

Extreme Nonlinear Fourier Optics: Singularities of High Harmonics (HHG) and Ultra- Subharmonics ((U)SubHG) under the aspect of coherent generation, kinetics and control of photo- and spin currents depending on matter symmetry

Peter Krampfl^{1*}

¹ ©2012, xxx, xxx, Germany

E-mail: p.krampfl@t-online.de (P. Krampfl).

* Corresponding author.

Received xxxxxx

Accepted for publication xxxxxx

Published January 24, 2012

Abstract

This thesis describes in a new extended approach in (1)-(4) the generation and dynamics of photo- and spin currents in the nonlinear regime. For the first time, the description of the exact nonlinear behavior of photo-spin currents using correction factors of nonlinear approximations with an accuracy of up to small 7th order quantities was shown (2). In addition, the complex absorption behavior was examined in more detail and adapted to the real phenomena in a first extended approach (3).

New "exotic" expressions were shown for a more precise description of the kinetics of photo- and spin currents in the high-energy nonlinear regime and their resulting nonlinear phenomena. The HOMO and LUMO orbital limit states were adapted to the new findings of nonlinear systems (4).

In (5) nonlinear effects on geometric structures were shown, here in photonic crystals. The suppression of hysteresis effects in photonic crystals, as well as in all other micro- and nanoscale devices, will become of great importance in order to avoid disturbances caused by abrupt changes in dynamics, for example in geometric structures such as photonic crystals, to ensure a smooth transition between stable responses in the dielectric layers.

Based on this, a nonlinear chemical potential was formulated in (6). Fermi-Dirac-like equilibrium coherences for electrons and holes on photonic crystals were shown. The changed nonlinear eigenfunctions and nonlinear eigenenergies show, by changing the chemical potential of the "Fermi" gas or "Fermi" liquid by a non-continuous phase transition of the 2nd order, that the entropy-rich system transitions into a lower-entropy solid-state system. This

makes it possible to facilitate the transition between phases of different symmetry (e.g. crystal \leftrightarrow , liquid) and different crystalline modifications (non-continuous transition).

Finally, an abinitio nonlinear phase transition model for non-equilibrium phenomena was formulated (7). Taking into account many-body quantum theory, phase transitions in non-equilibrium were considered in more detail than nonlinear transitions. First- and second-order phase transitions were found due to nonlinearities. In addition, the particle behavior was formulated in a modified nonlinear high-energy evolution of Greenian functions with additional nonlinear terms and new expressions for the cube formula with new, extended nonlinear terms for nonlinear many-body systems were written down to a new comprehensive nonlinear cube formalism.

Zusammenfassung

Diese Arbeit beschreibt in einem neuen erweiterten Ansatz in (1)-(4) die Erzeugung und Dynamik von Photo- und Spinströmen im nichtlinearen Regime. Hierbei wurde erstmals die Beschreibung des exakten Nichtlinearen Verhaltens von Photo- Spinströmen mittels Korrekturfaktoren nichtlinearer Näherungen mit einer Genauigkeit bis zu kleinen Größen 7. Ordnung gezeigt (2). Zudem wurde das komplexe Absorptionsverhalten näher betrachtet und in einem ersten erweiterten Ansatz den realen Phänomenen angepasst (3).

Dabei wurden neue "exotische" Ausdrücke zur exakteren Beschreibung der Kinetik von Photo- und Spinströmen im Hochenergetischen Nichtlinearen Regime und deren daraus resultierenden nichtlinearen Phänomene gezeigt. Dabei wurden die HOMO und LUMO Orbital- Grenzzustände auf die neuen Erkenntnisse nichtlinearer Systeme angepasst (4).

In (5) wurden Nichtlineare Effekten auf geometrischen Strukturen, hier in Photonischen Kristallen gezeigt. Die Unterdrückung der Hystereseeffekte in photonischen Kristallen, wie auch in allen anderen Mikro- und Nanoskaligen Bauteilen, wird von großer Wichtigkeit werden, um Störungen zu vermeiden welche durch abrupte Änderung in der Dynamik ihre Ursache haben um beispielsweise in geometrischen Strukturen wie in photonischen Kristallen einen glatten Übergang zwischen stabilen Responses in den dielektrischen Schichten sicherzustellen.

Darauf aufbauend wurde in (6) ein Nichtlineares Chemisches Potential formuliert. Dabei wurden fermi- Dirac- artige Gleichgewichtskohärenzen für Elektronen und Löcher an photonischen Kristallen gezeigt. Die geänderten nichtlinearen Eigenfunktionen und nichtlinearen Eigenenergien zeigen, durch Änderung des chemischen Potentials vom "Fermi"- Gas bzw. "Fermi"- Flüssigkeit durch einen nichtkontinuierlichen Phasenübergang 2. Ordnung, dass das entropiereiche System in ein entropieärmeres Festkörpersystem übergeht. Damit ist es möglich den Übergang zwischen Phasen unterschiedlicher Symmetrie (z. B. Kristall \leftrightarrow Flüssigkeit) und verschiedener kristalliner Modifikationen (nicht kontinuierlicher Übergang) zuverlässig zu beschreiben.

Abschließend wurde ein ab- initio Nichtlineares Phasenübergangs- Modell für Nichtgleichgewichtsphänomene formuliert (7). Unter Berücksichtigung der Vielteilchen-Quantentheorie wurden Phasenübergänge im Nichtgleichgewicht detaillierter als nichtlineare Übergänge betrachtet. Dabei wurden Phasenübergänge erster und zweiter Ordnung aufgrund

von Nichtlinearitäten gefunden. Zudem wurde das Partikelverhalten in einer modifizierten nichtlinearer Hochenergieentwicklung Greenscher Funktionen mit zusätzlichen nichtlinearen Termen formuliert und neue in einem ersten Ansatz Ausdrücke für die Kubo- Formel mit neuen, erweiterten nichtlinearen Termen für nichtlineare Vielteilchensysteme zu einem neuen umfassenden nichtlinearen Kubo Formalismus niedergeschrieben.

Keywords: Nonlinear Optics, Nonlinear Photonics, Phase transition 1st Order, Phase transition 2nd Order, Green's Function, Kubo-formalism, Many-body theory, Statistical physics.

Extreme nichtlineare Fourier- Optik: Singularitäten hoher Harmonischer (HHG) und Ultra-Subharmonischer ((U)SubHG) unter dem Aspekt der kohärenten Erzeugung, Kinetik und Kontrolle von Photo- und Spinströmen in Abhängigkeit der Materiesymmetrie

P. Krampfl*

1. Einführung: Für ein monochromatisches Feld $\mathbf{E}(t) = \cos(\omega t)$ ist für zentrosymmetrische Materie ein Skewnesseffekt bekannt und in der Literatur illustriert (siehe z. B. [Landau]). Für multichromatische Felder und deren komplex konjugierte ist eine harmonisch approximierte Lösung bekannt (siehe z. B. [Boyd]). Diese Lösung ist nur gültig für genügend schwache optische Felder wo die tatsächliche rücktreibende Kraft, die ein Oberflächenelektron für genügend kleine Oszillationen um den Gleichgewichtszustand erfährt, durch ein harmonisches Potential approximiert werden kann. Wird die Intensität des eingestrahnten optischen Feldes groß, werden die höheren Terme der Rückstellkraft wichtig und die Bewegung des Elektrons ist nicht länger direkt proportional zum Feld. Nur in dieser Einschränkung kann das Langzeitverhalten des nichtzentrosymmetrisch gebundenen Partikels störungstheoretisch approximiert werden. Durch Vielwellenmischen oder Einstrahlung mehrerer höherer Harmonischer und Kombinationen davon werden aber schnell hohe Felder erreicht. Für diese Probleme müssen neue Strategien entwickelt werden. In dieser Arbeit wird zunächst vorrangig die Wechselwirkung nichtzentrosymmetrischer Systeme mit höheren bichromatischen photonischen Feldern der Form $\tilde{\mathbf{E}}(t) = \mathbf{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + c.c.$ unter dem Aspekt der Erweiterung auf höhere Harmonischen untersucht. Dies ist wichtig zur Beschreibung der Erzeugung Dynamik von Photo- und Spinströmen.

*Corresponding author.

E-mail address: p.krampfl@online.de (P. Krampfl).

Eine genaue Untersuchung des Mechanismus zur exakten Beschreibung der Elektron- Multiphotonenwechselwirkung wurde erstmals in meiner "Master's Dissertation" [PKM] als Ergebnis meines Studiums an der FU Hagen dargestellt. Diese Lösungsstrukturen werden zunächst aufgegriffen und danach erweitert. Im zweiten Teil dieser Arbeit werden die erweiterten Ergebnisse zur Charakterisierung optisch kohärent induzierter und kohärent kontrollierter Photo- und Spinströme verwendet. Zudem werden neue Ergebnisse über die genauen physikalischen Vorgänge vom "Fermi- Gas" zur "Fermi- Flüssigkeit" als Phasenübergang erster Ordnung hin zur Umordnung zum entropieärmeren Festkörper als Phasenübergang zweiter Ordnung gezeigt, die mit einer speziellen, nichtlinearen Änderung des chemischen Potentials einhergeht. Zur Untersuchung des Langzeitverhaltens der Elektronen- Multiphotonenwechselwirkung wird zunächst ein beliebig kleiner, positiver Störparameter λ eingeführt. Das Ziel am Ende der Berechnung ist λ mit einem Wert gleich eins zu besetzen.

$$\ddot{\tilde{x}} + 2\gamma\dot{\tilde{x}} + \omega_0^2\tilde{x} = -\lambda\left(e\left(\mathbf{E}_1e^{-im\omega_1t} + \mathbf{E}_2e^{-im\omega_2t} + c.c.\right)/m_e - \alpha\tilde{x}^2 \pm \beta\tilde{x}^3\right) \quad (1)$$

wobei $(\tilde{x}, t) \in \mathbb{S}^1 \times \mathbb{S}^1$ ist, aber mit globalem \tilde{x} in \mathbb{S}^1 definiert ist und $\gamma \neq 0$ in dissipativer Umgebung. Die nichtlinearen Parameter $(\alpha, \beta) \in \mathbb{R}^1$ sind für Gase, Flüssigkeiten und kondensierte Materie klein. Der Treiberterm $-e\lambda\mathbf{E}(t)/m_e$ mit dem photonischen multichromatischen Feld $\mathbf{E}(t)$ ist hierbei eine \mathbb{C}^∞ Funktion mit 2π - Periodizität. Für dieses Problem ist bislang keine allgemeingültige analytische Lösung bekannt. Ein erster analytischer Lösungsansatz für 2- Photonen- Resonanz und 3- Photonen Resonanz, mit ersten Bezug auf beliebige Kombinationen höherer photonischer Fourierkomponenten, wurde in meiner "Master's Dissertation" [PKM] gezeigt. Die spezielle Problematik hierbei ist, dass die Felder der auf die Kristalloberfläche einfallenden Welle, welche von 2 getrennten photonischen Quellen herrühren dabei **nicht** mehr einfach der Superposition zweier Wellen entsprechen. Um dieses nichtlineare Problem zu lösen wird zunächst die asymptotische Lösungsstruktur mittels Singularitäten bestimmt. Dazu werden zunächst photonenfreie Oberflächen untersucht. Bei vollständigem Fehlen externer optischer Felder liegt eine regellose freie thermische Bewegung des Elektronenpartikels vor. Exakt resonante Partikel $\omega_0 = \omega_{res}$ sind entropiearm und deren Verhalten ist zeitlich vorhersagbar. Diese bestimmen das Langzeitverhalten der Materieelekt-

ronen.

