COMPLEX NONLINEAR FOURIER OPTICS: NONLINEAR SINGULARITIES OF SURFACE SECOND HARMONIC AND BULK THIRD HARMONIC GENERATION AND THEIR INTERFACE BY NONCENTROSYMMETRIC AND CENTROSYMMETRIC MEDIA – NEW SOLUTION OF MIXED NONLINEAR OPTICAL EQUATION HIGH ORDER

Peter Krampl[1*]

[1] ©2011, xxx, xxx, Germany
[1] E-mail: *p.krampl@t-online.de* (P. Krampl).
[*] Corresponding author.

Received xxxxxx
Accepted for publication xxxxxx
Published xxxxxx

Abstract

In this paper, we show a formulation of the nonlinear spectrum that predicts the real behavior of multiphoton matter (Centro Z.S. and noncentrosymmetric N.Z.S) interaction for the extremely nonlinear regime. In addition, it will be shown how this multiple nonlinear optical equation can be combined to describe the nonlinear dynamics in the time and Fourier domain for high harmonics of even and odd order and their interfaces. In addition to surfaces SHG and the bulk material with BULK THG, their interface will be investigated with their respective real damping behavior. With these expressions can be optical response tensors such as the nonlinear dispersion accurately predict.

In diesem Paper zeigen wir eine Formulierung des nichtlinearen Spektrums, welche das reale Verhalten der Multiphotonen- Materie (Zentro- Z. S. und Nichtzentrosymmetrische N.Z.S) Wechselwirkung für das extrem nichtlineare Regime vorhersagt. Zudem wird gezeigt, wie diese multiple nichtlineare optische Gleichung kombiniert werden kann zur Beschreibung der nichtlinearen Dynamik in der Zeit- und Fourier- Domäne für hohe Harmonische gerader sowie ungerader Ordnung und deren Schnittstellen (Interfaces). Dazu wird neben Oberflächen SHG und dem Volumenmaterial mit BULK THG auch deren Schnittstelle unter Hinzunahme ihres jeweiligen realen Dämpfungsverhaltens untersucht. Mit diesen erhaltenen Ausdrücken lassen sich optische Responsetensoren wie z. B. die nichtlineare Dispersion exakt vorhersagen.

Keywords: Condensed matter, Photonics, Nonlinear Optics, Laser, SHG, THG, High Harmonics, Subharmonics

1. INTRODUCTION.

Die in den letzten Jahren veröffentlichten theoretischen und experimentellen wissenschaftlichen Aufsätze [PA04, AHPPW03, PWA02, HPA03] haben mich veranlasst, das Verhalten von nichtzentrosymmetrisch gebundenen Elektronen im nichtlinearen Regime zu untersuchen. Diese sind in dieser Arbeit insbesondere die Generation höherer Harmonischer an nichtzentrosymmetrischer und zentrosymmetrischer Materie und ihren Schnittstellen. Bislang gibt es keine analytische Lösung der Bewegungsgleichung für nichtzentrosymmetrisch und zentrosymmetrisch gebundene Oberflächenelektronen und ihren

 © xxxx xxx Publishing Ltd

Schnittstellen in Wechselwirkung mit multichromatischen photonischen Feldern. 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 Systeme können Schnittstellen zwischen unterschiedlichen Materialien, sowie Flüssigkeiten oder Festkörperoberflächen sein. Zentrosymmetrische Systeme dagegen stellen Volumenmaterialien – BULK dar.

