPIC HIGHER HARMONICS AND SUBHARMONIC CORRECTION PARAMETERS – Asymptotischer Aufbau des Elektronenresponse

Mit diesen Ideen lässt sich ein Ausdruck anschreiben, welcher hohe Störungstreiberterme bis zur 8. Ordnung enthält, der Form:

$$\begin{aligned} -e\lambda \tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e = & \left( \lambda \tilde{x}^{(1)} + \lambda^2 \tilde{x}^{(2)} + \lambda^3 \tilde{x}^{(3)} + \dots + \lambda^{n-1} \tilde{x}^{(n-1)} + \lambda^n \tilde{x}^{(n)} \right) \\ & + 2\gamma \left( \lambda \tilde{x}^{(1)} + \lambda^2 \tilde{x}^{(2)} + \lambda^3 \tilde{x}^{(3)} + \dots + \lambda^{n-1} \tilde{x}^{(n-1)} + \lambda^n \tilde{x}^{(n)} \right) \\ & + \tilde{\omega}_0^2 \left( \lambda \tilde{x}^{(1)} + \lambda^2 \tilde{x}^{(2)} + \lambda^3 \tilde{x}^{(3)} + \dots + \lambda^{n-1} \tilde{x}^{(n-1)} + \lambda^n \tilde{x}^{(n)} \right) \\ & + \alpha \left\{ \lambda^2 \left( \tilde{x}^{(1)} \right)^2 + 2\lambda^3 \tilde{x}^{(1)} \tilde{x}^{(2)} + \lambda^4 \left[ \left( \tilde{x}^{(2)} \right)^2 + 2\tilde{x}^{(1)} \tilde{x}^{(3)} + \dots \right] + \right. \\ & \left. + \dots + \text{high terms} \right\} \quad (12) \end{aligned}$$

mit  $\tilde{\mathbf{E}}(t) = \mathbf{E}_1(t) + \mathbf{E}_2(t) + c.c. = \mathbf{E}_1 e^{-i\omega t} + \mathbf{E}_2 e^{-i2\omega t} + c.c.$  für SHG und mit  $\lambda^1, \lambda^2, \lambda^3, \dots, \lambda^{n-1}, \lambda^n$  als die entsprechenden Näherungs- Koeffizienten um die dazugehörigen Gleichungen zu vergleichen und zu erhalten. Für jeden Wert von  $\lambda$  ergibt der obige Ansatz eine Lösung, wobei die  $\tilde{x}^{(n),surf}$  nicht von  $\lambda$  abhängig sind. Damit ist jeder Term mit gleicher Potenz in  $\lambda$  eine Lösung. Wenn  $\lambda$  groß ist, tragen nur hohe  $\tilde{x}^{(n),surf}$  bei und umgekehrt. Abhängig von der Struktur des Treiberterms entstehen höhere Harmonische  $\left( \tilde{x}^{(n)} \right)^2$  und Subharmonische  $\tilde{x}^{(n)} \tilde{x}^{(m)}$ . Bemerkenswert ist dabei, dass die optischen Feldkomponenten für SHG nur in  $-\alpha \tilde{x}^{(1)} \tilde{x}^{(1)}$  zu berücksichtigen sind, welche direkt das Feld beinhalten.

Die stationäre Lösung kann durch Fouriertransformation erhalten werden mit  $\tilde{x}_{\omega_n} = \tilde{x}_{-\omega_n}^*$  für reelle Amplituden gemäß:

$$\begin{aligned} & (-e/m_e) \mathbf{E}_1 e^{-i\omega t} + (-e/m_e) \mathbf{E}_2 e^{-i2\omega t} - \alpha (-e/m_e)^2 (\mathbf{E}_1)^2 e^{-i2\omega t} \\ & - \alpha (-e/m_e)^2 (\mathbf{E}_2)^2 e^{-i4\omega t} - \alpha (-e/m_e)^2 (\mathbf{E}_1)(\mathbf{E}_2) e^{-i3\omega t} + c.c. \\ & = (-\omega_0^2 \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega t} - 4\omega_0^2 \tilde{x}^{(2)}(2\omega_1) e^{-i2\omega t} + \dots + c.c.) \\ & + 2\gamma (-i\omega_0 \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega t} - i2\omega_0 \tilde{x}^{(2)}(2\omega_1) e^{-i2\omega t} + \dots + c.c.) \\ & + \tilde{\omega}_0^2 \left( \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega t} + \tilde{x}^{(2)}(2\omega_1) e^{-i2\omega t} + \dots + c.c. \right) \quad (13) \end{aligned}$$

Für NONCENTROSYMMETRIC MATTER finden wir für die Grundharmonische und für SHG (SFG, DFG, DC and SubHG) mit  $x = x^{(2)} + x^{(4)} + x^{(6)} + x^{(8)} + \dots + x^{(2n)}$  und  $\tilde{\omega} = \omega_0 + \omega^{(2)} + \omega^{(4)} + \dots + \omega^{(2n)}$  die frequenzabhängigen Korrekturen zur Grundresonanz und höheren Harmonischen SFG, DFG und SHG mit Gleichanteil DC in  $\mathcal{O}(\lambda^8)$  und können damit die analytische Lösung der NL optischen Differentialgleichung für resonante Erregerfrequenzen zusammen mit den Gitterinduzierten Beiträgen angeben. Die adiabatische Integration des Integrals  $\iint \ddot{x}^{(n)} + 2\gamma \dot{x}^{(n)} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(n)} + \alpha \lambda^n - \tilde{b} e^{-i\omega t}$  liefert für nichtzentrosymmetrische Materie beispielhaft angegeben für SHG folgenden Ausdruck in der Ordnung  $\mathcal{O}(\lambda^8)$  wobei die entwickelte Identität für SHG mit  $(4\omega_0^2/\omega^2) \ddot{x} + (1 - 4\omega_0^2/\omega^2) \dot{x} = \ddot{x}$  benutzt wurde, damit die Gleichung streng Null wird:

$$\begin{aligned} & \ddot{x}^{(8)} + 2\gamma \dot{x}^{(8)} + \tilde{\omega}_0^2 \tilde{x}^{(8)} + \alpha \lambda^8 = \\ & (-e/m_e) \mathbf{E}_1 e^{-i\omega t} + (-e/m_e) \mathbf{E}_2 e^{-i2\omega t} - \alpha (-e/m_e)^2 (\mathbf{E}_1)^2 e^{-i2\omega t} \\ & - \alpha (-e/m_e)^2 (\mathbf{E}_2)^2 e^{-i4\omega t} - \alpha (-e/m_e)^2 (\mathbf{E}_1)(\mathbf{E}_2) e^{-i3\omega t} + c.c. \\ & = (-\omega_0^2 \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega t} - 4\omega_0^2 \tilde{x}^{(2)}(2\omega_1) e^{-i2\omega t} + \dots + c.c.) \\ & + 2\gamma (-i\omega_0 \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega t} - i2\omega_0 \tilde{x}^{(2)}(2\omega_1) e^{-i2\omega t} + \dots + c.c.) \\ & + \tilde{\omega}_0^2 \left( \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega t} + \tilde{x}^{(2)}(2\omega_1) e^{-i2\omega t} + \dots + c.c. \right) \\ & - \lambda^2 \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{2\omega_0^2} - \lambda^4 \left( \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^3}{72\omega_0^6} \right) - \lambda^6 \frac{3539\tilde{b}^6 \alpha^5}{13824\omega_0^{10}} - \lambda^8 \frac{110377\tilde{b}^8 \alpha^7}{2985984\omega_0^{14}} \quad (14) \\ & + \left[ (1/2) \omega_0 \tilde{\omega}_{\alpha,SubHG}^{(8)} + \lambda^3 \frac{4\tilde{b}^2 \alpha^2}{3\omega_0^4} + \lambda^5 \frac{6\tilde{b}^4 \alpha^4}{\omega_0^8} + \lambda^7 \frac{163\tilde{b}^6 \alpha^6}{6\omega_0^{12}} + \mathcal{O}(\lambda^9) \right] \tilde{b} e^{-i(1/2)\omega t} \\ & + \left[ 2\omega_0 \tilde{\omega}_{\alpha,GHG}^{(8)} + \lambda^3 \frac{5\alpha^2 \tilde{b}^2}{6\omega_0^2} + \lambda^5 \frac{55\alpha^4 \tilde{b}^4}{96\omega_0^8} + \lambda^7 \frac{8245\alpha^6 \tilde{b}^6}{15552\omega_0^{12}} \right] \tilde{b} e^{-i\omega t} \\ & + \left[ 4\omega_0 \tilde{\omega}_{\alpha,SHG}^{(8)} + \lambda^2 \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{6\omega_0^2} - \lambda^4 \frac{7\tilde{b}^4 \alpha^3}{144\omega_0^6} - \lambda^6 \frac{491\tilde{b}^6 \alpha^5}{31104\omega_0^{10}} - \lambda^8 \frac{985\tilde{b}^8 \alpha^7}{139968\omega_0^{14}} \right] \tilde{b} e^{-i2\omega t} \end{aligned}$$

Die Korrektur zur Fundamentalen erhalten wir aus den Koeffizienten des Resonanzterms welcher das nichtlineare Verhalten an der Oberfläche für 1- Photonen Resonanz (Fundamentale, GHG) wiedergibt.

### GHG:

$$\tilde{\omega}_{\alpha,GHG}^{(8)}(\tilde{b}) = \left( \lambda^3 \frac{5\alpha^2 \tilde{b}^2}{12\omega_0^2} + \lambda^5 \frac{55\alpha^4 \tilde{b}^4}{192\omega_0^8} + \lambda^7 \frac{8245\alpha^6 \tilde{b}^6}{31104\omega_0^{12}} \right) + \mathcal{O}(\lambda^9) \quad (15)$$

Die Frequenzkorrektur zur höheren Harmonischen SHG (SFG, DFG) erhalten wir aus den Koeffizienten des

Resonanzterms welcher das nichtlineare Verhalten an der Oberfläche für 2-Photonen Resonanz wiedergibt.

### SHG (SFG, DFG):

$$\begin{aligned}\bar{\omega}_{\alpha,SHG}^{(8)}(\tilde{b}) &= \frac{1}{4\omega_0} \left( -\lambda^2 \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{6\omega_0^2} + \lambda^4 \frac{7\tilde{b}^4 \alpha^3}{144\omega_0^6} + \lambda^6 \frac{491\tilde{b}^6 \alpha^5}{31104\omega_0^{10}} + \lambda^8 \frac{985\tilde{b}^8 \alpha^7}{139968\omega_0^{14}} \right) + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \\ \bar{\omega}_{\alpha,SHG}^{(8)}(\tilde{b}) &= \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{24\omega_0^2} \left( -1 + \frac{7\tilde{b}^2 \alpha^2}{24\omega_0^2} + \frac{491\tilde{b}^4 \alpha^4}{5184\omega_0^6} + \frac{985\tilde{b}^6 \alpha^6}{23328\omega_0^{10}} \right) + \mathcal{O}(\lambda^{10})\end{aligned}\quad (16)$$

### DC:

$$\begin{aligned}\bar{\omega}_{\alpha,DC}^{(8)}(\tilde{b}) &= -\lambda^2 \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{2\omega_0^2} - \lambda^4 \left( \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^3}{72\omega_0^6} \right) \\ &\quad - \lambda^6 \frac{3539\tilde{b}^6 \alpha^5}{13824\omega_0^{10}} - \lambda^8 \frac{110377\tilde{b}^8 \alpha^7}{2985984\omega_0^{14}} + \mathcal{O}(\lambda^{10})\end{aligned}\quad (17)$$

### SubHG:

$$\bar{\omega}_{\alpha,SubHG}^{(8)} = -\lambda^3 \frac{8\tilde{b}^2 \alpha^2}{3\omega_0^5} - \lambda^5 \frac{12\tilde{b}^4 \alpha^4}{\omega_0^9} - \lambda^7 \frac{163\tilde{b}^6 \alpha^6}{3\omega_0^{13}} + \mathcal{O}(\lambda^9) \quad (18)$$

jeweils für  $\omega \approx \omega_0$ . Dabei ist bemerkenswert, dass es neben der Korrektur zur Grundfrequenz sich auch eine Frequenzkorrektur zur zweiten Harmonischen – SHG (SFG, DFG) und DC ergibt, welche jeweils einen negativen Skew aufweisen für nichtzentrosymmetrische Materie.

Mit dem anfänglich formulierten Ziel  $\lambda^n = 1$  kann man damit die Frequenzkorrektur für SHG und die Korrektur zur Grundfrequenz bzw. der Gleichanteil DC angeben werden. Damit erhält man zwei separate negative Skews des elektronischen Response  $\omega_{GHG}^\alpha(\tilde{b}) = \omega_0^2 + \bar{\omega}_{\alpha,GHG}^{(8)}(\tilde{b})$   $\omega_{SHG}^\alpha(\tilde{b}) = \omega_0^2 + \bar{\omega}_{\alpha,SHG}^{(8)}(\tilde{b})$ ,  $\omega_{SubHG}^\alpha(\tilde{b}) = \omega_0^2 + \bar{\omega}_{\alpha,SubHG}^{(8)}(\tilde{b})$  und  $\omega_{DC}^\alpha(\tilde{b}) = \omega_0^2 + \bar{\omega}_{\alpha,DC}^{(8)}(\tilde{b})$  bezüglich  $(\mathcal{O}(\lambda^9), \mathcal{O}(\lambda^{10}))$

Anzumerken ist, dass die Amplituden  $\tilde{b}$  und die Nichtlinearitäten  $\alpha$  jeweils als gleiche, in geraden Potenzen in der erhaltenen Korrekturgleichung einhergehen.

## B. Singularitäten NZS Materie

In diesem Abschnitt werden die möglichen nichtlinearen Resonanzfälle NZS- Materie betrachtet und mittels Singularitätsgleichungen die Frequenzkorrektur bewiesen. Nach Voraussetzung liegen die 1- bzw. 2-Photonenresonanz, d. h. allgemein die höheren Harmonischen und Subharmonischen hinreichend nahe bei der natürlichen Resonanzfrequenz.