2. Asymptotischer Aufbau des Elektronenresponses hoher Harmonischer und Subharmonischer: Bei vollständigem Fehlen externer optischer Felder liegt eine regellose freie thermische Bewegung des Elektronenpartikels vor. Exakt resonante Partikel $\omega_0 = \omega_{res}$ sind entropiearm und deren Verhalten ist zeitlich vorhersagbar. Diese bestimmen das Langzeitverhalten der Materieelektronen. Zur weiteren Untersuchung des Langzeitverhaltens wird ein beliebig kleiner, positiver Störparameter λ eingeführt. Die stationäre Amplitude der Oberflächenelektronen in zweiter Näherung, d. h. mit einer Genauigkeit bis zu kleinen Größen der Ordnung λ^3 wird bestimmt mit:

$$\frac{d^2 \tilde{x}}{dt^2} + \omega_0^2 \tilde{x} + \lambda \alpha \tilde{x}^2 = 0 \quad (2)$$

Die Funktionen $\tilde{x}^{(1)}, \tilde{x}^{(2)}, \tilde{x}^{(3)}, \dots, \tilde{x}^{(N)}$ und die Größen $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3, \dots, \alpha_N$ können mit folgenden Gleichungssystem bestimmt werden.

$$\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(1)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(1)} = 0, \quad (3)$$

$$\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(2)} = \alpha \left(\tilde{x}^{(1)} \right)^2 \pm \beta \left(\tilde{x}^{(1)} \right)^3 - \alpha_2 \frac{d^2 \tilde{x}^{(1)}}{d\xi^2}, \quad (4)$$

$$\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(3)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(3)} = -2\alpha \tilde{x}^{(1)} \tilde{x}^{(2)} - \alpha_3 \frac{d^2 \tilde{x}^{(1)}}{d\xi^2} - \alpha_2 \frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2} \quad (5)$$

aus (3) findet man mithilfe der Modifikation für hohe Harmonische $\tilde{b} \cos \xi = \tilde{b} \cos(n\hat{\omega}t + \varphi)$ mit n als Integer $\tilde{x}^{(1)} = +\alpha_1 \tilde{b} \cos(\hat{\omega}t + \varphi)$ und $\alpha_1 = 1$ insgesamt $\tilde{x}^{(1)}(\xi) = \tilde{b} \cos \xi$ mit $\xi = n\hat{\omega}t + \varphi$. Damit erhält man aus (4.38) den Ausdruck:

$$\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(2)} = \alpha \tilde{b}^2 \cos^2 \xi + \alpha_2 \tilde{b} \hat{\omega}^2 \cos(\hat{\omega}t + \varphi) \quad (6)$$

wobei keine Additionstheoreme möglich ist und sich $\cos \xi$ aufhebt für $\alpha_2 = 0$. Damit gibt es keinen Elektronen- Skew in der linearen Näherung nichtzentrosymmetrischer Materie. Bemerkenswert ist in diesem Zusammenhang, dass für zentrosymmetrische Medien bereits in erster Näherung kleiner Größen mit $\alpha_1 \frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(2)} = -\alpha \tilde{b}^3 \cos^3 \xi + \alpha_2 \tilde{b} \cos \xi$
 $= -(\tilde{b}^3/4) \cos 3\xi + (\alpha_2 \tilde{b} \mp (3/4) \tilde{b}^3) \cos \xi$ ein Skew mit $\alpha_2 = \mp (3/4) \tilde{b}^2$ nachgewiesen werden kann. Wir setzen $\alpha_2 = 0$ und erhalten:

$$\frac{d^2 \tilde{x}^{(2)}}{d\xi^2} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(2)} = \alpha (\tilde{x}^{(1)})^2 = \alpha \tilde{b}^2 \cos^2 \xi \quad (7)$$

Aus der asymptotischen Näherung stationärer Lösungen erhalten wir über die Beziehungen $d^2 \tilde{x}^{(1)}/d\xi^2 = -\ddot{\xi} \tilde{b} \cos \xi$ und $d\tilde{x}^{(1)}/d\xi = -\dot{\xi} \tilde{b} \sin \xi$ mit der Phasenänderung $\dot{\xi} = \omega$ und $\ddot{\xi} = \omega^2$ die lineare Lösung $\tilde{x}^{(1)} = \tilde{b} \cos \xi$ für $\alpha_1 = 1$. Dies entspricht einer allgemeinen Lösung mit den Randbedingungen $x_0 = b_0$ und $\dot{x}(0) = 0$, d. h zur Zeit $t = 0$ liegt nur die maximale Auslenkung b vor. Damit diese Lösung, die nichtlineare Bewegungsgleichung (1) in dissipativer Umgebung streng erfüllt, muss diese umgeschrieben werden in die Form:

$$\frac{\omega_0^2}{\omega^2} \ddot{\tilde{x}} + \left(1 - \frac{\omega_0^2}{\omega^2}\right) \ddot{\tilde{x}} + 2\gamma \dot{\tilde{x}} + \omega_0^2 \tilde{x} + \alpha \tilde{x}^2 - \beta (\tilde{x}^{(2)})^3 = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e \quad (8)$$

wobei die Identität $(\omega_0^2/\omega^2) \ddot{\tilde{x}} + (1 - \omega_0^2/\omega^2) \ddot{\tilde{x}} = \ddot{\tilde{x}}$ benutzt wurde. Mithilfe der Ergebnisse der asymptotischen Methode können wir die Frequenzabweichung vom linearen Verhalten bestimmen. In zweiter Näherung kleiner Größen erhalten wir:

$$\frac{\omega_0^2}{\omega^2} \ddot{\tilde{x}} + \left(1 - \frac{\omega_0^2}{\omega^2}\right) \ddot{\tilde{x}} + 2\gamma \dot{\tilde{x}} + \omega_0^2 \tilde{x} + \alpha \tilde{x}^2 \mp \beta \tilde{x}^3 = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e + \alpha \tilde{b}^2 \cos^2 \psi + \alpha_2 \tilde{b} \tilde{\omega}^2 \cos \psi \quad (9)$$

Die Berücksichtigung freier Elektronen in der sukzessiven Näherung $\tilde{x} = \lambda^0 \tilde{x}^{(1)} + \lambda \tilde{x}^{(2)}$ und $\varpi = \omega_0 + \varpi^{(1)}$ liefert mit $\tilde{x}^{(1)} = \text{Re}\{E_1 e^{-im\omega t} + E_2 e^{-in\omega_2 t} + c.c.\}$ und $-(1 - \omega_0^2/\omega^2) \ddot{\tilde{x}} = \left[+2\omega_0 \varpi^{(1)} + (\varpi^{(1)})^2\right] \tilde{b} \cos(\omega t + \varphi)$ mit der trigonometrischen Identität

$\cos^2 \xi = (1/2)(1 + \cos 2\xi)$ in der Näherung kleiner Größen bis zweiter Ordnung für dichromatisches Feld für die Komponente der ersten höheren Harmonischen und allgemein für HHG und ((U)SubHG):

SHG :

$$\ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(2)} = -(\alpha\tilde{b}^2/2) - (\alpha\tilde{b}^2/2)\cos 4\omega_\xi t + \left[2\omega_0\varpi^{(1)} + (\varpi^{(1)})^2\right]\tilde{b}\cos(2\omega_\xi t + \varphi), \quad (10)$$

SFG, DFG :

$$\ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(2)} = -\alpha\tilde{b}^2 - \alpha\tilde{b}^2\cos 2(\omega_\xi \pm \omega_\zeta)t + \left[2\omega_0\varpi^{(1)} + (\varpi^{(1)})^2\right]\tilde{b}\cos((\omega_\xi \pm \omega_\zeta)t + \varphi), \quad (11)$$

HHG, (U)SubHG :

$$\ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(2)} = -(\alpha\tilde{b}^2/2) - (\alpha\tilde{b}^2/2)\cos 2(p/q)\omega_\xi t + \left[2\omega_0\varpi^{(1)} + (\varpi^{(1)})^2\right]\tilde{b}\cos((p/q)\omega_\xi t + \varphi) \quad (12)$$

Zur Realisierung höherer Harmonischer sind mindestens zwei optische Pumpquellen zwingend notwendig. Die Einstrahlung einer einzigen Frequenz $n\omega$ erzeugt nur eine Resonanz bei $(1/n)\omega$. Bestrahlung des nichtzentrosymmetrischen Systems mit 2 Frequenzen $p\omega + q\omega$ mit $(p/q) = 1$ erzeugt neben der Hauptresonanz ω_0 höhere Resonanzen bei $(\omega_0/2)$ und für $(p/q) \neq 1$ Resonanzen bei $(1/p)\omega$ und $(1/q)\omega$ mit $\{p, q\} \in \mathbb{R} \setminus \{0\}$. Die o. g. inhomogene, lineare Gleichung wird für freie Partikel unter der Bedingung für das Fehlen eines Resonanzgliedes auf der rechten Seite integriert. Damit können wir $\varpi^{(1)}$ Null setzen und die Integration liefert mit $\ddot{\tilde{x}} = \dot{\tilde{x}} = 0$ für das konstante Glied $C/\omega_0^2 = -\alpha b^2/2\omega_0^2$. Wenn die Lösung erster Ordnung ein sinnvoller Startpunkt ist, dann führt unsere allgemeine Argumentation von vornherein in den allgemeinen Ansatz $x_s(t) = \tilde{b}_1 \cos a\omega t + \tilde{b}_2 \sin a\omega t$ für $\tilde{b}_2 = 0$ und $\tilde{b}_1 = \tilde{b}$ zu setzen. Mit der obigen Argumentation wird der durch die Integration entstehende sin- Term komplex und berücksichtigt die Dämpfung bzw. Absorption $\tilde{b}_2 = 0$ und der cos- Term ist Real und beschreibt die Amplitude. Mit diesen Annahmen erhalten wir als allgemeingültige Lösung zweiter Näherung kleiner Größen für die resonante Umgebung $\omega \neq \omega_0$ und unter zusätzlicher Berücksichtigung hoher Harmonischer und Subharmonischer und entsprechend $\tilde{b}^2 \equiv E_1 E_1$ $\tilde{b}^2 \equiv E_1^2, \tilde{b}^2 \equiv E_2^2, \tilde{b}^2 \equiv E_2 E_2$ insgesamt:

$$\tilde{x}^{(2)} = -\frac{\alpha E_1 E_2}{2\omega_0^2} + \frac{\alpha E_1 E_2}{8\omega^2 - 2\omega_0^2} \cos 2\omega t, \quad \text{HHG, (U)SubHG} : \quad \tilde{x}^{(2)} = -\frac{\alpha E_1 E_2}{2\omega_0^2} + \frac{\alpha E_1 E_2}{8(p/q)\omega^2 - 2\omega_0^2} \cos 2(p/q)\omega t \quad (13)$$

$$\tilde{x}^{(2)} = -\frac{\alpha E_1 E_2}{2\omega_0^2} + \frac{\alpha E_1 E_2}{32\omega^2 - 2\omega_0^2} \cos 4\omega t, \quad \text{bzw.} \quad \tilde{x}^{(2)} = -\frac{\alpha E_1 E_2}{2\omega_0^2} + \frac{\alpha E_1 E_2}{8(p/q)^2 \omega^2 - 2\omega_0^2} \cos 2(p/q)\omega t \quad (14)$$