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, zentrosymmetrischer Materie und ihren Schnittstellen in Wechselwirkung mit multichromatischen Photonenfeldern und dabei das Verhalten der (N)ZS gebundenen Elektronen beleuchteter Oberflächenmoleküle und Bulkmoleküle 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 dazugehörenden Responsetensoren, wie z. B. die nichtlineare Suszeptibilität, nichtlineare Polarisierbarkeit, nichtlineare optische Dispersion, der nichtlineare Brechungsindex und die NL Dielektrizität u. s. w. 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 (N)ZS Materie

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

- harmonisch approximierte 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

 © xxxx xxx Publishing Ltd

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, Bulk und Oberflächen- Bulk Schnittstellen mittels der optischen nichtlinearen Differentialgleichung der Form:

$$\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} + \alpha\tilde{x}^2 \mp \beta\tilde{x}^3 = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e \qquad (\mathbf{1})$$

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 photonischen Feldern $\tilde{\mathbf{E}}(t) = \left(E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + \ldots + \ldots + c.c.\right)$, welche jede beliebige Einstrahlungsfrequenz und in jeder Kombination davon beinhalten können, ist keine exakte, analytische Lösung bekannt.

Für genügend schwache optische Felder kann die tatsächliche rücktreibende Kraft, die ein Oberflächenelektron oder Bulkelektron 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 und zentrosymmetrisch gebundenen Partikels störungstheoretisch in hohen Näherungen betrachtet. Dazu wird zur weiteren Untersuchung ein beliebig kleiner Störparameter λ eingeführt gemäß:

$$\begin{aligned}&\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} + \lambda\alpha\tilde{x}^2 \mp \beta\tilde{x}^3 = \\ &\qquad -\lambda\left(e\left(E_1 e^{-i\varpi_1 t} + E_2 e^{-i\varpi_2 t} + \ldots + \ldots + c.c.\right)/m_e\right)\end{aligned} \qquad (\mathbf{2})$$

mit $\lambda\alpha, \lambda\beta$ von elektrischen Multipolen abhängiger nichtlineare Korrekturkoeffizienten als beliebig kleiner Skalar $0 < \lambda \ll 1$ und $-\lambda e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e$ als Treiberterm. 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 und zentrosymmetrische 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.

 © xxxx xxx Publishing Ltd

In dieser Arbeit wir 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:

$$\frac{d^2\tilde{x}}{dt^2}+\omega_{0j}^2\tilde{x}=\lambda f\left(\tilde{x},\frac{d\tilde{x}}{dt}\right) \qquad (\mathbf{3})$$

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:

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

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

$$\begin{aligned}\varpi^2\frac{d^2\tilde{x}}{d\xi^2}+\omega_{0j}^2\tilde{x}&=\lambda f\left(\tilde{x},\frac{d\tilde{x}}{dt}\right)\\&=\lambda P\left(\omega t,\tilde{x},\dot{\tilde{x}}\right)=-2\gamma_j\dot{\tilde{x}}-\lambda\alpha\tilde{x}^2\mp\lambda\beta\tilde{x}^3-\lambda e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e\end{aligned} \qquad (\mathbf{5})$$

genügt, mit ω_{0j} und γ_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 2π für ωt angesetzt, die man in der Form $P\left(\omega t,\tilde{x},\dot{\tilde{x}}\right)=\sum_{n=-N}^{N}e^{-in\omega t}P_n\left(\tilde{x},\dot{\tilde{x}}\right)$ anschreiben kann. Dabei wird vorausgesetzt, dass die Koeffizienten $P_n\left(\varpi t,\tilde{x},\dot{\tilde{x}}\right)$ 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 γ, 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 und zentrosymmetrischer Materie beschreiben.