Sortieren der einzelnen Fourierkomponenten und Klassifizierung der einzelnen Terme führt neben den neuen nichtlinearen Responses, bei der doppelten Frequenz  $\pm 2\omega_1$ ,

$\pm 2\omega_2$  auch noch zu Summen- und Differenzfrequenzen  $\pm(\omega_1 + \omega_2)$ ,  $\pm(\omega_1 - \omega_2)$  und einem Gleichanteil DC. Die nichtlineare Fourier Amplitude  $\tilde{\chi}_\alpha^{(n)}$  setzt sich also aus der Summe all dieser Komponenten zusammen. Damit ergeben sich insgesamt mit den optischen gekoppelten Feldkomponenten die exakte Lösung der nichtlinearen optischen Differentialgleichung und es lassen sich für die nichtlineare Amplituden folgender modifizierter Satz von Gleichungen für nichtzentrosymmetrische Materie in Abhängigkeit der generierten Frequenzen angeben gemäß:

### Doppelte Frequenz (SHG) $\pm(2\omega_1)$ , $\pm(2\omega_2)$ :

$$\begin{aligned}\chi_\alpha^{(8)}(2\omega_1)' &= \frac{-\alpha \left(\frac{-e}{m_e}\right)(E_1)}{\left(\omega_0^2 - \omega_1^2 - 2i\omega_1\gamma + \bar{\omega}_{\alpha,GHG}^{(8)}\right)^2} \times \\ &\quad \times \frac{\left(\frac{-e}{m_e}\right)(E_1)}{\left(-4\omega_1^2 - 4\gamma i\omega_1 + \omega_0^2 + \bar{\omega}_{\alpha,SHG}^{(8)}\right)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \quad (19) \\ &= \frac{-\alpha (e/m_e)^2 E_1^2}{\mathcal{D}^\alpha(2\omega_1)\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)} + \mathcal{O}(\lambda^{10})\end{aligned}$$

bzw.

$$\chi_\alpha^{(8)}(2\omega_2)' = \frac{-\alpha (e/m_e)^2 E_2^2}{\mathcal{D}^\alpha(2\omega_2)\mathcal{D}^\alpha(\omega_2)\mathcal{D}^\alpha(\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \quad (20)$$

mit den jeweiligen frequenzabhängigen Skewnesskoeffizienten der Anharmonizität, welche mit  $\bar{\omega}_{\alpha,GHG}^{(8)}$  die Frequenzkorrektur zur Grundharmonischen und  $\bar{\omega}_{\alpha,SHG}^{(8)}$  die Frequenzkorrektur zur zweiten Harmonischen SHG der Festkörperoberfläche berücksichtigt.

Dabei wird die Transformation der nichtlinearen Resonanzfunktion  $D(\omega) \longrightarrow \mathcal{D}^\alpha(\omega)$  vorgeschlagen, wobei zusätzlich berücksichtigt werden muss, dass  $\omega^\alpha(\tilde{b}) = \bar{\omega}_{\alpha,harmonics,DC}^{(n)eff.}(\tilde{b})$  ist.

Dies ergibt sich für den Fall, wenn die exakt auftretenden Singularitäten als Singularitätskurve in den störungstheoretischen Berechnungen berücksichtigt werden sollen. Für die nichtlineare Amplitude lässt sich damit folgender modifizierter Satz von Gleichungen für nichtzentrosymmetrische Materie angeben.

### Summenfrequenzerzeugung (SFG) $\pm(\omega_1 + \omega_2)$ :

$$\tilde{\chi}_\alpha^{(8)}(\omega_1 + \omega_2)' = \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1 E_2}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)\mathcal{D}^\alpha(\omega_2)\mathcal{D}^\alpha(\omega_1 + \omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \quad (21)$$

**Differenzfrequenzzeugung (DFG)**  $\pm(\omega_1 - \omega_2)$ :

$$\kappa_{\alpha}^{(8)}(\omega_1 - \omega_2)' = \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1 E_2^*}{\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_2)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1 - \omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \quad (22)$$

**Gleichanteil (DC):**

$$\kappa_{\alpha}^{(8)}(0)' = \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1 E_1^*}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_1)} - \frac{2\alpha(e/m_e)^2 E_2 E_2^*}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_2)\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \quad (23)$$

bzw. der komplementäre Anteil:

$$\kappa_{\alpha}^{(8)}(0)'' = \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_1}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^* \mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)} - \frac{2\alpha(e/m_e)^2 E_2^* E_2}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_2)^* \mathcal{D}^{\alpha}(\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \quad (24)$$

mit den jeweils exakten komplexen, nichtlinearen Resonanzfunktionen:

$$(\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_k))^{NLS} = \begin{cases} \text{linear} & \omega_0^2 - \frac{p}{q}\omega_k^2 + 2i\gamma\frac{p}{q}\omega_k \\ & \forall \alpha = 0 \\ \text{nonlinear} & -\frac{p}{q}\omega_k^2 + \boldsymbol{\omega}^{\alpha}(\tilde{b}) + 2i\gamma\frac{p}{q}\omega_k \\ & \forall \alpha \neq 0 \end{cases} \quad (25)$$

Bemerkenswert bei diesen Gleichungen ist, dass die Nichtlinearität in die Frequenzfunktion im Nenner eingeht und nicht, wie in der aktuellen Literatur (siehe z. B. [BRW03, Kapitel 1]), lediglich als Proportionalitätsfaktor, der die Amplitude nur Lorentz förmig beeinflusst.

Um die SHG Signale messen zu können ist es notwendig das System weit weg von ihrer Resonanzfrequenz zu betrachten. Deshalb können wir sinngemäß nach [PAWA05] die nachfolgend gezeigte Approximation mit  $\boldsymbol{\omega}^{\alpha}(\tilde{b}) = \omega_0^2 + \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{harmonics, DC}}^{(n)\text{eff}}(\tilde{b})$  entwickeln:

$$\frac{-\alpha(e_j/m_e)^2}{-(p/q)\omega_k^2 + \boldsymbol{\omega}^{\alpha}(\tilde{b})} \approx \frac{-\alpha(e_j/m_e)}{\boldsymbol{\omega}^{\alpha}(\tilde{b})} = \frac{(e_j/m_e)}{\boldsymbol{\omega}^{\alpha}(\tilde{b})} \quad (26)$$

Zur Bestimmung der exakten nichtlinearen Amplitude im Fourierraum muss auch der Gleichanteil in den Ansatz berücksichtigt werden. Damit erhält man mit den jeweils exakten komplexen, nichtlinearen effektiven Resonanzfunktionen  $((\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_k))^{NLS})' = -(p/q)\omega_k^2 + \boldsymbol{\omega}^{\alpha}(\tilde{b}) + 2i\gamma(p/q)\omega_k$

die exakte Lösung der nichtlinearen optischen Differentialgleichung, hier beispielhaft für SHG angegeben. Unter Berücksichtigung der Gleichanteile erhält man damit insgesamt als nichtlineare Lösung:

$$\begin{aligned} \kappa_{\alpha}^{(8)}(2\omega_1)' &= \frac{-\alpha(-e/m_e)^2 E_1^2}{\mathcal{D}^{\alpha}(2\omega_1)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)} \\ &+ \frac{-2\alpha(-e/m_e)^2 E_1 E_1^*}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_1)} - \frac{2\alpha(-e/m_e)^2 E_2 E_2^*}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_2)\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \\ &= \frac{(-e/m_e) E_1}{\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)} \times \frac{(-e/m_e) E_1}{\mathcal{D}^{\alpha}(2\omega_1)} \\ &- \frac{2(-e/m_e)^2 E_1 E_1^*}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_1)} - \frac{2(-e/m_e)^2 E_2 E_2^*}{\mathcal{D}^{\alpha}(0)\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_2)\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \end{aligned} \quad (27)$$

mit den jeweiligen effektiven nichtlinearen Frequenzkorrekturen für die Fundamentale, SHG, SubHG und DC:

**Effective GHG:**

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(7)\text{eff}}(\tilde{b}) &= \frac{1}{\alpha} \left( (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(3)})' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(5)})' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(7)})' \right) + \mathcal{O}(\lambda^9) \\ \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(7)\text{eff}}(\tilde{b}) &= \left( (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(3)\text{eff}}(\tilde{b}))' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(5)\text{eff}}(\tilde{b}))' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(7)\text{eff}}(\tilde{b}))' \right) + \mathcal{O}(\lambda^9) \\ \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{GHG}}^{(7)\text{eff}}(\tilde{b}) &= \left( +\lambda^3 \frac{5\alpha^2 \tilde{b}^2}{12\omega_0^3} + \lambda^5 \frac{55\alpha^3 \tilde{b}^4}{192\omega_0^9} + \lambda^7 \frac{8245\alpha^5 \tilde{b}^6}{31104\omega_0^{13}} \right) + \mathcal{O}(\lambda^9) \end{aligned} \quad (28)$$

Die Frequenzkorrektur zur höheren Harmonischen SHG (SFG, DFG) erhalten wir aus den Koeffizienten des Resonanzterms welcher das nichtlineare Verhalten an der Oberfläche für 2-Photonen Resonanz wiedergibt.