Die Lösungsstruktur der Integration an der Resonanzfrequenz und deren Umgebung ergibt jeweils Lösungen der Form $\tilde{x}^{(2)} = -\left(\alpha \tilde{b}^2 / 2\omega_0^2\right) + \alpha \tilde{b}^2 / \left(8\omega_{0,\varepsilon}^2 - 2\omega_0^2\right) \times \cos 2\omega_{0,\varepsilon} t$ bzw. für eingestrahlte optische hohen Harmonischen (HHG) und (Ultra)Subharmonischen ((U)SubHG), $\tilde{x}^{(2)} = -\left(\alpha \tilde{b}^2 / 2\omega_0^2\right) + \alpha \tilde{b}^2 / \left(8(p/q)^2 \omega_{0,\varepsilon}^2 - 2\omega_0^2\right) \times \cos 2(p/q)\omega_{0,\varepsilon} t$, mit Berücksichtigung der Felder in Form $\tilde{b}^2 \equiv E_1 E_1, E_2 E_2, E_1^2, E_2^2$. Nach Voraussetzung liegen die Photonenresonanzen, d. h. allgemein die hohen Harmonischen und Subharmonischen hinreichend nahe bei der natürlichen Resonanzfrequenz. Im Limes kann damit für die hohen Harmonischen beim Übergang zum Resonanzgebiet $\omega_\varepsilon \approx \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} (p/q)\omega_0 + \varepsilon \approx (p/q)\omega_0$, für die optischen Frequenzen $\omega_\varepsilon \approx (p/q)\omega_0$ geschrieben werden. Für das Integral $\iint \ddot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(2)} = -\alpha(b^2/2) - \alpha(b^2/2) \cos 2(p/q)\omega_\varepsilon t$ ergibt sich ferner $\tilde{x}^{(2)} = -\left(\alpha b^2 / 2\omega_0^2\right) + \left(\alpha b^2 / 6(p/q)^2 \omega_0^2\right) \cos 2(p/q)\omega_{\varepsilon \rightarrow 0} t$ an der Resonanz. Damit lassen sich sofort die wichtigen Beziehungen $\omega_0 \rightarrow (p/q)\omega_0$ für die Betrachtung an der Resonanzfrequenz motivieren. Die Berücksichtigung der nächsthöheren Ordnung liefert mit der Lösung zweiter Näherung kleiner Größen die Frequenzkorrektur zur natürlichen Frequenz des Systems. Mit der erweiterten sukzessiven Näherung $\tilde{x} = \lambda^0 \tilde{x}^{(1)} + \lambda \tilde{x}^{(2)} + \lambda^2 \tilde{x}^{(3)}$ und $\varpi = \omega_0 + \varpi^{(2)}$ finden wir für die dritte Näherung kleiner Größen $\ddot{\tilde{x}}^{(3)}$ die analytische Lösung für nichtresonante Erregerfrequenzen:

$$\begin{aligned} \ddot{\tilde{x}}^{(3)} + 2\gamma \dot{\tilde{x}}^{(3)} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(3)} &= \left\{ \frac{\alpha^2 \tilde{b}^3}{\omega_0^2} \cos(p/q)\omega t - \frac{\alpha^2 \tilde{b}^3}{8(p/q)^2 \omega^2 - 2\omega_0^2} \frac{1}{2} \cos(p/q)\omega t - \frac{1}{2} \frac{\alpha^2 \tilde{b}^3}{8(p/q)^2 \omega^2 - 2\omega_0^2} \cos 3(p/q)\omega t \right. \\ &\quad \left. + \beta \tilde{b}^3 \cos^3(p/q)\omega t + 2\omega_0 \varpi^{(2)} \tilde{b} \cos(p/q)\omega t \right\} \\ &= \left[2\omega_0 \varpi^{(2)} + \frac{3\tilde{b}^2 \beta}{4} + \frac{\alpha^2 \tilde{b}^2}{\omega_0^2} - \frac{\alpha^2 \tilde{b}^2}{8(p/q)^2 \omega^2 - 2\omega_0^2} \right] \tilde{b} \cos(p/q)\omega t \\ &\quad + \left[\frac{\tilde{b}^3 \beta}{4} - \frac{\alpha^2 \tilde{b}^3}{8(p/q)^2 \omega^2 - 2\omega_0^2} \right] \cos 3(p/q)\omega t \end{aligned} \quad (15)$$

und für resonante Erregerfrequenzen:

$$\begin{aligned}
\ddot{x}^{(3)} + 2\gamma\dot{x}^{(3)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(3)} &= \left\{ -2\alpha \left(-\frac{\alpha\tilde{b}^2}{2\omega_0^2} b \cos(p/q)\omega t + \frac{\alpha\tilde{b}^2}{6\omega_0^2} \left(\frac{1}{2} (\cos(p/q)\omega t + \cos 3(p/q)\omega t) \right) \right) \right. \\
&\quad \left. + \beta\tilde{b}^3 \cos^3(p/q)\omega t + 2\omega_0\varpi^{(2)}\tilde{b} \cos \omega t \right\} \\
&= \left[2\omega_0\varpi^{(2)} + \frac{3\tilde{b}^2\beta}{4} + \frac{\alpha^2\tilde{b}^2}{\omega_0^2} - \frac{\alpha^2\tilde{b}^2}{6(p/q)^2\omega_0^2} \right] \tilde{b} \cos(p/q)\omega t + \left[\frac{\tilde{b}^3\beta}{4} - \frac{\alpha^2\tilde{b}^3}{6(p/q)^2\omega_0^2} \right] \cos 3(p/q)
\end{aligned} \tag{16}$$

Die Korrektur zur Fundamentalen erhalten wir aus den Koeffizienten des Resonanzterms welcher das nichtlineare Verhalten an der Oberfläche - Bulk - Schnittstelle wiedergibt.

$$\varpi_{\alpha\beta}^{(2)}(\tilde{b}) = \left(-\frac{3q\beta}{8p\omega_0} + \frac{\alpha^2(3\omega_0^2 - 8(p/q)^2\omega_\varepsilon^2)}{16\omega_0^3(p/q)^2\omega_\varepsilon^2 - 4\omega_0^5} \right) \tilde{b}^2 \quad \text{für } \omega_\varepsilon \neq \omega_0 \tag{17}$$

Daraus lässt sich leicht erkennen, dass zentrosymmetrische und nichtzentrosymmetrische Materie einen negativen Skew aufweisen. Betrachtet man nun positiv dotierte Bulkfestkörper ($-m_e \rightarrow m_e$), so genügt diese der modifizierten Differentialgleichung zweiter Ordnung $\ddot{x} + 2|\gamma|\dot{x} + \omega_0^2\tilde{x} + \beta(\tilde{x}\tilde{x})\tilde{x} = e\tilde{E}(t)/m_e$. Dabei wurde berücksichtigt, dass der Bulk mit Schnittstelle nicht invariant ist unter der Transformation $(\alpha, \beta) \rightarrow (\alpha, -\beta)$. Somit ergibt sich dieselbe Lösungsstruktur wie für den undotierten Bulk, wobei nur noch die Inversion des Nichtlinearitätsparameters ($\beta \rightarrow -\beta$) bzw. der Frequenz berücksichtigt werden muss. Damit erhält man zwei konkurrierende Skews des elektronischen Response $\varpi^{\alpha\beta}(\tilde{b}) = \omega_0 + \varpi_{\alpha\beta}^{(2)}(\tilde{b})$ bezüglich $\mathcal{O}(\lambda)$ mit

$$HHG, (U)SubHG: \quad \varpi^{\alpha\beta}(\tilde{b}) = \omega_0 + \lambda \left(+\frac{3q\beta}{8p\omega_0} + \frac{\alpha^2(3\omega_0^2 - 8(p/q)^2\omega_\varepsilon^2)}{16\omega_0^3(p/q)^2\omega_\varepsilon^2 - 4\omega_0^5} \right) \tilde{b}^2 + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad \text{für } \omega_\varepsilon \neq \omega_0 \tag{18}$$

Für nichtzentrosymmetrische Medien ist die amplitudenabhängige Frequenzkorrektur dem Quadrat der Schwingungsamplitude proportional und $\beta=0$. Analog erhält man in $\mathcal{O}(\lambda)$ für zentrosymmetrische Medien (Bulk) mit $\alpha=0$ eine Frequenzkorrektur positiver Skewness, bzw. für dotiertes Volumenmaterial negative Skewness, welche jeweils dem Quadrat der

Schwingungsamplitude proportional sind. Für hohe nichtlineare Näherungen bis zu kleinen Größen 7. Ordnung lassen sich insgesamt folgende Korrekturfaktoren für erzeugte hohe Harmonische bestimmen:

$$\begin{aligned}
\tilde{x} = & -\lambda \frac{\alpha \tilde{b}^2}{2\omega_0^2} - \lambda^3 \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^3}{72\omega_0^6} - \lambda^5 \frac{10617\tilde{b}^6 \alpha^5}{41472\omega_0^{10}} + \\
& + \left(\lambda^2 \frac{\alpha^2 \tilde{b}^3}{6\omega_0^2} - \lambda^2 \frac{3\tilde{b}^4 \beta}{4} + \lambda^4 \frac{\tilde{b}^5 \alpha^4 55}{96\omega_0^6} + \lambda^6 \frac{49\tilde{b}^7 \alpha^6}{20736(\omega_0^{12} - \omega^2 \omega_0^{10})} \right) \cos(\omega t) \\
& + \left(\lambda \frac{\alpha \tilde{b}^2}{8\omega^2 - 2\omega_0^2} + \lambda^3 \frac{7\tilde{b}^4 \alpha^3}{48(\omega_0^6 - 4\omega^2 \omega_0^4)} + \lambda^5 \frac{491\tilde{b}^6 \alpha^5}{10368(\omega_0^{10} - 4\omega^2 \omega_0^8)} + \lambda^7 \frac{265916\tilde{b}^8 \alpha^7}{5971968(\omega_0^{12} - 4\omega^2 \omega_0^{12})} \right) \cos(2\omega t) \\
& + \left(\lambda^2 \frac{\tilde{b}^3 \alpha^2}{54\omega^2 \omega_0^2 - 6\omega_0^4} + \lambda^3 \frac{\tilde{b}^3 \beta}{32\omega_0^2} + \lambda^4 \frac{29\tilde{b}^5 \alpha^4}{432(\omega_0^8 - 9\omega^2 \omega_0^6)} + \lambda^6 \frac{319\tilde{b}^7 \alpha^6}{124416(\omega_0^{12} - 9\omega^2 \omega_0^{10})} \right) \cos(3\omega t) \\
& + \left(-\lambda^3 \frac{5\tilde{b}^4 \alpha^3}{144(\omega_0^6 - 16\omega^2 \omega_0^4)} + \lambda^5 \frac{385\tilde{b}^6 \alpha^5}{20736(\omega_0^{10} - 16\omega^2 \omega_0^8)} + \lambda^7 \frac{11110\tilde{b}^8 \alpha^7}{5971968(\omega_0^{14} - 16\omega^2 \omega_0^{12})} \right) \cos(4\omega t) \\
& + \left(-\lambda^4 \frac{5}{864\omega_0^6 - 25\omega^2 + \omega_0^2} + \lambda^6 \frac{11}{124416} \frac{B^7 \alpha^6 30}{(-25\omega^2 \omega_0^{10} + \omega_0^{12})} \right) \cos(5\omega t) \\
& + \left(\lambda^5 \frac{35}{41472} \frac{B^6 \alpha^5}{36\omega^2 \omega_0^8 - \omega_0^{10}} + \lambda^7 \frac{B^8 \alpha^7}{5971968} \frac{3741}{-36\omega^2 \omega_0^{12} + \omega_0^{14}} \right) \cos(6\omega t) \\
& + \lambda^6 \frac{11}{124416} \frac{B^7 \alpha^6}{(49\omega^2 \omega_0^{10} - \omega_0^{12})} \cos(7\omega t) - \lambda^7 \frac{81}{5971968} \frac{B^8 \alpha^7}{-64\omega^2 \omega_0^{12} + \omega_0^{14}} \cos(8\omega t)
\end{aligned} \tag{19}$$

Damit lassen sich sofort die Frequenzkorrekturen an Oberflächen und Bulkmaterialien erzeugten hohen Harmonischen bestimmen.