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

 © xxxx xxx Publishing Ltd

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

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

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

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

$$\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots$$

Mit den daraus bestimmten Funktionen $\tilde{x}^{(1)}, \tilde{x}^{(2)}, \tilde{x}^{(3)}, \ldots \tilde{x}^{(N)}$ und Größen $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \ldots, \alpha_N$ lassen sich mit $\tilde{x}(\xi) = \sum_n \lambda^n \tilde{x}^{(n)}(\varpi t + \varphi)$ die (N+1)- te Näherungslösung für stationäre Schwingungen bestimmen, wobei $\varpi^2 = \sum_{n=1}^{N} \lambda^n \alpha_n$ 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 $\varpi_0 = 2eV/\hbar = 3.0386(fs)^{-1}$ unter Voraussetzung der Bindungsenergie des Elektrons im Silizium von 2 eV. Die Nichtlinearitätskoeffizienten α und β können für atomare Störungen d von etwa einer Atomgröße aus der nichtlinearen Rückstellcharakteristik mit $m_e \omega_0^2 \tilde{x}_0 = m_e \alpha \tilde{x}_0^2$, bzw. mit $m_e \omega_0^2 \tilde{x}_0 = m_e \beta \tilde{x}_0^3$, abgeschätzt werden. Mit $\hbar\omega_0 \approx 2eV$ und Störungen von $\tilde{x}_0 \approx 200\,pm$ erhält man für den Nichtlinearitätskoeffizienten in nichtzentrosymmetrischer Materie in der Größenordnung von $\alpha = 4{,}6 \times 10^{-2} \frac{1}{fs^2 \cdot pm}$ bzw. $\beta = 2{,}308 \times 10^{-4} \frac{1}{fs^2 \cdot pm}$ für zentrosymmetrische Materie.

Es wurde das Implicite Runge Kutta Verfahren 4. ter Ordnung mit Fehlertoleranzoptimierung verwendet. Für das initialisierte Werteproblem wurde dabei für die allgemeine s- Stufe der Runge Kutta Methode gemäß

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

mit

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

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

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

 © xxxx xxx Publishing Ltd

5. SPECTRAL STRUCTURE AND SIGNATURE BY NONCENTROSYMMETRIC AND CENTROSYMMETRIC MATTER AND THEIR INTERFACE

Um die spektrale Struktur der nichtlinearen Amplitude und deren Signatur zu erhalten integrieren wir Gl. (**2**) numerisch mit der Runge Kutta Methode aus Abschnitt 4. Wir setzen die Dämpfung niedrig und die externe oszillatorische Frequenz genügend hoch ($\omega_0 = 3.0386\left(fs\right)^{-1}$) um das "under- resonant criterium $\omega \ll \omega_0$" für optische Frequenzen für He-Ne- Laserlicht zu erfüllen und im hoch nichtlinearen Regime die höheren Harmonischen beobachten zu können. Zudem wird die Fouriertransformierte der nichtlinearen Amplitude in hoher Näherung kleiner Größen bis 9. Ordnung berechnet. Dieselbe Methodik wird verwendet um die Lösungen von sehr hohen Harmonischen und durch Multiphotonenresonanz erzeugtes Plasma zu erhalten. Zum Vergleich werden die bisher in der Literatur publizierten Lösungen für zwei- Atom Level und drei- Atom Level Modelle herangezogen. Ergebnisse werden repräsentiert in den Abbildungen 1 – 9.

Eine makroskopische Formulierung von Licht- N.Z.S und Licht- Z. S. Materie Wechselwirkung ergibt sich aus der nichtlinearen optischen Differentialgleichung. Für das nichtlineare Oberflächenspektrum wie SHG und deren Schnittstelle zur nächsthöheren Harmonischen Bulk THG können wir das System gemäß $\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} + \alpha\tilde{x}^2 \mp \beta = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e$ auf einen Freiheitsgrad x reduzieren, da diese Bereiche nur wenige Atomlagen umfassen. Dabei beschreibt ein negativer nichtlinearer Korrekturkoeffizient β in Gl. (**2**) unbehandelten Bulk und ein positiver nichtlinearer Korrekturkoeffizient β dotierten Bulk. Das Volumenmaterial (Bulk) besitzt Radialkomponenten die berücksichtigt werden müssen gemäß $\ddot{\tilde{\mathbf{r}}} + 2\gamma\dot{\tilde{\mathbf{r}}} + \omega_0^2\ddot{\tilde{\mathbf{r}}} \mp \beta\tilde{\mathbf{r}}^3 = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e$. Die nichtlineare Schnittstellengleichung zur nächsthöheren vierten Harmonischen kann wieder auf eine x- Komponente reduziert werden u.s.w.. Das externe optische Feld ist dabei definiert als $\tilde{\mathbf{E}}(t) = \left(E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.\right)$ für Oberflächen SHG und $\tilde{\mathbf{E}}(t) = \left(E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + E_3 e^{-i\omega_3 t} + c.c.\right)$ für Bulk THG, bzw. für die vierte Harmonische mit 4 Feldern, für 5HG fünf Felder u. s. w.