**Effective SHG (SFG, DFG):**

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{SHG}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}) &= \frac{1}{4\alpha\omega_0} \left( -\lambda^2 \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{6\omega_0^2} + \lambda^4 \frac{7\tilde{b}^4 \alpha^3}{144\omega_0^6} + \lambda^6 \frac{491\tilde{b}^6 \alpha^5}{31104\omega_0^{10}} + \lambda^8 \frac{985\tilde{b}^8 \alpha^7}{139968\omega_0^{14}} \right) \\ \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{SHG}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}) &= + \frac{\tilde{b}^2}{24\omega_0^3} \left[ -\lambda^2 + \lambda^4 \frac{7\tilde{b}^2 \alpha^2}{24\omega_0^4} + \lambda^6 \frac{491\tilde{b}^4 \alpha^4}{5184\omega_0^8} + \lambda^8 \frac{985\tilde{b}^6 \alpha^6}{23328\omega_0^{12}} \right] \\ \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{SHG}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}) &= \frac{\tilde{b}^2}{24\omega_0^3} \left( -1 + \frac{7\tilde{b}^2 \alpha^2}{24\omega_0^4} + \frac{491\tilde{b}^4 \alpha^4}{5184\omega_0^8} + \frac{985\tilde{b}^6 \alpha^6}{23328\omega_0^{12}} \right) + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \end{aligned} \quad (29)$$

**Effective DC für GHG:**

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}) &= -\frac{1}{2\alpha} \left( (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(2)})' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(4)})' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(6)})' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(8)})' \right) \\ \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}) &= \left( (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(2)\text{eff}}(\tilde{b}))' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(4)\text{eff}}(\tilde{b}))' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(6)\text{eff}}(\tilde{b}))' + (\boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}))' \right) + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \\ \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}) &= -\frac{1}{2\alpha} \left( -\lambda^2 \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{2\omega_0^2} - \lambda^4 \left( \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^3}{72\omega_0^6} \right) \right. \\ &\quad \left. - \lambda^6 \frac{3539\tilde{b}^6 \alpha^5}{13824\omega_0^{10}} - \lambda^8 \frac{110377\tilde{b}^8 \alpha^7}{2985984\omega_0^{14}} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \right) \\ \boldsymbol{\omega}_{\alpha, \text{DC}^{\text{GHG}}}^{(8)\text{eff}}(\tilde{b}) &= -\left( -\lambda^2 \frac{\tilde{b}^2}{4\omega_0^2} - \lambda^4 \left( \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^2}{144\omega_0^6} \right) \right. \\ &\quad \left. - \lambda^6 \frac{3539\tilde{b}^6 \alpha^4}{27648\omega_0^{10}} - \lambda^8 \frac{110377\tilde{b}^8 \alpha^6}{5971968\omega_0^{14}} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \right) \end{aligned} \quad (30)$$

**Effective DC für SHG:**

$$\begin{aligned}
\bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(8)eff.}(\bar{b}) &= -\frac{2}{\alpha} \left( \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(2)}(\bar{b})' + \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(4)}(\bar{b})' + \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(6)}(\bar{b})' + \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(8)}(\bar{b})' \right) \\
\bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(8)eff.}(\bar{b}) &= \left( \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(2)eff.}(\bar{b})' + \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(4)eff.}(\bar{b})' + \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(6)eff.}(\bar{b})' + \bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(8)eff.}(\bar{b})' \right) \\
\bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(8)eff.}(\bar{b}) &= -\frac{2}{\alpha} \left( -\lambda^2 \frac{\tilde{b}^2 \alpha}{2\omega_0^2} - \lambda^4 \left( \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^3}{72\omega_0^6} \right) + \right. \\
&\quad \left. -\lambda^6 \frac{3539\tilde{b}^6 \alpha^5}{13824\omega_0^{10}} - \lambda^8 \frac{110377\tilde{b}^8 \alpha^7}{2985984\omega_0^{14}} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \right) \\
\bar{\omega}_{\alpha,DC^{SHG}}^{(8)eff.}(\bar{b}) &= -\left( -\lambda^2 \frac{\tilde{b}^2}{\omega_0^2} - \lambda^4 \left( \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^2}{36\omega_0^6} \right) \right. \\
&\quad \left. -\lambda^6 \frac{3539\tilde{b}^6 \alpha^4}{6912\omega_0^{10}} - \lambda^8 \frac{110377\tilde{b}^8 \alpha^6}{1492992\omega_0^{14}} + \mathcal{O}(\lambda^{10}) \right)
\end{aligned} \tag{31}$$

### Effective SubHG:

$$\bar{\omega}_{\alpha,SubHG}^{(8)eff.}(\bar{b}) = \left( -\lambda^3 \frac{8\tilde{b}^2 \alpha}{3\omega_0^5} - \lambda^5 \frac{12\tilde{b}^4 \alpha^3}{\omega_0^9} - \lambda^7 \frac{163\tilde{b}^6 \alpha^5}{3\omega_0^{13}} + \mathcal{O}(\lambda^9) \right) \tag{32}$$

Aus den Gleichungen ist ersichtlich, dass der Nichtlinearitätsparameter  $\alpha$  sich direkt auf die Frequenzkorrektur zur Grundresonanz auswirkt. Zudem wirken auf die Grundfrequenz nur hohe DC- Glieder aus, ganz im Gegensatz zur zweiten Harmonischen SHG, auf die alle DC Glieder Einfluss nehmen und unabhängig vom Nichtlinearitätsparameter  $\alpha$  im Zähler sind.

Damit lässt sich die exakte Lösungsstruktur für die nichtlineare Amplitude, aber auch zudem noch für die nichtlineare Suszeptibilität bzw. Brechungsindex, sowie der nichtlinearen Polarisation in den jeweiligen Näherungen finden.