3. Singularitäten: In diesem Abschnitt werden die möglichen nichtlinearen Resonanzfälle NZS- und ZS- Materie betrachtet. Nach Voraussetzung liegen die 1- bzw. 2- Photonenresonanz, d. h. allgemein die höheren Harmonischen und Subharmonischen hinreichend nahe bei der natürlichen Resonanzfrequenz. Im Limes ist $\omega_\varepsilon \approx \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} (p/q) \omega_0 + \varepsilon \approx (p/q) \omega_0$, $\omega_\varepsilon \approx (p/q) \omega_0$. Nach Setzen der Variablentransformation $-\varkappa^\alpha b^2 = -\varpi_\alpha^{(2)}(\tilde{b}) = \alpha^2 (3\omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2) b^2 / 16\omega_\varepsilon^2 \omega_0^3 - 4\omega_0^5$ und $\varkappa^\beta b^2 = \varpi_\beta^{(2)}(\tilde{b}) = 3\beta/8\omega_0$, lassen sich allgemeingültige Ausdrücke für die nichtlinearen Koeffizienten zentro- und nichtzentrosymmetrischer Materie über deren Schnittstelle, in der Näherung kleiner Größen bis 2. Ordnung formulieren gemäß:

$$\begin{aligned}
& \left. \begin{array}{l}
\text{allgemein} \\
\text{Fundamentale} \\
\text{SubHG, } q \rightarrow \infty \\
\text{HHG, } p \rightarrow \infty
\end{array} \right\} \mathfrak{a}_{pq}^{\alpha\beta\mp} = \left(\begin{array}{l}
\left(\mp \frac{3\beta q}{8p\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3(p/q)^2 \omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{4 \left(4\omega_\varepsilon^2 (p/q)^3 \omega_0^3 - (p/q)^5 \omega_0^5 \right)} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0} \\
\left(\mp \frac{3\beta}{8\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3\omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{16\omega_\varepsilon^2 \omega_0^3 - 4\omega_0^5} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0} \quad \forall p_{(\beta)\alpha} = q_{(\beta)\alpha} = 1 \\
\left(\mp \frac{3\beta q}{8\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3(1/q)^2 \omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{4 \left(4\omega_\varepsilon^2 (1/q)^3 \omega_0^3 - (1/q)^5 \omega_0^5 \right)} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0} \\
\left(\mp \frac{3\beta}{8p\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3p^2 \omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{4 \left(4\omega_\varepsilon^2 p^3 \omega_0^3 - p^5 \omega_0^5 \right)} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0}
\end{array} \right) \quad (20) \\
& \forall \left\{ n \in \mathbb{N} \mid (p_\alpha, q_\alpha) = 2n \wedge (p_\beta, q_\beta) = 2n + 1 \right\}_{p_{(\beta)\alpha} \neq q_{(\beta)\alpha}}
\end{aligned}$$

mit den Skewnesskoeffizienten der Anharmonizität, $\mathfrak{a}_{pq}^{\alpha\beta\mp}$, welche mit $(\beta -)$ undotierten und mit $(\beta +)$ positiv dotierten Festkörperbulk berücksichtigt. Dabei ist zu beachten, dass für die Anharmonizitätspaare im nichtlinearen Regime, $(\alpha, \beta) \neq 0$, nichtzentrosymmetrische Materie an Singularitätsstellen gerader Ordnung und undotierte bzw. negativ dotierte zentrosymmetrische Materie an Singularitätsstellen ungerader Ordnung jeweils mit negativer Skewness skaliert. Für positiv dotierte zentrosymmetrische Materialien sowie deren Schnittstelle Oberfläche / Bulk ist zu berücksichtigen, dass die Nichtlinearität ein vollständiges Vorzeichen durchläuft und sich demzufolge eine Skewnessumkehr ergibt. Damit lässt sich die exakte Lösungsstruktur für die nichtlineare Amplitude, Suszeptibilität bzw. Brechungsindex, sowie der nichtlinearen Polarisation in den jeweiligen Näherungen finden. Dabei ist zu berücksichtigen, dass \mathfrak{a} mit einer Genauigkeit von $\mathcal{O}(1/\lambda^2)$ in die Berechnungen mit eingeht. Somit kann man für die jeweilige Materiegeometrie, in der Näherung kleiner Größen bis 2. Ordnung, gültig für Frequenzintervalle $\mathcal{O}(1/\lambda^2)$, den exakten Verlauf des nichtlinearen optischen Response für beliebig hohe Harmonische und Subharmonische vorhersagen. Beispielsweise für die betrach-

tete 1- Photonen und 2- Photonen Resonanz nichtzentrosymmetrischer- Materie im Fourier- raum lässt sich für $\beta=0$ mit der nichtlinearen Skelettkurve $\varpi^\alpha(\tilde{b}) = \omega_0 + \mathfrak{x}_{pq}^\alpha \tilde{b}^2$ exakt ange- ben, wobei sich die nichtlinearen Responsekoeffizienten ergeben zu:

$$\mathfrak{x}_{pq}^\alpha = \begin{cases} \text{1- Photonen Resonanz } p=q=1 & \frac{\alpha^2(3\omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2)}{16\omega_\varepsilon^2\omega_0^3 - 4\omega_0^5} & \text{für } \omega_\varepsilon \neq \omega_0 \\ \text{2- Photonen Resonanz} & & \\ \text{1. SubHG, } p=1, q=2 & -\frac{10\alpha^2}{3\omega_0^3} & \text{für } \omega_\varepsilon = \omega_0 \\ \text{SHG, } q=1, p=2 & -\frac{5\alpha^2}{96\omega_0^3} & \text{für } \omega_\varepsilon = \omega_0 \end{cases} \quad (21)$$

Bemerkenswert ist hierbei, dass für die hohen Harmonischen die Skewness immer mehr zu- nimmt, ganz im Gegensatz zu den Subharmonischen deren Skewness- Betrag immer weiter abnimmt. Diese Modellbildung stellt eine enorme Verbesserung des bisherigen nichtlinearen Modells dar (siehe z. B. [BRW03, Kapitel 1]), in der die Nichtlinearität nicht nur approxi- miert wurde, sondern in ihrem innersten Wesen exakt mathematisch berücksichtigt wurde. Dabei wird die Transformation der nichtlinearen Resonanzfunktion $D(\omega_k) \longrightarrow \mathcal{D}^\alpha(\omega_k)$ vorge- schlagen, wobei zusätzlich berücksichtigt werden muss, dass $\mathfrak{x}_{pq}^\alpha = \alpha^{-1}\mathfrak{x}_{pq}^\alpha$ bzw. $\omega_\alpha^{(2)}(\tilde{b}) = \alpha^{-1}\omega_\alpha^{(2)}(\tilde{b})$ wird. Dies ergibt sich, wenn die exakt auftretenden Singularitäten in den stö- rungstheoretischen Berechnungen berücksichtigt werden. Dies lässt sich in den hohen Nähe- rungen für "rein erzeugte" hohe Harmonische hervorragend bestätigen. Die exakte nichtlinea- re Amplitude lässt sich durch Störungsrechnung als modifizierten Satz von Gleichungen in Abhängigkeit der jeweils zugrundeliegenden Materiesymmetrie erhalten. Wie zuvor erwähnt, besteht das externe Feld aus N- Fourierkomponenten, wobei aufgrund der Linearität der Glei- chungen sich die Gesamtlösung aus einer Summe von N- Lösungskomponenten zusammen- setzt. Die stationäre Lösung kann durch einen Fourieransatz beschrieben werden:

$$\tilde{x}(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \tilde{x}^{(1)}(\omega_N) e^{i\omega_N t}, \quad \tilde{x}^{(1)}(t) = \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} + \tilde{x}^{(1)}(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} + \tilde{x}^{(1)}(\omega_3) e^{-i\omega_3 t} + \dots + c.c. \quad (22)$$

mit $\tilde{x}_{\omega_n} = \tilde{x}_{-\omega_n}^*$ für reelle Amplituden. Berücksichtigung der Differentiationen nach der Zeit liefert:

$$\begin{aligned}
& -\frac{e}{m_e} \left(\mathbf{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \mathbf{E}_3 e^{-i\omega_3 t} + \dots + c.c. \right) \\
& = \left(-\omega_1^2 \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} - \omega_2^2 \tilde{x}^{(1)}(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} - \omega_3^2 \tilde{x}^{(1)}(\omega_3) e^{-i\omega_3 t} + \dots + c.c. \right) \\
& + 2\gamma \left(-i\omega_1 \tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} - i\omega_2 \tilde{x}^{(1)}(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} - i\omega_3 \tilde{x}^{(1)}(\omega_3) e^{-i\omega_3 t} + \dots + c.c. \right) \\
& + \omega_0^2 \left(\tilde{x}^{(1)}(\omega_1) e^{-i\omega_1 t} + \tilde{x}^{(1)}(\omega_2) e^{-i\omega_2 t} + \tilde{x}^{(1)}(\omega_3) e^{-i\omega_3 t} + \dots + c.c. \right)
\end{aligned} \tag{23}$$

Einstrahlung beliebiger Fourierkomponente $\omega_{1\dots\xi}$ getragen von nur einem Feld unter Berücksichtigung ihrer komplex konjugierten $E_1 e^{-i\omega_{1\dots\xi} t} + c.c.$ und Vergleich der Fourierkomponenten $(\omega_1, \dots, \omega_\xi)$ der l. S. und der r. S. von Gleichung (23), ergibt Ausdrücke für die jeweilige Fourieramplitude $\tilde{x}^{(1)}(\omega_{1\dots\xi})$ welche lösbar ist mit

$$\begin{aligned}
(-\omega_{1\dots\xi}^2 + 2i\gamma\omega_{1\dots\xi} + \omega_0^2) \tilde{x}^{(1)}(\pm\omega_{1\dots\xi}) e^{-i\omega_{1\dots\xi} t} &= -\frac{e}{m_e} \left(E_1 e^{-i\omega_{1\dots\xi} t} + c.c. \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
x^{(1)}(\pm\omega_{1\dots\xi}) &= -\frac{e}{m_e} \left(\frac{E_{1\dots j} e^{-i\omega_{1\dots\xi} t}}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_{1\dots\xi})} + c.c. \right) + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned} \tag{24}$$

mit der komplexen resonanten Frequenzfunktion $\mathcal{D}^\alpha(\omega_k) = (p/q)^2 \omega_k^2 - \omega_0^2 - \alpha_{pq}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma(p/q)\omega_k$, wohlgermerkt **definiert auf die tatsächlich im Spektrum auftretenden reziproken Frequenzen**, für die gilt:

$$\left(\mathcal{D}_{pq}^\alpha(\omega_k) \right) = \begin{cases} \text{linear} & (p/q)^2 \omega_k^2 - \omega_0^2 - \alpha_{pq}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma(p/q)\omega_k = \infty & \text{für } \alpha=0 \\ \text{nichtlinear} & (p/q)^2 \omega_k^2 - \omega_0^2 - \alpha_{pq}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma(p/q)\omega_k & \text{für } \alpha \neq 0 \\ & (p/q)^2 \omega_k^2 - \omega_0^2 - \omega_\alpha^{(2)}(\tilde{b}) + 2i\gamma(p/q)\omega_k & \end{cases} \tag{25}$$

wobei ω_k im Resonanznenner, aufgrund der Einbeziehung ihrer c. c. Felder, sowohl positiv als auch negativ sein kann. Für nichtzentrosymmetrische Materie ergeben sich Elektronenresponses gerader Ordnung. Im Fall von zwei Fourierkomponenten des Photonenfeldes gibt es

letztendlich Frequenzresponses gemäß der Summenfrequenz- und Differenzfrequenzgenerati-
on und einen Gleichanteil. Der SHG Response für monochromatische photonische Felder
kann unter Berücksichtigung der bestimmten zeitlichen Entwicklung des Treiberterms
 $x^{(1)}(t) \rightarrow x^{(1)}(\omega_{1\dots\xi})$ durch Transformation in den Fourierraum gelöst werden. Substitution von
(22) in den Entwicklungsterm 1. nichtlinearer Ordnung der Störungsrechnung ergibt:

$$\begin{aligned} \ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2\tilde{x}^{(2)} &= -\alpha(\tilde{x}^{(1)})^2 \\ &= -\alpha\left(\frac{\frac{-e}{m_e}E_1e^{-i\omega_1t}}{\omega_1^2 - \omega_0^2 - \alpha_{11}^2\tilde{b}^2 + 2i\gamma\omega_1} + \frac{\frac{-e}{m_e}E_2e^{-i2\omega_2t}}{2\omega_2^2 - \omega_0^2 - \alpha_{21}^2\tilde{b}^2 + 2i\gamma2\omega_2} + c.c.\right)^2 \end{aligned} \quad (26)$$