Um einen besseren Einblick in die spektrale Struktur und Signatur von Gleichung (**2**) zu erhalten, splitten wir die totale Amplitude auf in nichtzentrosymmetrische und zentrosymmetrische Anteile und bestimmen ihre Fouriertransformierte unter Verwendung der Eingangs beschriebenen Methodiken.

A. NONLINEAR SPECTRAL SIGNATURE BY NONCENTROSYMMETRIC MATTER LIKE SURFACE SHG

Um die vollständigen Schnittstellen- Beiträge zu berücksichtigen, werden die Oberflächenbeiträge bis zu kleinen Größen 4. Ordnung bestimmt. Damit ergibt sich für Oberflächen SHG folgender analytische Ausdruck unter Berücksichtigung des jeweiligen realen Dämpfungsverhaltens.

$$\begin{aligned}\ddot{\tilde{x}}^{(4)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(4)} + \varpi_0^2\tilde{x}^{(4)} = &-\lambda^2\frac{B^2\alpha}{2\omega_0^2} - \lambda^3\frac{5B^2\alpha^2}{12\omega_0^3} - \lambda^4\frac{19B^4\alpha^3}{72\omega_0^6} + \frac{B^2\alpha}{24\omega_0^3}\left(-\lambda^2 + \lambda^4\frac{B^2\alpha^2}{3\omega_0^4}\right) - \lambda^3\frac{B^3\alpha^2}{288\omega_0^5} - \lambda^4\frac{B^4\alpha^3}{8640\omega_0^7} + \lambda^2\frac{-B^2\alpha}{4\gamma} \\ &-\lambda^3\frac{\frac{15}{18}B^2\alpha^2\gamma}{\omega_0^4\left(4\gamma^2+\omega_0^2\right)} - \lambda^4\frac{19B^4\alpha^3}{144\gamma\omega_0^4} + \lambda^2\frac{\gamma^2B^2\alpha}{32\gamma\omega_0\left(\gamma^2\omega_0+\omega_0^3\right)} - \lambda^4\frac{\gamma B^4\alpha^3}{96\omega_0^6\left(\gamma^2+\omega_0^2\right)} + \lambda^3\frac{B^3\alpha^2\gamma}{54\omega_0^3\left(4\gamma^2\omega_0+9\omega_0^3\right)} - \lambda^4\frac{\frac{1}{8}\gamma^2B^4\alpha^3}{576\gamma\omega_0^5\left(\gamma^2\omega_0+4\omega_0^3\right)}\end{aligned} \quad (\mathbf{12})$$

Als reine SHG Beiträge ergeben sich 13 Terme. Dabei stellt der erste Term den DC dar, der auf den Skew der Fundamentalen (2. Term) wirkt. Der dritte Term stellt den DC dar, welcher auf den Skew der 2. Harmonischen (vierte Term) wirkt. Der anschließende 5. und 6. Term stellt die Frequenzvariation höherer Ordnung für THG und vierte Harmonische. Die nachfolgende Terme beschreiben dass Dämpfungsverhalten des Systems. der 7. und 8. Term ist demnach die DC und Fundamentalen Dämpfung, gefolgt von der auf den SHG- DC wirkenden Dämpfung und der SHG Dämpfung (Term 10 und 11), THG Dämpfung (Term 12) und Dämpfung der 4. Harmonischen (Term 13). Um die Effektivbeiträge zum N.Z.S System zu erhalten, müssen die Terme mit 1/ß zu multiplizieren werden. Interessant ist, dass neben SHG und höhere geradzahlige Harmonische auch schon Terme für ungeradzahlige Harmonische (hier: THG) entstehen, ganz im Gegensatz zur Lösungsstruktur für