Mit den gewonnenen Erkenntnissen ist es jetzt möglich, die nichtlineare Optik durch einen extrem kompakten Satz von nichtlinearen, makroskopischen optischen Response Tensoren

$\chi_{\alpha}^{(2N)'} , \mathcal{P}_{\alpha}^{(2N)'} , \mathcal{E}_{\alpha}^{(2N)'}$  und  $n_{\alpha}^{(2N)'}$  N- ter gerader Ordnung exakt analytisch darzustellen, beispielsweise gezeigt für SFG (SHG) komplexkonjugierter Felder.

$$\begin{aligned}
\chi_{\alpha}^{(8)'}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2)^* &= \frac{N_v(e^3/m_e^2)}{(\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^*)' (\mathcal{D}^{\alpha}(+\omega_2)^*)' (\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1 + \omega_2)^*)'} + \\
&\quad + \frac{N_v(e^3/m_e^2)}{(\mathcal{D}^{\alpha}(0)^*)' (\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^*)' (\mathcal{D}^{\alpha}(-\omega_1)^*)'} + \mathcal{O}(\lambda^{10})
\end{aligned} \tag{33}$$

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}_{\alpha}^{(8)'}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2)^* &= 1 + \frac{4\pi N_v(e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^* \mathcal{D}^{\alpha}(+\omega_2)^* \mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1 + \omega_2)^*} + \\
&\quad 1 + \frac{4\pi N_v(e^3/m_e^2)}{(\mathcal{D}^{\alpha}(0)^*)' (\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^*)' (\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^*)'} + \mathcal{O}(\lambda^{10})
\end{aligned} \tag{34}$$

$$\begin{aligned}
n_{\alpha}^{(2N)'}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2)^* &= \sqrt{1 + \frac{4\pi N_v(e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^* \mathcal{D}^{\alpha}(+\omega_2)^* \mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1 + \omega_2)^*}} + \\
&\quad + \sqrt{1 + \frac{4\pi N_v(e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^* \mathcal{D}^{\alpha}(\omega_1)^* \mathcal{D}^{\alpha}(0)^*}} + \mathcal{O}(\lambda^{10})
\end{aligned} \tag{35}$$

Die Betrachtungsweisen, wie sie in dieser Arbeit vorgenommen wurden, können analog für jegliche lineare und nichtlineare Materieanregung mit beliebiger Frequenz und in jeder beliebigen Kombination davon angewandt werden. Diese Modellbildung stellt eine enorme Verbesserung des bisherigen nichtlinearen Modells dar (siehe z. B. [BRW03, Kapitel 1]), in der hier jetzt die Nichtlinearität nicht nur approximiert wurde, sondern in ihrem innersten Wesen exakt mathematisch berücksichtigt wurde.

In den nachfolgenden Abbildungen sind diese Ergebnisse anschaulich illustriert und bestätigen die entwickelten Gleichungen hervorragend.

## 6. DISCUSSION OF THE RESULTS:

Zur weiteren Erforschung nichtzentrosymmetrischer Materie werden die gefunden mathematischen Strukturen in der zugrundeliegenden Modellbildung betrachtet und deren berechnete Konfiguration in den Abbildungen (1) bis (8) dargestellt

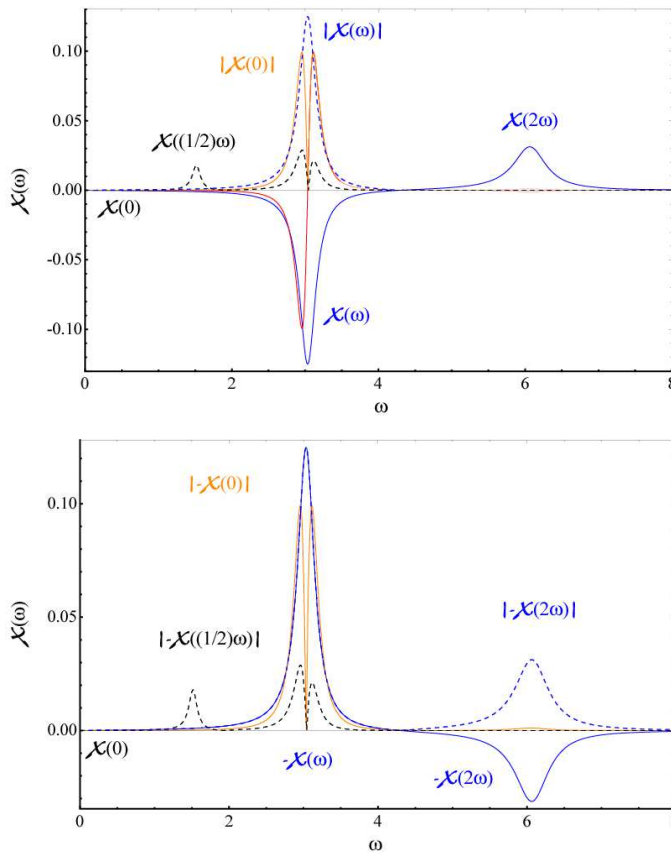
In den bisherigen Lösungen siehe z. B. Boyd wird alternativ die nichtlineare optische Wellengleichung angenähert wiedergegeben. Die dabei erhaltenen Gleichungen / Lösungen entsprechen dabei einer Summe von harmonischen Approximationen, welche lediglich einen Nichtlinearitätsparameters  $\alpha$  als Faktor berücksichtigen und nur durch diesen  $\alpha$  Faktor von der linearen Lösung unterscheiden.

Wir vergleichen in Abb. 1 diese erhaltenen Lösungen von z. B. [BRW03, Kapitel 1] mit den von uns numerisch erhaltenen Lösungen und den erhaltenen exakt analytischen Lösungen.

Das nichtzentrosymmetrische System, welches dabei zunächst zwei unabhängigen photonischen Feldern, mit den Fourierkomponenten  $\omega_1$  und  $\omega_2$  ausgesetzt war, wird im Folgenden für monochromatische Fourierkomponenten betrachtet. Zur Einordnung dieser Lösungen wird das nichtzentrosymmetrische System zusätzlich mittels computerphysikalischer Methoden numerisch modelliert. Die Abbildungen **1 (a), (b)** zeigen die charakteristischen Eigenschaften, Variationen der störungstheoretisch ermittelten komplexen nichtlinearen Amplitude parallel und antiparallel zur Nichtlinearität  $\alpha$ , ( $\alpha > 0$  bzw.  $\alpha < 0$ ) in Abhängigkeit ihrer photonischen Fourierkomponenten. Es werden zunächst nur kleine optische Felder zugelassen um chaotisches Systemverhalten im Fourierraum auszuschließen, sodass eine Untersuchung des Systems im nicht chaotischen Regime sichergestellt werden kann. Für das so konfigurierte System erhält man zunächst für monochromatische Photonenfelder  $\chi_{\alpha}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2 = 2\omega_1)'$ , neben der 1- Photonen Resonanz an der Systemfrequenz eine weitere charakteristische Resonanz an der halben natürlichen



Systemfrequenz, welche durch zwei resonante Photonen hervorgerufen werden (schwarzer Kurvenverlauf, gestrichelt). Die 1-Photonen Resonanz zeichnet sich durch eine Nullstelle, d. h. einen unendlich schmalen Amplitudeneinbruch zwischen den beiden Emissionskanälen aus. Zudem zeigt sich an der Fundamentalen eine rotverschobene Flankenabsenkung. Dies zeigt anschaulich, dass der nichtlineare Elektronenresponse ein schmales transparentes Frequenzfenster besitzt und letztendlich niederfrequenter Strahlung emittiert. Dieses durch Phasenfokussierung erzeugte transparente Fenster ist eine charakteristische Signatur für bosonische Systeme. In der zugrundegelegten Modellbildung, entspricht das dem, 1s - 2s-Übergang.



**Abbildung 1 (a), (b):** Charakteristischer Verlauf der parallelen,  $a > 0$  (oben), bzw. antiparallelen ( $a < 0$ ) (unten) komplexen nichtlinearen Amplitude (blau) und deren nichtlinearer Betrag (orange). Der qualitative Verlauf ist oben zusätzlich mit eingezeichnet (rote Kurve). Für 1-Photonen Resonanz, vor Reziprozierung der Fourierkoeffizienten erhält man neben einem Transparenzfenster eine blau- und rotverschobene Flankendeformation. Dabei überträgt der höherfrequente Emissionskanal die Information schwächer. Dies deutet auf eine asymmetrische Amplitudenentwicklung hin, in der die Amplitudeninformation zu niederfrequenten Bereichen verschoben wird (negativer Skew). Die blaue Kurve

(gestrichelt) zeigt jeweils das übliche Resonanzverhalten, welche sich auszeichnet für reziproke Fourierkoeffizienten.