Dazu muss in dieser Gleichung der quadratische Treiberterm $(\tilde{x}^{(1)})^2$ betrachtet werden. Die
Lösung liefert dann die entsprechenden neuen "exotischen" Frequenzterme. Im Falle von 2
Fourierkomponenten und deren komplex konjugierten des externen Photonenfeldes der Form
 $(m\omega_1 + n\omega_2)$ kann man folgende zu berücksichtigenden quadratischen Komponenten hin-
schreiben:

$$\begin{aligned} (\tilde{x}^{(1)})^2 \frac{m_e^2}{e^2} &= \left(\frac{E_1e^{-im\omega_1t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)} + \frac{E_2e^{-in\omega_2t}}{\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} + c.c.\right)^2 \\ &= \left(\frac{E_1e^{-im\omega_1t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)} + \frac{E_2e^{-in\omega_2t}}{\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)}\right)^2 + \left(\frac{E_1^*(e^{-im\omega_1t})^*}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^*} + \frac{E_2e^{-in\omega_2t}}{\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)}\right)^2 \\ &\quad + \left(\frac{E_1e^{+im\omega_1t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)} + \frac{E_2^*(e^{-in\omega_2t})^*}{\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^*}\right)^2 + \left(\frac{E_1^*(e^{-im\omega_1t})^*}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^*} + \frac{E_2^*(e^{-in\omega_2t})^*}{\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^*}\right)^2 \end{aligned} \quad (27)$$

Mathematische Umformungen ergeben folgende Einzelkomponenten mit Exponentialtermen
der Form $\{e^{\mp i2m\omega_1t}\}$, $\{e^{\mp i2n\omega_2t}\}$, $\{e^{-im\omega_1t} \times e^{-in\omega_2t}\}$, $\{e^{+im\omega_1t} \times e^{-in\omega_2t}\}$, $\{e^{-im\omega_1t} \times e^{+in\omega_2t}\}$,
 $\{e^{+im\omega_1t} \times e^{+in\omega_2t}\}$:

Damit erhält man:

$$\begin{aligned}
(\tilde{x}^{(1)})^2 \frac{m_e^2}{e^2} = & \left(\frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{2E_1 e^{-im\omega_1 t} E_2 e^{-in\omega_2 t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} \right. \\
& + \frac{E_1^{*2} (e^{-i2m\omega_1 t})^*}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^*)^2} + \frac{2E_1^* (e^{-im\omega_1 t})^* E_2 e^{-in\omega_2 t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} \\
& + \frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{2E_1 e^{-im\omega_1 t} E_2^* (e^{-in\omega_2 t})^*}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^*} + \frac{E_2^{*2} (e^{-i2n\omega_2 t})^*}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^*)^2} \\
& \left. + \frac{E_1^{*2} (e^{-i2m\omega_1 t})^*}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^*)^2} + \frac{2E_1^* (e^{-im\omega_1 t})^* E_2^* (e^{-in\omega_2 t})^*}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^*} + \frac{E_2^{*2} (e^{-i2n\omega_2 t})^*}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^*)^2} \right)
\end{aligned} \tag{28}$$

Zusammenfassung und Vereinfachung liefern Exponentialterme der Form $\{e^{\mp i2m\omega_1 t}\}$, $\{e^{\mp i2n\omega_2 t}\}$, $\{e^{\pm(m\omega_1+n\omega_2)t}\}$, $\{e^{\mp(m\omega_1-n\omega_2)t}\}$

$$\begin{aligned}
(\tilde{x}^{(1)})^2 \frac{m_e^2}{e^2} = & \left(\frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{2E_1 E_2 e^{-i(m\omega_1+n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{mq}^\alpha(n\omega_2)} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1))^2} + \right. \\
& + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i(m\omega_1-n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(n\omega_2)} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} + \frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{2E_1 E_2^* e^{-i(m\omega_1-n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{mq}^\alpha(n\omega_2)^*} \\
& \left. + \frac{E_2^{*2} e^{+i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2))^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1))^2} + \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(n\omega_2)^*} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2))^2} \right)
\end{aligned} \tag{29}$$

Sortieren der einzelnen Fourierkomponenten und Klassifizierung der einzelnen Terme führt neben den neuen Responses, bei der doppelten Frequenz $\pm 2m\omega_1$, $\pm 2n\omega_2$ auch noch zu Summen- und Differenzfrequenzen $\pm(m\omega_1+n\omega_2)$, $\pm(m\omega_1-n\omega_2)$ und einem Gleichanteil DC. Die Fourier Amplitude $x^{(2)}$ setzt sich also aus der Summe all dieser Komponenten zusammen.

$$\begin{aligned}
(\tilde{x}^{(1)})^2 \frac{m_e^2}{e^2} = & \left(\frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1))^2} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2))^2} + \right. \\
& + \frac{2E_1 E_2 e^{-i(m\omega_1 + n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} + \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i(m\omega_1 + n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i(m\omega_1 - n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} + \\
& \left. + \frac{2E_1 E_2^* e^{-i(m\omega_1 - n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} + \frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1))^2} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2))^2} \right) \quad (30)
\end{aligned}$$

Damit können die neuen Treiberterme mit einer Genauigkeit bis zu kleinen Größen zweiter Ordnung $\mathcal{O}(\lambda^2)$ in Abhängigkeit der generierten Frequenzen angegeben werden:

Hohe Harmonische (HHG) $\pm(2m\omega_1)$, $\pm(2n\omega_2)$:

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 (\pm 2m\omega_1) = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1))^2} \right) + \mathcal{O}(\lambda^3) \quad (31)$$

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 (\pm 2n\omega_2) = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2))^2} \right) \quad (32)$$

Summenfrequenzerzeugung (SFG) und Differenzfrequenzerzeugung (DFG)

$\pm(m\omega_1 \pm n\omega_2)$:

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 \{\pm(m\omega_1 + n\omega_2)\} = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2 e^{-i(m\omega_1 + n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} + \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i(m\omega_1 + n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} \right) \quad (33)$$

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 \{\pm(m\omega_1 - n\omega_2)\} = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2^* e^{-i(m\omega_1 - n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i(m\omega_1 - n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} \right) \quad (34)$$

Gleichanteil (DC):

$$P(0) \frac{m_e^2}{e^2} = \left(\frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} + \frac{E_1^* E_2^* e^{+i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1))^2} + \frac{E_2^* e^{+i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2))^2} \right) \quad (35)$$

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 \{P(0)\} = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{E_1^2 e^{-i2m\omega_1 t}}{(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1))^2} + \frac{E_2^2 e^{-i2n\omega_2 t}}{(\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2))^2} + c.c. \right) \quad (36)$$

Zur Bestimmung des Summenresponse in $\mathcal{O}(\lambda)$ mit den Frequenzen $\{\pm(m\omega_1 + n\omega_2)\}$ erhält man durch Berücksichtigung der entsprechenden Frequenz- Treiberterme.

$$\begin{aligned} \lambda: \quad \ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma \dot{\tilde{x}}^{(2)} + \varpi_0^2 \tilde{x}^{(2)} &= -\alpha (\tilde{x}^{(1)})^2 \\ &= -\frac{\alpha e^2}{m_e^2} \frac{2E_1 E_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1) \mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_2)} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \end{aligned} \quad (37)$$

Dabei entspricht der für die positive Frequenzkomponente $\omega_{mn} = +(m\omega_1 + n\omega_2)$ zu berücksichtigende Treiberfeldterm

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 = \frac{2(e/m_e)^2 E_1 E_2 e^{-i(m\omega_1 + n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)},$$

$$(\tilde{x}^{(1)*})^2 = \frac{2(e/m_e)^2 E_1^* E_2^* e^{+i(m\omega_1 + n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)}$$

den negativen Fourierkomponenten $\omega_{mn} = -(m\omega_1 + n\omega_2)$.

Die stationäre Lösung für die Summenfrequenzerzeugung und deren zeitlichen Ableitungen für c. c. Felder sind von der Form

$$\left. \begin{aligned} \tilde{x}^{(2)}(t) &= \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 + n\omega_2) e^{+i(m\omega_1 + n\omega_2)t}, \\ 2\gamma \dot{\tilde{x}}^{(2)}(t) &= +2\gamma i(m\omega_1 + \omega_2) \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 + n\omega_2) e^{+i(m\omega_1 + n\omega_2)t}, \\ \ddot{\tilde{x}}^{(2)}(t) &= -(m\omega_1 + n\omega_2)^2 \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 + n\omega_2) e^{+i(m\omega_1 + n\omega_2)t}. \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

Substitution von (38) in (37) ergibt für komplex konjugierte optische Felder:

$$\begin{aligned}
-\frac{2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} &= -(m\omega_1+n\omega_2)^2 \boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1+n\omega_2)^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t} \\
&+ 2\gamma i(m\omega_1+n\omega_2) \boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1+n\omega_2)^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t} \\
&+ \omega_0^2 \boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1+n\omega_2)^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t}
\end{aligned} \tag{39}$$

Elementare mathematische Umformungen liefern einen Ausdruck, welcher für alle Zeiten t erfüllt sein muss.

$$\begin{aligned}
\frac{2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t}}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} &= \boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1+n\omega_2)^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t} \\
&\times \left\{ -(m\omega_1+n\omega_2)^2 - 2i\gamma(m\omega_1+n\omega_2) + \omega_0^2 \boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1+n\omega_2) \right\}^* \\
&= \boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1+n\omega_2)^* e^{+i(m\omega_1+n\omega_2)t} \times \mathcal{D}_{m+n,q}^\alpha(\omega_1+n\omega_2)^*
\end{aligned} \tag{40}$$