 © xxxx xxx Publishing Ltd

ungeradzahlige Harmonische, bei der ausschließlich nur nichtlineare Korrekturen für Harmonische ungerader Ordnung entstehen (vgl. hierzu weiter unten Bulk- THG Termentwicklung hoher Ordnung). Diese gemischten Signale zeigen, dass bei der Messung von Oberflächen und deren Schnittstellen zusätzlich THG Signale entstehen und noch höhere Harmonische ungerader Ordnung. Wie aus den Lösungstermen offensichtlich zu erkennen ist, ist der nichtlineare Singularitätsparameter für SHG signifikant größer als der für THG, auch ohne Berücksichtigung der unterschiedlichen Größenordnungen der Nichtlinearitätspaare (α,β), wie aus der nachfolgenden Bulk THG Entwicklung zu erkennen ist. Mit den zugrunde gelegten Größenordnungen des Nichtlinearitätsparameter Paar (α,β) ergibt sich, dass die Skewness zwar noch negativ bleibt, aber etwas schwächer ausgeprägt ist. Interessant zu sehen ist, dass die Dämpfung jetzt neben den Frequenzen auch noch von der nichtlinearen Amplitude b und den nichtlinearen Parameter α abhängt. Bemerkenswert ist hierbei, dass die DC Dämpfung, welche direkt auf das SHG wirkt, negativ ist und somit als ein Verstärker für SHG wirkt. Der sich daraus resultierende höhere DC- Wert hat einen höheren Einfluss auf das SHG, als bislang vermutet. Somit sind SHG Dipolbeiträge die dominanten Beiträge zur Oberfläche, welche Störsignale von THG aufweisen. Diese können nun aber durch die nichtlinearen Frequenzkorrekturen identifiziert und eliminiert werden.

B. NONLINEAR SPECTRAL SIGNATURE BY CENTROSYMMETRIC MATTER LIKE BULK THG

Die vollständigen Bulk THG Beiträge werden berücksichtigt durch Terme bis zu kleinen Größen 9. Ordnung. Damit ergeben sich für BULK THG folgende exakte analytische nichtlineare Korrekturen zur Fundamentalen Harmonischen und zu höheren Harmonischen ungerader Ordnung unter Berücksichtigung des jeweiligen realen Dämpfungsverhaltens.

$$
\begin{aligned}
&\ddot{\tilde{x}}^{(9)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(9)} + \varpi_0^2\tilde{x}^{(9)} = \frac{3B^2\beta}{\omega_0}\left(-\frac{\lambda^3}{8}+\lambda^5\frac{B^2\beta}{256\omega0^2}-\lambda^7\frac{B^4\beta^2}{4096\omega0^4}\right)+\frac{B^3\beta}{8\omega0^3\times 6}\left(\frac{\lambda^3}{4}-\lambda^5\frac{6B^2\beta}{128\omega0^2}-\lambda^9\frac{3B^6\beta^3}{131072\omega0^6}\right)\\
&+\frac{3B^5\beta^2}{240\omega0^3}\left(-\frac{\lambda^5}{128\omega0^2}+\lambda^7\frac{B^2\beta}{4096\omega0^4}\right)+\lambda^7\frac{\frac{3}{48}B^7\frac{1}{14}\beta^3}{4096\omega0^7}-\lambda^9\frac{\frac{1}{80}B^9\frac{1}{18}\beta^4}{131072\omega0^9}+\frac{\gamma\beta B^2}{\omega_0\left(4\gamma^2\omega_0+\omega_0^3\right)}\left(-\lambda^3\frac{9}{12}+\lambda^5\frac{15B^2\beta}{2\times 320\omega_0^2}-\lambda^7\frac{3\times 70B^4\beta^2}{143360\omega_0^4}\right)\\
&+\frac{\gamma B^3\beta}{6\varpi_0\left(4\gamma^2\omega_0+9\omega_0^3\right)}\left(-\frac{\lambda^3}{6}+\lambda^5\frac{B^2\beta}{32\omega_0^2}\right)+\lambda^9\frac{\frac{1}{6}B^9\beta^4\gamma(4\gamma^2+81\omega_0^2)}{65536\omega_0^8(16\gamma^4+360\gamma^2\omega_0^2+729\omega_0^4)}+\underbrace{\frac{B^5\beta^2\gamma}{\omega_0^3\left(4\gamma^2\omega_0+25\omega_0^3\right)}\left(-\frac{3\lambda^5}{3200}-\lambda^7\frac{7\times 6B^2\beta}{1433600\omega_0^2}\right)}_{\text{5HG Dämpfung}}\\
&\underbrace{-\lambda^7\frac{\frac{3}{7}B^7\beta^3}{143360\omega_0^6}\frac{5\gamma}{4\gamma^2+49\omega_0^2}}_{\text{7HG Dämpfung}}+\underbrace{\lambda^9\frac{\frac{1}{18}B^9\beta^4\gamma(4\gamma^2+9\omega_0^2)}{589824\omega_0^8(16\gamma^4+360\gamma^2\omega_0^2+729\omega_0^4)}}_{\text{9HG Dämpfung}}
\end{aligned}
\qquad \mathbf{(13)}
$$