Zur Veranschaulichung der gebildeten Strukturen werden diese zusätzlich in der 2-dimensionalen Fourierebene und im Raum dargestellt. Die zugrundeliegenden Berechnungen wurden dazu in höherer dissipativer Umgebung durchgeführt, um die markanten Effekte besser zeigen zu können. Beachtenswert ist die zusätzliche 2-Photonen Resonanz bei  $\omega = \omega_0/2$  auf der rotverschobenen Seite des Spektrums, welche zunehmend ausbleicht bzw. die blauverschobene 2-Photonen Resonanz für optische c. c.-Felder, die sich zunehmend färbt und das jeweils verstärkt für hohe Ordnungen.

Das Transparenzfenster der deutet darauf hin, dass die Grundharmonischen tiefer im Bulk erzeugt wird als bislang angenommen. Werden jetzt durch Vielwellenmischen höhere Harmonische eingestrahlt, beispielsweise die 4. Harmonische, so zeigt sich, dass auch die zweite Harmonische ein Transparenzfenster hat, welches darauf hindeutet, dass SHG nicht nur allein direkt an der Oberfläche, sondern für HHG-Anregung aus getrennten Laserquellen viel tiefer im Bulkmaterial erzeugt wird als bislang vermutet. Dadurch erst kann das SHG Emissionssignal stabil erzeugt und sichtbar werden, da die nichtzentrosymmetrische Materie die Oberflächenwellen besser durchlässt.

$$\begin{aligned} x(2\omega_1 + 2\omega_2) &= \frac{-2(e/m_e)^2 \alpha E_1 E_2}{\mathcal{D}^\alpha(2\omega_1 + 2\omega_2) \mathcal{D}^\alpha(2\omega_1) \mathcal{D}^\alpha(2\omega_2)} \\ &= \frac{-2(e/m_e)^2 \alpha E_1 E_2}{\mathcal{D}^\alpha(4\omega_1) \mathcal{D}^\alpha(2\omega_1) \mathcal{D}^\alpha(2\omega_1)} \quad \forall \omega_1 = \omega_2 \end{aligned} \quad (36)$$

sowie insgesamt:

$$\begin{aligned} x(\omega_1 + \omega_2 + 2\omega_1 + 2\omega_2) &= \frac{-2(e/m_e)^2 \alpha E_1^\alpha E_2^\alpha E_1^{2\alpha} E_2^{2\alpha}}{D(\omega_1 + \omega_2 + 2\omega_1 + 2\omega_2) D(\omega_1) D(\omega_2) D(2\omega_1) D(2\omega_2)} \\ &= \frac{-2(e/m_e)^2 \alpha E_1^\alpha E_2^\alpha E_1^{2\alpha} E_2^{2\alpha}}{D(6\omega_1) D(\omega_1) D(\omega_1) D(2\omega_1) D(2\omega_1)} \quad \forall \omega_1 = \omega_2 \end{aligned} \quad (37)$$

Die nachfolgende 3D-Darstellung Abb. 2 veranschaulicht dieses Ergebnis.

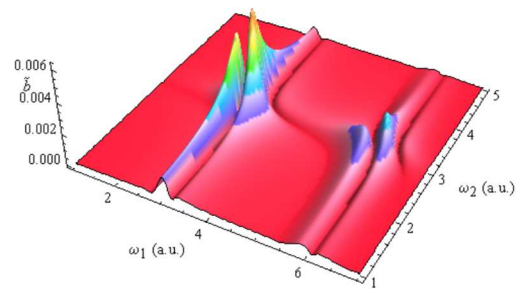


Fig. 2: Transparenzfenster an der Grundharmonischen und SHG

Nachfolgende Abbildungen zeigen die Numerische Lösung und die Singularitätsgleichungen für die verschiedenen Ordnungen der Frequenzkorrekturen in  $\mathcal{O}(\lambda^3, \lambda^4)$ ,  $\mathcal{O}(\lambda^5, \lambda^6)$ ,  $\mathcal{O}(\lambda^7, \lambda^8)$  beispielhaft für SHG, GHG und SubHG. Daraus lässt sich sehr gut erkennen, dass die Näherung kleiner Größen bis zur 8. Ordnung notwendig war, um die NL optische Differentialgleichung hinreichend genau zu lösen. Somit stellt die 8. Näherung die beste Näherung dar. Daraus ist ersichtlich, dass die 8. Näherung vollständig ausreichend ist um den SKEW über die singularitätskurven hinreichend genau darzustellen.

Wir können wie in Abbildung 3 anschaulich gezeigt, beobachten, dass die von uns erhaltenen Lösungen die Grundharmonische sowie die 1.- te, 2.- te, 3.- te. SubHG, sowie die 2. Harmonische (SHG) quantitativ (SubHGs) sowie qualitativ (Frequenzskew) verbessert. Die bislang unzureichende und limitierende klassische Beschreibung der Nichtlinearen Wechselwirkung wird damit aufgehoben.

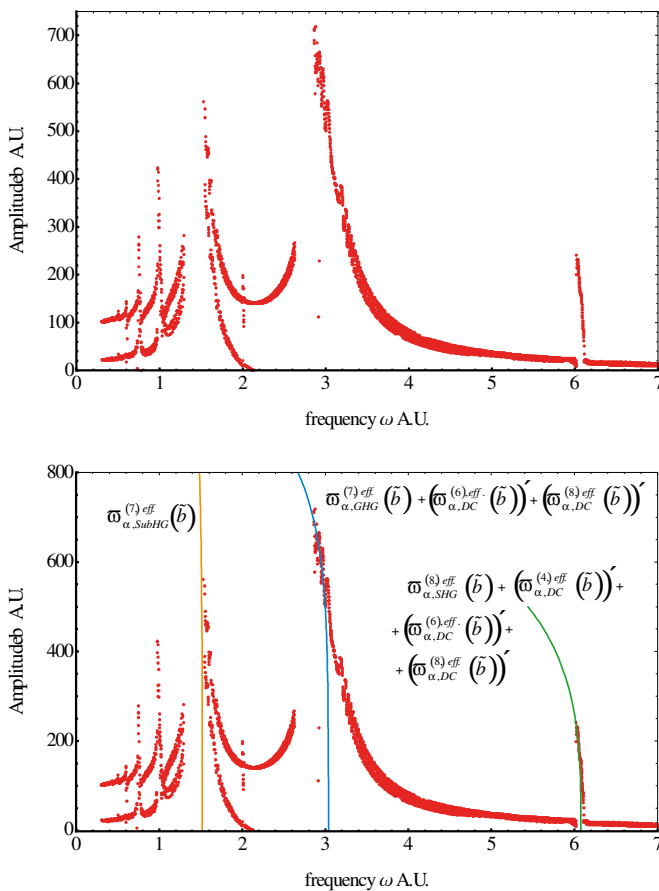


Abb. 3 zeigt die numerische Lösung der NL optischen Differentialgleichung mit den analytisch bestimmten

Singularitäten (SKEW) in  $\mathcal{O}(\lambda^8)$ , unter Berücksichtigung des Gleichanteils DC, für die Hauptresonanz, die 1. SubHG und von SHG (von links nach rechts). Der Hauptbeitrag des Gleichanteils liefert der DC 6. Ordnung.