Dies ist nur der Fall, wenn der Klammerausdruck in (40), welcher der komplexen Frequenzfunktion für Summenfrequenzerzeugung (SFG) entspricht, sich aufhebt. Damit ergibt sich die Fourieramplitude für SFG zu:

$$\boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1+n\omega_2)^* = -\frac{2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{m+n,q}^\alpha(m\omega_1+n\omega_2)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} \tag{41}$$

für identische Frequenzen $m\omega_1 = n\omega_2$ kann sofort auf die negative Fourierkomponente der zweiten Harmonischen geschlossen werden. Für leiche Amplitudenwerte lässt sich anschreiben:

$$\boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(2\omega_1)^* = \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{2m,q}^\alpha(2m\omega_1)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1) \mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1)} \equiv \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^{*2}}{\mathcal{D}_{2m,q}^\alpha(2m\omega_1)^* \left(\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \right)^2} \tag{42}$$

Analog zur mathematischen Modellierung von SFG erhält man die Ausdrücke für die Fourieramplitude für DFG $\boldsymbol{\chi}_\alpha^{(2)}(m\omega_1-n\omega_2)^*$ für den negativen Differenzfrequenzbereich $-(m\omega_1-n\omega_2)$ zu:

$$\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 - n\omega_2)^* = \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_2 E_1^*}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2) \mathcal{D}_{m-n,q}^\alpha(m\omega_1 - n\omega_2)^*} \quad (43)$$

Werden wiederum identische Frequenzen betrachtet so ergibt sich daraus der Gleichanteil c. c. zu:

$$\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(0)^* \equiv \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(0) = \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_1}{\mathcal{D}^\alpha(0)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)} - \frac{2\alpha(e/m_e)^2 E_2^* E_2}{\mathcal{D}^\alpha(0)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} \quad (44)$$

Insgesamt erhält man hiermit zwei Sätze von "exotischen" Ausdrücken zur Beschreibung der Wechselwirkung von bichromatischem Licht mit zentrosymmetrischer Materie, welche Singularitäten bzw. in dissipativer Umgebung behobene Singularitäten bei den Frequenzen $\pm 2\omega_1$, $\pm 2\omega_2$, $\pm(\omega_1 + \omega_2)$, $\pm(\omega_1 - \omega_2)$ generieren. Für die negativen Frequenzkomponenten läßt sich folgender Satz von Gleichungen anschreiben

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(2m\omega_1)^* &= \frac{-\alpha(e/m_e)^2 (E_1^*)^2}{\mathcal{D}_{2m,q}^\alpha(2m\omega_1)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^*} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\ \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(2n\omega_2)^* &= \frac{-\alpha(e/m_e)^2 E_2^{*2}}{\mathcal{D}_{2m,q}^\alpha(2n\omega_2)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(+n\omega_2)^*} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\ \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 + n\omega_2)^* &= \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_2^* E_1^*}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{11}^\alpha(n\omega_2)^* \mathcal{D}^\alpha(m\omega_1 + n\omega_2)^*} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\ \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 - n\omega_2)^* &= \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_2 E_1^*}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{11}^\alpha(n\omega_2) \mathcal{D}^\alpha(m\omega_1 - n\omega_2)^*} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\ \mathbf{x}_\alpha^{(2)}(0)^* &= \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_1}{\mathcal{D}^\alpha(0)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)^* \mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)} - \frac{2\alpha(e/m_e)^2 E_2^* E_2}{\mathcal{D}^\alpha(0)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)^* \mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^2) \end{aligned} \right\} \quad (45)$$

bzw. ihrer c. c. komplex konjugierten photonischen Felder für den positiven Frequenzbereich:

$$\left. \begin{aligned}
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(2m\omega_1) &= \frac{-\alpha (e/m_e)^2 E_1^2}{\mathcal{D}_{2m,q}^\alpha(2m\omega_1)\mathcal{D}_{11}^\alpha(+m\omega_1)} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(2n\omega_2) &= \frac{-\alpha (e/m_e)^2 E_2^2}{\mathcal{D}_{2n,q}^\alpha(2n\omega_2)\mathcal{D}_{11}^\alpha(+n\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 + n\omega_2) &= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1 E_2}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)\mathcal{D}_{nq}^\alpha(+n\omega_2)\mathcal{D}_{m+n}^\alpha(m\omega_1 + n\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(m\omega_1 - n\omega_2) &= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1 E_2^*}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)\mathcal{D}_{m-n,q}^\alpha(m\omega_1 - n\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(0) &= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1 E_1^*}{\mathcal{D}^\alpha(0)\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1)\mathcal{D}_{mq}^\alpha(-m\omega_1)} - \frac{2\alpha (e/m_e)^2 E_2 E_2^*}{\mathcal{D}^\alpha(0)\mathcal{D}_{nq}^\alpha(n\omega_2)\mathcal{D}_{nq}^\alpha(-n\omega_2)} + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned} \right\} \quad (46)$$

mit der exakten komplexen, nichtlinearen Resonanzfunktion:

$$\left(\mathcal{D}_{mn,q}^\alpha(\omega_k) \right) = \begin{cases} \text{linear} & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} \omega_k & \text{für } \alpha=0 \\ & \rightarrow \infty \\ \text{nichtlinear} & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 - \mathfrak{x}_{mn,q}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} \omega_k & \text{für } \alpha \neq 0 \\ & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 - \omega_\alpha^{(2)}(\tilde{b}) + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} \omega_k & \end{cases} \quad (47)$$

Die nichtlineare Fourieramplitude Amplitude $\mathbf{x}_\alpha^{(2)}$ hoher Harmonischer und (U)SubHG setzt sich aus der Summe all dieser Komponenten zusammen. 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 lorentzförmig beeinflusst. Zusätzlich muss für den Nichtlinearitätsparameter mit $(\alpha, \beta) \rightarrow (|\alpha|, -\beta)$ berücksichtigt werden, dass nichtzentrosymmetrische Materie nicht invariant ist unter der Transformation $(\alpha, \beta) \rightarrow (\alpha, -\beta)$. Dies impliziert die Tatsache, dass die Orientierung des nichtlinearen Skewness- Effekts aufgrund der quadratischen Amplitudenabhängigkeit für nichtzentrosymmetrische Materie rein frequenzabhängig ist. Damit kann ein allgemeingültiger Ausdruck für die nichtlineare Elektron- Multiphotonenwechselwirkung

formuliert werden. Für nichtzentrosymmetrische Materie ergibt sich insgesamt folgende allgemeine Lösung der Form:

$$\delta_{\alpha\alpha_0} \times x_{lin} + \theta(\alpha) \mathbf{x}_{\alpha,nonlin}^{(n)}$$

$$\delta_{\alpha\alpha_0} \times \frac{-(e/m_e)E_1}{D_{mq}(m\omega_1)} + \theta(\alpha) \frac{-2(e/m_e)^2 E_1 E_2}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(+n\omega_2) \mathcal{D}_{m+n,q}^\alpha(m\omega_1 + n\omega_2)} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (48)$$

mit

$$\theta(\alpha) = \begin{cases} 1 & \text{für } \alpha > 0 \\ 0 & \text{für } \alpha = \alpha_0 \end{cases} \quad (49)$$

und

$$\delta_{\alpha\alpha_0} = \begin{cases} 0 & \text{für } \alpha \neq \alpha_0 & \text{nichtlinear} \\ 1 & \text{für } \alpha = \alpha_0 & \text{linear} \end{cases} \quad (50)$$

wobei $\alpha_0 = 0$ gilt. Für zentrosymmetrische Materie kann nachfolgende allgemeine Lösung formuliert werden:

$$\delta_{\alpha\alpha_0} \times x_{lin} + \theta(\alpha) \mathbf{x}_{\alpha,nonlin}^{(n)}$$

$$\delta_{\alpha\alpha_0} \times \frac{-(e/m_e)E_1}{D_{mq}(m\omega_1)} + \theta(\alpha) \frac{-2(e/m_e)^2 E_1 E_2}{\mathcal{D}_{mq}^\alpha(m\omega_1) \mathcal{D}_{nq}^\alpha(+n\omega_2) \mathcal{D}_{m+n,q}^\alpha(m\omega_1 + n\omega_2)} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (51)$$

mit

$$\theta(\alpha) = \begin{cases} 1 & \text{für } |\alpha| > 0 \\ 0 & \text{für } \alpha = \alpha_0 \end{cases} \quad (52)$$

und

$$\delta_{\alpha\alpha_0} = \begin{cases} 0 & \text{für } \alpha \neq \alpha_0 & \text{nichtlinear} \\ 1 & \text{für } \alpha = \alpha_0 & \text{linear} \end{cases} \quad (53)$$

Zur weiteren Erforschung der nichtlinearen Materiewechselwirkung wird die mathematische Struktur in der entwickelten Modellbildung betrachtet und deren berechnete Konfiguration für die Untersuchung für den Hochforschungsbereich der Photo- und Spinströme zugrundegelegt.

4. Photo- und Spinströme: Die exakte nichtlineare Dynamik der erzeugten Photo- und Spinströme, kann im Rahmen der klassischen Feldtheorie durch die nichtlineare o. g. ODE () beschrieben werden. Es ist eine nichtlineare Beschreibung notwendig, da man durch Multiwellenmischen, hier mit 2 Farben Anregung, sich im nichtlinearen Regime befindet. Im nichtlinearen Regime sind die durch das Superpositionsprinzip bedingten (quantenmechanischen) Interferenzphänomene nicht mehr so einfach wie in der linearen Theorie handhabbar, da hier das Superpositionsprinzip verletzt ist. Diese müssen aber berücksichtigt werden, da sie zur Steuerung und Kontrolle der Dynamik des Nicht- Gleichgewichtsprozesses dient. Dieses nichtlineare System ist nur numerisch lösbar und wird hier erstmals für dieses Problem exakt gelöst. Die für die kohärente Erzeugung von Photo- und Spinströmen benötigten 2- Farben Lichtfelder mit der Fundamentalfrequenz und der 2. Harmonischen besitzen die Form:

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{E}}(t) &= \mathbf{e}_{\omega_1} \tilde{\mathbf{E}}_{\omega_1}(t) + \mathbf{e}_{2\omega_2} \tilde{\mathbf{E}}_{2\omega_2}(t) \\ &= \mathbf{e}_{\omega_1} \tilde{\mathbf{E}}_{\omega_1} e^{-i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})} + \tilde{\mathbf{E}}_{2\omega_2} e^{-i(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})} + c.c. \\ &= \mathbf{e}_{\omega} \tilde{\mathbf{E}}_{\omega} e^{-i(\omega t + \phi_{\omega})} + \mathbf{e}_{2\omega} \tilde{\mathbf{E}}_{2\omega} e^{-i(2\omega t + \phi_{2\omega})} + c.c. \end{aligned} \quad (54)$$

und für kohärente HHG und (U)SubHG

$$\tilde{\mathbf{E}}(t) = \mathbf{e}_{m\omega} \tilde{\mathbf{E}}_{m\omega} e^{-i(m\omega t + \phi_{m\omega})} + \mathbf{e}_{2n\omega} \tilde{\mathbf{E}}_{2n\omega} e^{-i(2n\omega t + \phi_{2n\omega})} + c.c. \quad (55)$$