Dabei stellt der erste Term die Frequenzkorrektur der Fundamentalen dar, der zweite Term die Frequenzkorrektur für THG und die weiteren Terme die Frequenzkorrekturen hoher Harmonischer ungerader Ordnung (hier 9. Ordnung). Zudem kommen noch weitere Terme vor, welche die Dämpfung charakterisieren. Der 6. Term stellt die Dämpfung der Fundamentalen dar, der 7. Term die THG Dämpfung und die Terme 8 bis 10 die Dämpfung der 5., 7. und 9. Harmonischen.

Für zentrosymmetrische Materie ergibt sich neben der Frequenzabhängigkeit, jetzt auch noch eine Abhängigkeit vom Nichtlinearitätparameter ß und von der nichtlinearen Amplitude b, sowohl für die Fundamentale Harmonische als auch für deren Dämpfungen. Dabei sind, wie die nachfolgenden Abbildungen zeigen, die Peaks nicht mehr symmetrisch, sondern zeigen deutlich für die jeweilige Materiestruktur signifikantes Hystereseverhalten auf. Dabei ist bemerkenswert, dass für ungeradzahlige Harmonische keine DC für die Frequenzkorrektur einhergeht, ganz im Gegensatz zu geradzahligen Harmonischen, wo der DC Anteil den Frequenz- Skew mitkorrigiert. Betrachtet man die Dämpfungsterme, so erkennt man, dass diese negative Dämpfungsanteile beinhalten, welche als Anregung für das System wirken (selbsterregende Schwingungsanteile). Auch hier ist es so, dass für die Effektivbeiträge zum System die Terme mit 1/ß zu multiplizieren sind.

Die nichtlineare Kurve für Oberflächen SHG und Bulk THG und deren Schnittstelle wird also voraussichtlich zwei deutliche Resonanzpeaks zeigen, eine bei $\omega = \omega_0$ und eine bei $\omega = 2\omega_0$ für SHG und $\omega = 3\omega_0$ für THG und alle Peaks für die Schnittstelle. Aufgrund der Berücksichtigung der nichtlinearen Natur sind jetzt, wie die nachfolgenden Abbildungen zeigen,

 © xxxx xxx Publishing Ltd

die Peaks nicht mehr symmetrisch, sondern zeigen deutlich in Abhängigkeit der Materiestruktur signifikante, charakteristischen Hysterese- Frequenzvariation auf.