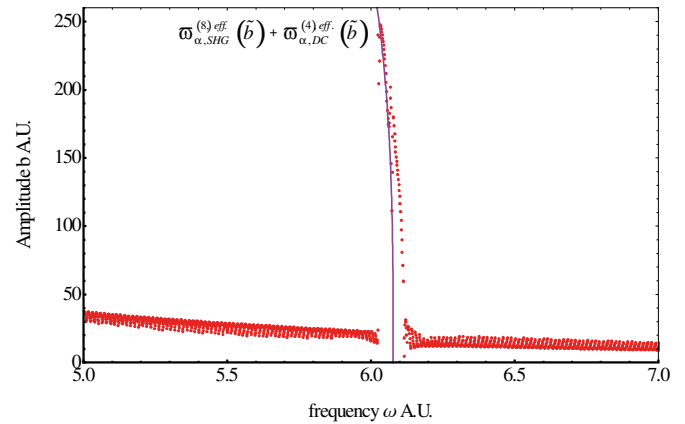


Abb. 4 zeigt die zweite Harmonische (SHG) und die mit dem Gleichanteil (DC) 4. Ordnung gewichtete Singularitätskurve. Die Abbildung illustriert den Skew nichtzentrosymmetrischer Materie zusammen mit den Singularitätslinie. Die Singularitätslinie spiegelt die Skewness der zweiten Harmonischen wieder. Dies macht deutlich, dass der Skewness- Effekt abhängig von der Art und Ordnung (SubHG und HHG) der Singularitätsstelle, bzw. deren behobene Singularität, unterschiedlich ausgeprägt ist. Damit wird die entwickelte analytische Lösung hervorragend bestätigt.

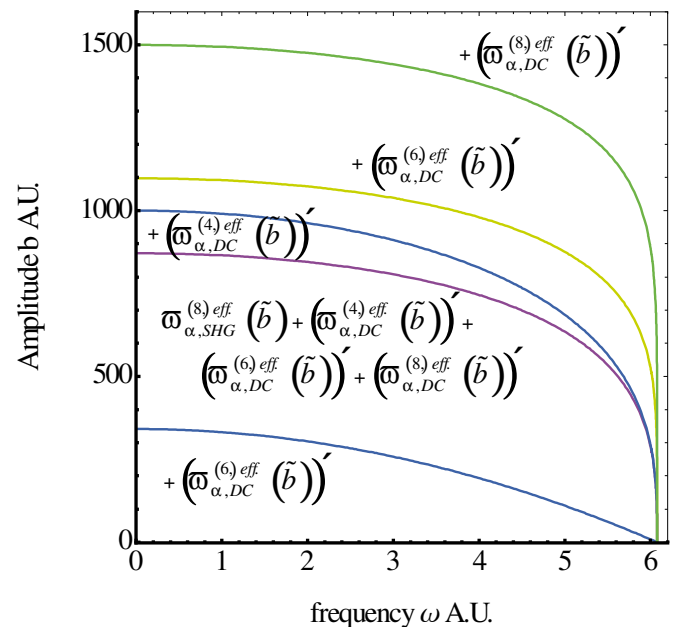


Abb. 5 illustriert die verschiedenen DC -Ordnungen für die zweite Harmonische (SHG). Dies zeigt anschaulich, dass die

Gewichtung mit dem Gleichanteil (DC) 4. Ordnung und höher für die optimale Skew- Näherung notwendig ist.

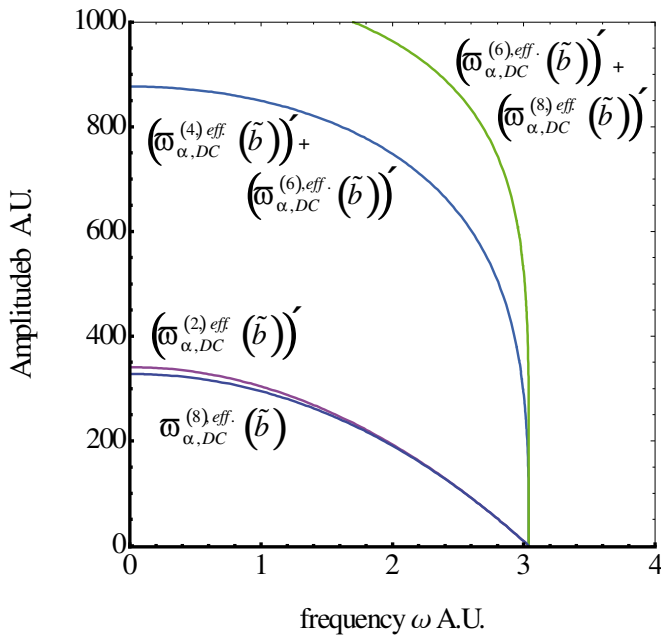


Fig. 7 illustriert die effektiven DC Anteile der Grundharmonischen für verschiedene Ordnungen. Daraus kann offensichtlich abgelesen werden, dass die DC- Terme einen signifikanten Einfluss auf die Nichtlinearität haben und berücksichtigt werden müssen. Vgl. hierzu die reinen GHG Terme unten.

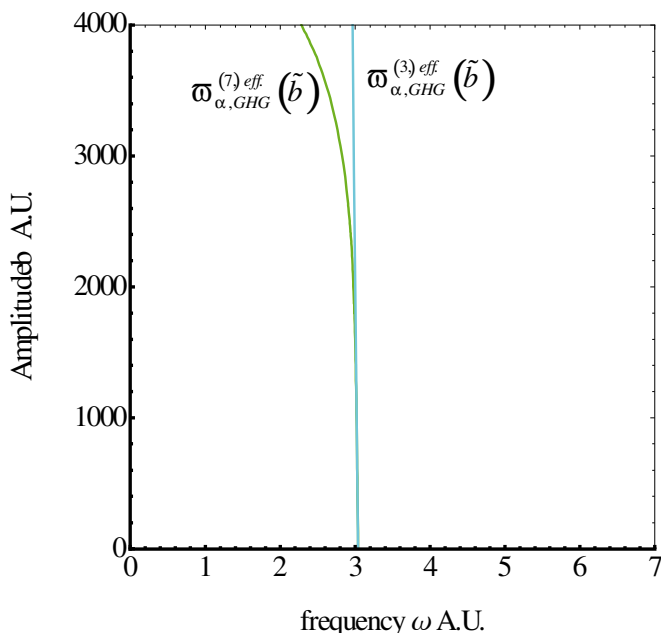


Fig. 8 zeigt die Entwicklung der reinen effektiven Nichtlinearität für die Näherung dritter Ordnung und 7. Ordnung für die Grundharmonische. Daraus wird sofort offensichtlich, dass die 7. Näherung notwendig ist um die

Grundharmonische hinreichend genau zu beschreiben. Zudem zeigt sich, dass die Nichtlinearität (Skewness) mit den höheren Harmonischen zunimmt.