wobei m und n für Integerwerte hohe Harmonische und Teilwerte von diesen (U)SubHG Felder berücksichtigen, mit $\mathbf{e}_{(m)\omega, (n)2\omega}$ als die jetzt zu berücksichtigenden Polarisationsrichtungen der optischen Felder zueinander. Für $\mathbf{e}_{(m)\omega} \parallel \mathbf{e}_{(n)2\omega}$, d. h. zwei zueinander linear polarisierte parallele Pulse mit den Zentralfrequenzen der Fundamentalen und 2. Harmonischen, ω und 2ω , (hohe harmonische und (U)SubHG $m\omega + 2n\omega$) werden Ladungsströme unter Nutzung von Interferenzerscheinungen der Ein- und Zwei-Photonen- Übergängen (bzw. m - und $2n$ -Übergänge) optisch erzeugt, anstatt durch ein äußeres, schwaches, statisches Feld. Die Photostromgeneration und deren Dynamik können im Rahmen der neuen Modellbildung unter Berücksichtigung nichtlinearer Effekte beschrieben werden. Durch die parallele optische Zwei-Puls-Anregung lassen sich Elektronverteilungen erzeugen, die im k -Raum eine bestimmte Vorzugsrichtung aufweisen. Diese Verteilungen entsprechen einem makroskopischen Ladungsstrom in positiver oder negativer Polarisationsrichtung ganz unabhängig vom Spin. Das Vorzeichen des Stroms kann durch die Phase der verwendeten Laserpulse gesteuert werden. Es lassen sich durch modifizierte Anregungsbedingungen in Form von gekreuzten kohärenten optischen Pulsen $\mathbf{e}_\omega \perp \mathbf{e}_{2\omega}$ mit $\hbar\omega < \tilde{\mathbf{E}}_{\omega_1} < 2\hbar\omega$ reine Spinströme ohne zusätzliche Ladungsströme erhalten [nach R. D. R. Bhat und J. E. Sipe aus dem Jahr 2000]. Nach dieser Anregungsform liegt ein reiner Spintransport vor, ohne makroskopischen Ladungsstrom, da die zu den Elektronen mit unterschiedlichem Spin gehörenden Verteilungen genau entgegengesetzte Ströme erzeugen. Zunächst sollen die Betrachtungen auf beliebige kohärente Fundamental und SHG- Anregungsfrequenzen ausgeweitet werden um daraus die Photo- und Spinströme beschreiben zu können und relevante Unterschiede erkennen zu können. Es ergeben sich für allgemeine Anregungsfrequenzen der Form $(\omega_1 + 2\omega_2)$ gemischte Exponentialterme der Form $\left\{ e^{\mp i 2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})} \right\}$, $\left\{ e^{\mp i 2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})} \right\}$, $\left\{ e^{-i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})} \times e^{-i(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})} \right\}$, $\left\{ e^{+i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})} \times e^{-i(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})} \right\}$, $\left\{ e^{-i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})} \times e^{+i(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})} \right\}$, $\left\{ e^{+i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})} \times e^{+i(2\omega_2 t)} \right\}$. Daraus ergeben sich mit $\left\{ e^{\mp i 2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})} \right\}$, $\left\{ e^{\mp i 2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})} \right\}$, $\left\{ e^{\mp i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))} \right\}$, $\left\{ e^{\pm i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))} \right\}$ Anregungen bei der doppelten und vierfachen Frequenz und gemischte Summen- und Differenzfrequenzen. Nur noch für Frequenzen $\omega_1 = \pm 2\omega_2$ ergibt sich ein Gleichanteil.

$$\begin{aligned}
(\tilde{x}^{(1)})^2 = & \left(\frac{e}{m_e} \right)^2 \left(\frac{E_1^2 e^{-i2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{2E_1 E_2 e^{-i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} + \frac{E_2^2 e^{-i2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^2} \right. \\
& + \frac{E_1^{*2} e^{+i2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} + \frac{E_2^2 e^{-i2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^2} \\
& + \frac{E_1^2 e^{-i2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{2E_1 E_2^* e^{-i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})) \right)^2} \\
& \left. + \frac{E_1^{*2} e^{+i2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega_2) \right)^2} \right) \quad (56)
\end{aligned}$$

Treiberterm Response von ω_1 an 2. Harmonischen (SHG) $\pm(2\omega_1 + 2\phi_{\omega_1})$:

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 (\pm 2(\omega_1 + \phi_{\omega_1})) = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{E_1^2 e^{-i2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i2(\omega_1 t + \phi_{\omega_1})}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \right)^2} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (57)$$

Treiberterm Response ω_2 an 4. Harmonischen (FHG) $\pm(4\omega_2 + 2\phi_{2\omega_2})$:

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 (\pm(4\omega_2 + 2\phi_{2\omega_2})) = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{E_2^2 e^{-i2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^2} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega_2 - \phi_{2\omega_2}) \right)^2} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (58)$$

Treiberterm gemischte Summenfrequenzanregung (gSFG) $\pm((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))$:

$$\begin{aligned}
& (\tilde{x}^{(1)})^2 \left\{ \pm((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})) \right\} \\
& = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2 e^{-i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} + \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega_2 - \phi_{2\omega_2})} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (59)
\end{aligned}$$

Treiberterm gemischte Differenzfrequenzanregung (gDFG) $\pm((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))$:

$$\begin{aligned}
& (\tilde{x}^{(1)})^2 \left\{ \pm \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right) \right\} \\
&= \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega_2 - \phi_{2\omega_2})} + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned} \tag{60}$$

Treiberterm Anregungsgleichanteil (DC):

$$\begin{aligned}
& (\tilde{x}^{(1)})^2 \left\{ \pm (\omega_1 + \phi_{\omega_1}) = (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}); (\omega_1 + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) = 0 \right\} \\
&= \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2^* e^{-i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega_2)} + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i(\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1})^* \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2)} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
&= \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1^2}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})^*} + \frac{2E_2^2}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})^* \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} \right. \\
&\quad \left. + \frac{2E_1^{*2}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})^* \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} + \frac{2E_2^{*2}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})^*} + \mathcal{O}(\lambda^2) \right)
\end{aligned} \tag{61}$$

$$\begin{aligned}
& (\tilde{x}^{(1)})^2 \left\{ \pm (\omega_1 + \phi_{\omega_1}) = (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}); (\omega_1 + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) = 0 \right\} \\
&= \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1^2}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{2E_1^2}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^2} + \frac{2E_1^{*2}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{2E_2^{*2}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega_2 - \phi_{2\omega_2}) \right)^2} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
&= \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \right)^2} + \frac{2E_1 E_2}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^2} + c.c \right) + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned} \tag{62}$$

Die Betrachtung der einhergehenden Entstehung und Dynamik von Photo- und Spinströmen durch die Elektron-Photonen Wechselwirkung mit den Einstrahlungsfrequenzen $((\omega t + \phi_\omega) + (2\omega t + \phi_{2\omega}))$ liefert Exponentialkomponenten der Form $\{e^{\mp i2(\omega t + \phi_\omega)}\}$, $\{e^{\mp i2(2\omega t + \phi_{2\omega})}\}$, $\{e^{-i(\omega t + \phi_\omega)} \times e^{-i(2\omega t + \phi_{2\omega})}\}$, $\{e^{+i(\omega t + \phi_\omega)} \times e^{-i(2\omega t + \phi_{2\omega})}\}$, $\{e^{-i(\omega t + \phi_\omega)} \times e^{+i(2\omega t + \phi_{2\omega})}\}$, $\{e^{+i(\omega t + \phi_\omega)} \times e^{+i2\omega}\}$. Somit erhält ein Spektrum für Photo- und Spinströme, welches neben der Anregung an der Hauptresonanz noch neue Responses für positive und negative doppelte, dreifache und vierfache Frequenzen mit entsprechendem Phasenanteil, $\pm 2\omega_1$, $\pm 3\omega_1$, $\pm 4\omega_1$, enthält. Der Gleichanteil DC 0 verschwindet gänzlich. Damit lässt sich anschreiben:

$$\begin{aligned}
(\tilde{x}^{(1)})^2 = & \left(\frac{e}{m_e} \right)^2 \left(\frac{E_1^2 e^{-i2(\omega t + \phi_\omega)}}{(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega + \phi_\omega))^2} + \frac{2E_1 E_2 e^{-i(3\omega t + \phi_\omega + \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega})} + \frac{E_2^2 e^{-i2(2\omega t + \phi_{2\omega})}}{(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega}))^2} \right. \\
& + \frac{E_1^{*2} e^{+i2(\omega t + \phi_\omega)}}{(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega))^2} + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i(-\omega t + \phi_\omega - \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega})} + \frac{E_2^2 e^{-i2(2\omega t + \phi_{2\omega})}}{(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega}))^2} \\
& + \frac{E_1^2 e^{-i2(\omega t + \phi_\omega)}}{(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega + \phi_\omega))^2} + \frac{2E_1 E_2^* e^{-i(-\omega t + \phi_\omega - \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega + \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega t + \phi_{2\omega}))} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2(2\omega t + \phi_{2\omega})}}{(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-(2\omega + \phi_{2\omega})))^2} \\
& \left. + \frac{E_1^{*2} e^{+i2(\omega t + \phi_\omega)}}{(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega))^2} + \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i(3\omega t + \phi_\omega + \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega + \phi_{2\omega}))} + \frac{E_2^{*2} e^{+i2(2\omega t + \phi_{2\omega})}}{(\mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega))^2} \right) \quad (63)
\end{aligned}$$

Die Fourier Amplitude $x^{(2)}$ für die Dynamik der erzeugten Photo- und Spinströme setzt sich also aus der Summe all dieser verbleibenden Komponenten zusammen. Damit können die neuen Treiberterme der neuen Photo- und Spinstromanregungen für die erzeugten Photo- und Spinströme mit einer Genauigkeit bis zu kleinen Größen zweiter Ordnung $\mathcal{O}(\lambda^2)$ in Abhängigkeit der generierten Frequenzen $\{e^{\mp i2(\omega t + \phi_\omega)}\}$, $\{e^{\mp i(3\omega t + \phi_\omega + \phi_{2\omega})}\}$, $\{e^{\mp i(4\omega t + 2\phi_{2\omega})}\}$, $\{e^{\pm i(+\phi_\omega - \omega t - \phi_{2\omega})}\}$ angegeben werden:

Fundamentalanregung:

$$\begin{aligned}
& (\tilde{x}^{(1)})^2 (\pm(\omega + \phi_\omega)) \\
& = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2^* e^{-i(-\omega t + \phi_\omega - \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega + \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega + \phi_{2\omega}))} + \frac{2E_1^* E_2 e^{+i(-\omega t + \phi_\omega - \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega})} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (64)
\end{aligned}$$

Treiberterm Photo- und Spinstrom- Response von ω_1 an 2. Harmonischen (SHG)

$\pm(2(\omega + \phi_\omega))$:

$$(\tilde{x}^{(1)})^2 (\pm 2(\omega t + \phi_\omega)) = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{E_1^2 e^{-i2(\omega t + \phi_\omega)}}{(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega t + \phi_\omega))^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i2(\omega t + \phi_\omega)}}{(\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega))^2} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (65)$$

Treiberterm Photo- und Spinstrom- Response von ω_1 an dritter Harmonischen (THG)

$\pm(3\omega + \phi_\omega + \phi_{2\omega})$:

$$\begin{aligned}
& \left(\tilde{x}^{(1)} \right)^2 \left(\pm (3\omega t + \phi_\omega + \phi_{2\omega}) \right) \\
&= \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{2E_1 E_2 e^{-i(3\omega t + \phi_\omega + \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha (\omega + \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha (2\omega + \phi_{2\omega})} + \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i(3\omega t + \phi_\omega + \phi_{2\omega})}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha (-\omega - \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha (-(2\omega + \phi_{2\omega}))} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (66)
\end{aligned}$$