C. NONLINEAR SPECTRAL SIGNATURE BY INTERFACE OF N.Z.S. AND Z.S. MATTER

Zur Untersuchung der Schnittstelle wird die optische nichtlineare Differentialgleichung ausgewertet:

$$\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} = -\alpha\tilde{x}^2 \pm \beta\tilde{x}^3 - \lambda\left(e\left(E_1 e^{-i\omega_1 t} E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} E_2 e^{-i\omega_2 t} E_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.\right)\Big/ m_e\right) \qquad \mathbf{(14)}$$

wobei positive Nichtlinearitätskoeffizienten in β gewöhnlichen Bulk und negative Nichtlinearitätskoeffizienten in β dotierten Bulk beschreiben. Es ist anzumerken, dass die gemischten externen optischen Felder gemittelt auf die Schnittstellenregion einwirken. Fouriertransformation FOU { } von Gl. (**14**) liefert das Frequenzspektrum:

$$\begin{aligned}
\ddot{\tilde{x}}^{(9)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(9)} + \varpi_0^2\tilde{x}^{(9)} &= -\lambda^2\frac{B^2\alpha}{2\omega_0^2} - \lambda^4\frac{19B^4\alpha^3}{72\omega_0^6} + \lambda^4\frac{-45B^4\alpha\beta}{72\omega_0^4} + \lambda^6\frac{-27B^6\alpha^3\beta}{192\omega_0^8} + \lambda^6\frac{-27B^6\alpha\beta^2}{3456\omega_0^6} \\
&+ \lambda^3\frac{-5B^2\alpha^2}{12\omega_0^3} + \lambda^3\frac{-3B^2\beta}{8\omega_0} - \lambda^4\left(\frac{-B^4\alpha^3}{72\omega_0^7} + \frac{3B^4\alpha\beta}{72\omega_0^5}\right) - \lambda^2\frac{B^2\alpha}{24\omega_0^3} - \lambda^3\left(\frac{+\frac{1}{6}B^3\alpha^2}{48\omega_0^5} + \frac{-\frac{1}{6}B^3\beta}{32\omega_0^3}\right) \\
&- \lambda^5\left(\frac{+107B^4\alpha^2\beta}{384\omega_0^5} + \frac{-\frac{9}{2}B^4\beta\beta}{384\omega_0^3}\right) - \lambda^4\left(\frac{\frac{1}{8}B^4\alpha^3}{1080\omega_0^7} + \frac{-\frac{9}{8}B^4\alpha\beta}{1080\omega_0^5}\right) - \lambda^5\left(\frac{\frac{38}{24}B^5\beta\alpha^2}{384\omega_0^7} + \frac{\frac{3}{8}B^5\beta\beta}{384\omega_0^5}\right) - \lambda^5\left(\frac{-\frac{7}{12}\alpha^2B^5\beta}{3840\omega_0^7} + \frac{\frac{9}{24}\beta B^5\beta}{3840\omega_0^5}\right) + \ldots +
\end{aligned} \qquad \mathbf{(15)}$$

Wir erhalten hier Skewnessparameter, welche nun von α und β abhängen. Mit den zugrunde gelegten Größenordnungen vom Nichtlinearitätsparameter Paar (α, β) ergibt sich, dass die Skewness zwar noch negativ bleibt, aber etwas schwächer ausgeprägt ist als für Oberflächen SHG, aber stärkeres Hystereseverhalten aufweist als für Bulk THG. Verfolgt man dies weiter zum Bulkmaterial erhält man eine noch weniger ausgeprägte negative Skewness deren Singularitätskurve oberhalb der Singularität der Schnittstellenregion liegt. Damit lassen sich Schnittstellenregionen nun zuverlässig von der Oberfläche und Bulk separieren. Betrachtet man nun dotierten Bulk, so durchläuft die Singularitätskurve ein vollständiges Vorzeichen und weist positive Skewness auf.

References

[RWB99] R. W. Boyd, J. Mod. Opt. **46**, 367, 1999

[PFTV92] Press, W. H., B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, und 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).

 © xxxx xxx Publishing Ltd