**Remark:** Die Heisenbergsche Unschärferelation ist aus der Quantenmechanik mit  $\delta p \delta x \geq \hbar$  bekannt. Bezogen auf das elektromagnetische Feld kann diese zur Beziehung  $\delta P \delta Q \geq \hbar$  umgeschrieben werden. Dabei ist die Amplitude durch den Ortsvektor  $Q$  und die Phase durch  $P$  gekennzeichnet. Im Unschärfeprodukt  $\delta P \delta Q$  lässt sich  $\delta P$  oder  $\omega \delta Q$  auf Kosten der jeweils anderen Variable reduzieren. Die verbleibende Unschärfe lässt sich mithilfe der nichtlinearen Korrekturfaktoren modellieren. Das Heisenberg'sche Unschärfeproblem, der Unmöglichkeit der gleichzeitigen Bestimmung von Ort und Impuls eines Teilchens, lässt sich damit umgehen. Dadurch ist es nicht nur möglich die Form des Unschärfebereichs weiter zu manipulieren und einzuschränken sondern gänzlich in Abhängigkeit der nichtlinearen Ordnung nichtlinear zu approximieren. Die Amplitude im Impulsraum bleibt auch bei nichtlinearer Verschiebung erhalten. Wird die Amplitude konstant gehalten, so lässt sich die Phase, welche sich analog der Singularitätskurven verschiebt, nichtlinear modellieren. Mithilfe der entwickelten Formeln der verbesserten nichtlinearen Modellbildung kann man die Unschärferelation zwischen Impuls und Ort beschreiben. Die entwickelten Formeln heben die Unschärferelation auf.

Durch die ermittelten Singularitätskurven, resultierend aus dem Skew, wird der Ort  $x$  und die (tatsächliche) Frequenz  $\omega$  eines Teilchens gleichzeitig bestimmbar und somit vorhersagbar. Dies ist die physikalische Interpretation der erhaltenen Lösungen. Diese können auf unsere Problemlösung formuliert

$$\begin{aligned} \Delta x \Delta p &\geq \hbar / 2 \geq h / 4\pi \\ \Delta x(\text{AMP}) \times \frac{\Delta \omega(\text{SINGUL}) \times \hbar}{c} &\geq h / 4\pi \\ \Delta x(\text{AMP}) \frac{\Delta \omega(\text{SINGUL})}{c} &\geq 1 / 4\pi \\ \Delta x(\text{AMP}) \Delta \omega(\text{SINGUL}) &\geq c / 4\pi \end{aligned} \quad (38)$$

Damit kann diese fundamentale Grenze der Messbarkeit welche von Heisenberg formuliert wurde in der (symbolischen) Aussage ausgehebelt werden.

## 7. SUMMARY

Es gab mehrere Gründe für diese Arbeit. Anfänglich war das Ziel die höheren Harmonischen, insbesondere die "Second Harmonic Generation" (SHG) und das damit zusammenhängende "Simplified bond- hyperpolarizability

model" (SBHM) zu verstehen, um Versuche u. a. über SHG und DFG einführen zu können. Doch schnell wurde offensichtlich, dass das zugrundeliegende aktuelle nichtlineare Modell (siehe, z. B. [BRW03]) sehr ungenau und nicht allgemeingültig war. Speziell die frequenzabhängige Amplitude und die Entstehung von höheren Photonenresonanzen in der Subharmonischen- bzw. höheren Harmonischen Region sowie deren genaue zugrundeliegende physikalische Theorie wurden dadurch nur sehr unbefriedigend wiedergegeben. Aus diesem Grund wurde die Theorie allgemein betrachtet, welche diese Mankos behebt und die Ergebnisse zu einer neuen, genaueren Modellbildung führt. Speziell die Berücksichtigung der frequenzabhängigen Amplitude ist interessant, weil es zusätzlich den Weg für eine atomare Interpretation der nichtlinearen Optik von nichtzentrosymmetrischer Materie erklärt. Zur Lösung dieses nichtlinearen optischen Problems wurden ein störungstheoretischer sowie ein analytischer Ansatz gewählt und numerisch überprüft. Die störungstheoretische Lösung liefert die natürlichen Resonanzen des Systems. Um sicherzustellen, dass alle Eigenschaften des nichtlinearen Responses berücksichtigt werden, wurde die Singularität nichtzentrosymmetrisch gebundener Materieelektronen mathematisch exakt modelliert. Zunächst wurde gefunden, dass eine einfache Berechnung mittels Störungsrechnung, die Amplitude des Elektronenpartikels im nichtlinearen Regime nur für lorentzartige Materialien typische Verteilungen aufweist und sich proportional zum Nichtlinearitätsparameter  $\alpha$  verhält. Die Numerische Lösung lieferte aber einen "exotischen" Skewness- Effekt, der nur in der Nichtlinearität begründet ist. Dieses Dilemma wurde schließlich analytisch gelöst. In nichtdissipativer Umgebung, in der die Singularitätslinie nicht mehr senkrecht verläuft, wie für Lorentz- Materialien üblich, sondern in Abhängigkeit der Materiesymmetrie eine signifikante Kurve ergibt. Die ermittelten Skewnesskoeffizienten weisen eine Amplituden Nichtlinearitätsabhängigkeit auf. Dieses Problem wurde schließlich mit den störungstheoretischen Ergebnissen gelöst. Die Antwort ist, dass sowohl die störungstheoretischen Terme, als auch die nichtlinearen Skewnesskoeffizienten den Nichtlinearitätsparameter enthalten. Letztendlich verbleibt damit eine lineare  $\alpha$  - Abhängigkeit in der Frequenzfunktion im Nenner, dessen Ergebnis hervorragend durch die Numerische Lösung bestätigt wird. Aus diesen Erkenntnissen heraus konnten zugunsten künftiger Forschungsvorhaben verbesserte Ausdrücke für die nichtlineare Amplitude, Suszeptibilität,

Brechungsindex und Polarisation entwickelt werden. Diese mathematischen Konfigurationen zeigen ausdrücklich in den einzelnen Frequenz- Beiträgen eine lineare Abhängigkeit des Nichtlinearitätsparameters im Nenner. Dadurch kann die Skewness berücksichtigt werden. Im Prinzip sollte man damit alle NLO- Phänomene beschreiben können. Als weitere Ergebnisse dieser Arbeit wurden auch andere Aspekte der nichtlinearen Optik herausgearbeitet. So ergibt sich für die natürliche Fundamentale des Systems ein Transparenzfenster, ebenso für die höheren Harmonischen und hohen Harmonischen. Dies weist darauf hin, dass die höheren Harmonischen viel tiefer im Bulk erzeugt werden als bislang angenommen.

In Anwesenheit der 2- Photonen Resonanz ergeben sich ein deformierter rotverschobener Übertragungskanal niedrigerer Übertragungsleistung und ein blauverschobener leistungsstärkerer Übertragungskanal, was bereits auf eine asymmetrische Amplitudenentwicklung schließen ließ. Diese asymmetrische Verteilung wird durch Erzeugung höherer Harmonischer wieder behoben.

Weiteres können diese erhaltenen "exotischen" Materieantworten nach den bisherigen Erkenntnissen darin begründet sein, dass Oberflächen zur Stabilisierung ihre Energie mittels negativer Skewness absenken können und somit in die Lage versetzt werden höhere Energien auszuhalten, bevor ihre Struktur, z. B. durch Schmelzen, zerstört wird. Zuletzt wurden Ergebnisse bezüglich der Heisenberg'schen Unschärfe- Problematik präsentiert.

## References

- [RWB99] R. W. Boyd, *J. Mod. Opt.* **46**, 367, 1999
- [PFTV92] Press, W. H., B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling, *Numerical Recipes in C*, 2nd ed., Press Syndicate of the University of Cambridge, 1992.
- [BSMM08] Bronstein, I. N., K. A. Semendjajew, G. Musiol, H. Mühlig, *Taschenbuch der Mathematik*, 7., vollständig überarbeitete und ergänzte Auflage, Verlag Harri Deutsch, Frankfurt am Main, (2008).