Treiberterm Photo- und Spinstrom- Response von ω_1 an vierter Harmonischen (FHG)
 $\pm(4\omega + 2\phi_{2\omega})$:

$$\left(\tilde{x}^{(1)} \right)^2 \left(\pm (4\omega + 2\phi_{2\omega}) \right) = \frac{e^2}{m_e^2} \left(\frac{E_1^2 e^{-i(4\omega t + 2\phi_{2\omega})}}{\left(\mathcal{D}_{21}^\alpha (2\omega + \phi_{2\omega}) \right)^2} + \frac{E_1^{*2} e^{+i(4\omega t + 2\phi_{2\omega})}}{\left(\mathcal{D}_{11}^\alpha (-(2\omega + \phi_{2\omega})) \right)^2} \right) + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (67)$$

Zur Bestimmung des allgemeinen Summenresponse in $\mathcal{O}(\lambda^2)$ mit den Frequenzen $\left\{ \pm \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right) \right\}$ erhält man durch Berücksichtigung der entsprechenden Frequenz- Treiberterme.

$$\begin{aligned}
\lambda: \quad \ddot{\tilde{x}}^{(2)} + 2\gamma \dot{\tilde{x}}^{(2)} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(2)} &= -\alpha \left(\tilde{x}^{(1)} \right)^2 \left\{ \pm \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right) \right\} \\
&= -\frac{\alpha e^2}{m_e^2} \frac{2E_1 E_2 e^{-i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha (\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha ((2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \quad (68)
\end{aligned}$$

Dabei entspricht der für die positive Frequenzkomponente $\omega_\xi = (\omega_1 + 2\omega_2)$ zu berücksichtigende

$$\text{Treiberfeldterm } \left(\tilde{x}^{(1)} \right)^2 \left\{ \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right) \right\} = \frac{e^2}{m_e^2} \frac{2E_1 E_2 e^{-i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha (\omega_1 + \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})},$$

der komplex konjugierte Term

$$\left(\tilde{x}^{(1)*} \right)^2 \left\{ \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^* \right\} = \frac{e^2}{m_e^2} \frac{2E_1^* E_2^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha (-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha (-(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))} \text{ den negativen Fou-}$$

rierkomponenten $\omega_\xi = -\left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)$. Die stationäre Lösung für die Summenfrequenzzeugung und deren zeitlichen Ableitungen für c. c. Felder sind von der Form:

$$\left. \begin{aligned}
\tilde{x}^{(2)}(t) &= \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) + \phi_{2\omega_2} \right) e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}, \\
2\gamma \dot{\tilde{x}}^{(2)}(t) &= 2\gamma i \left((\omega_1 + \dot{\phi}_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \dot{\phi}_{2\omega_2}) + \dot{\phi}_{2\omega_2} \right) \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right) e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}, \\
\ddot{\tilde{x}}^{(2)}(t) &= - \left((\omega_1 + \ddot{\phi}_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \ddot{\phi}_{2\omega_2}) \right)^2 \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right) e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}.
\end{aligned} \right\} \quad (69)$$

Substitution von (69) in (68) ergibt für komplex konjugierte optische Felder:

$$\begin{aligned}
& \frac{2\alpha (e/m_e)^2 E_1^* E_2 e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))} \\
&= - \left((\omega_1 + \ddot{\phi}_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \ddot{\phi}_{2\omega_2}) \right)^2 \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))} \\
&+ 2\gamma i \left((\omega_1 t + \dot{\phi}_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \dot{\phi}_{2\omega_2}) \right) \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \dot{\phi}_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}) \right)^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))} \\
&+ \omega_0^2 \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}) + \phi_{2\omega_2} \right)^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}
\end{aligned} \quad (70)$$

Mathematische Umformungen liefern einen Ausdruck, welcher für alle Zeiten t erfüllt sein muss.

$$\begin{aligned}
& \frac{2\alpha (e/m_e)^2 E_1^* E_2 e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))}}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))} = \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}) \right)^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))} \\
&\times \left\{ - \left((\omega_1 + \ddot{\phi}_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \ddot{\phi}_{2\omega_2}) \right)^2 - 2i\gamma \left((\omega_1 + \dot{\phi}_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \dot{\phi}_{2\omega_2}) \right) + \omega_0^2 \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}) \right) \right\} \\
&= \boldsymbol{\kappa}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}) \right)^* e^{+i((\omega_1 t + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}))} \times \mathcal{D}_{11;21}^\alpha \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 t + \phi_{2\omega_2}) \right)^*
\end{aligned} \quad (71)$$

Dies ist nur der Fall, wenn der Klammerausdruck in (71), welcher der nichtlinearen komplexen Denominatorfunktion für gemischte Summenfrequenzerzeugung (gSFG) entspricht, sich aufhebt. Damit ergibt sich die Fourieramplitude für gSFG zu:

$$\begin{aligned}
& \mathbf{x}_\alpha^{(2)} \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)^* \\
& = - \frac{2\alpha (e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{11;21}^\alpha \left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + 2\omega_2 \right)^* \mathcal{D}_{11}^\alpha (-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha \left(-(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}) \right)} \quad (72)
\end{aligned}$$

Für identische Frequenzen $\omega_1 = \omega_2$ kann sofort auf die negative und alle weiteren Fourierkomponenten der Anregung der der Photo- und Spinströme in Form der Fundamentalen und zweiten Harmonischen geschlossen werden.

$$\mathbf{x}_\alpha^{(2)} (3\omega + \phi_\omega + \phi_{2\omega})^* = \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{31}^\alpha (3\omega + \phi_\omega + \phi_{2\omega})^* \mathcal{D}_{11}^\alpha (\omega + \phi_\omega)^* \mathcal{D}_{21}^\alpha (2\omega + \phi_{2\omega})^*} \quad (73)$$

Insgesamt erhält man hiermit zwei Sätze von neuen "exotischen" Ausdrücken zur Beschreibung der Kinetik von Photo- und Spinströmen:

$$\begin{aligned}
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(2(\omega t + \phi_\omega))^* &= \frac{-\alpha(e/m_e)^2 E_1^{*2}}{\mathcal{D}_{21}^\alpha(2(\omega t + \phi_\omega))^* (\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega))^2} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(4\omega + 2\phi_{2\omega})^* &= \frac{-\alpha(e/m_e)^2 E_1^{*2}}{\mathcal{D}_{41}^\alpha(4\omega + 2\phi_{2\omega})^* (\mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega + \phi_{2\omega})))^2} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}\left(\left(\omega_1 + \phi_{\omega_1}\right) + \left(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}\right)\right)^* &= -\frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{11;21}^\alpha\left(\left(\omega_1 + \phi_{\omega_1}\right) + \left(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}\right)\right)^* \mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(-(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}))} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(3\omega + \phi_\omega + \phi_{2\omega})^* &= \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{31}^\alpha(3\omega + \phi_\omega + \phi_{2\omega})^* \mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega + \phi_\omega)^* \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega})^*} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}\left(\left(\omega_1 + \phi_{\omega_1}\right) - \left(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}\right)\right)^* &= \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{11;21}^\alpha\left(\left(\omega_1 + \phi_{\omega_1}\right) - \left(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2}\right)\right)^* \mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega_1 - \phi_{\omega_1}) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(-\omega + \phi_\omega - \phi_{2\omega})^* &= \frac{-2\alpha(e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega + \phi_\omega - \phi_{2\omega})^* \mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega) \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega})} + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned} \tag{74}$$

bzw. ihrer c. c. komplex konjugierten photonischen Felder für den positiven Frequenzbereich:

$$\left. \begin{aligned}
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(2(\omega t + \phi_\omega)) &= \frac{-\alpha (e/m_e)^2 E_1^2}{\mathcal{D}_{21}^\alpha(2(\omega t + \phi_\omega))(\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1}))^2} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(4\omega + 2\phi_{2\omega}) &= \frac{-\alpha (e/m_e)^2 E_2^2}{\mathcal{D}_{41}^\alpha(4\omega + 2\phi_{2\omega})(\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega}))^2} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}\left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})\right) \\
&= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1 E_2}{\mathcal{D}_{11;21}^\alpha\left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) + (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})\right)\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1})\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(3\omega + \phi_\omega + \phi_{2\omega}) &= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1 E_2}{\mathcal{D}_{31}^\alpha(3\omega + \phi_\omega + \phi_{2\omega})\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega + \phi_\omega)\mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega})} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}\left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})\right) \\
&= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_2^* E_1}{\mathcal{D}_{11;21}^\alpha\left((\omega_1 + \phi_{\omega_1}) - (2\omega_2 + \phi_{2\omega_2})\right)\mathcal{D}_{11}^\alpha(\omega_1 + \phi_{\omega_1})\mathcal{D}_{21}^\alpha(-2\omega_2 - \phi_{2\omega_2})} + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathbf{x}_\alpha^{(2)}(-\omega + \phi_\omega - \phi_{2\omega}) \\
&= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_2^* E_1}{\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega + \phi_\omega - \phi_{2\omega})\mathcal{D}_{11}^\alpha(-\omega - \phi_\omega)^* \mathcal{D}_{21}^\alpha(2\omega + \phi_{2\omega})^*} + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned} \right\} \quad (75)$$

wobei für Photo- und Spinströme jetzt die exakte komplexe, nichtlineare Resonanzfunktion gilt:

$$(\mathcal{D}_{mn;\dots,q}^\alpha(\omega_k + \phi_\omega + \phi_{2\omega})) = \begin{cases} \text{linear} & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} (\omega_k + \phi_\omega + \phi_{2\omega}) & \text{für } \alpha=0 \\ & \rightarrow \infty \\ \text{nichtlinear} & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 - \alpha_{mn;\dots,q}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} (\omega_k + \phi_\omega + \phi_{2\omega}) & \text{für } \alpha \neq 0 \\ & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 - \omega_\alpha^{(2)}(\tilde{b}) + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} (\omega_k + \phi_\omega + \phi_{2\omega}) \end{cases} \quad (76)$$

Für hypothetische Photo- und Spinströme, welche durch hohe Harmonische erzeugt werden können, erhält man unter Berücksichtigung der oben formulierten Ergebnisse folgende allgemeine Lösungsstruktur:

$$\left. \begin{aligned}
& \mathbf{x}_\alpha^{(N)} \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) + (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right)^* \\
&= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1^* E_2^*}{\mathcal{D}_{m1;2n1,q}^\alpha \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) + (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right)^* \mathcal{D}_{m1}^\alpha (-m\omega_1 - \phi_{m\omega_1}) \mathcal{D}_{2n1}^\alpha (-(2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}))} + \mathcal{O}(\lambda^{N+1}) \\
& \mathbf{x}_\alpha^{(N)} \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) - (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right)^* \\
&= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1^* E_2}{\mathcal{D}_{m1;2n1,q}^\alpha \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) - (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right)^* \mathcal{D}_{m1}^\alpha (-m\omega_1 - \phi_{m\omega_1}) \mathcal{D}_{2n1}^\alpha (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2})} + \mathcal{O}(\lambda^{N+1}) \\
& \mathbf{x}_\alpha^{(N)} \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) + (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right) \\
&= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_1 E_2}{\mathcal{D}_{m1;2n1,q}^\alpha \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) + (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right) \mathcal{D}_{m1}^\alpha (m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) \mathcal{D}_{2n1}^\alpha (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2})} + \mathcal{O}(\lambda^{N+1}) \\
& \mathbf{x}_\alpha^{(N)} \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) - (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right) \\
&= \frac{-2\alpha (e/m_e)^2 E_2^* E_1}{\mathcal{D}_{m1;2n1,q}^\alpha \left((m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) - (2n\omega_2 + \phi_{2n\omega_2}) \right) \mathcal{D}_{m1}^\alpha (m\omega_1 + \phi_{m\omega_1}) \mathcal{D}_{2n1}^\alpha (-2n\omega_2 - \phi_{2n\omega_2})} + \mathcal{O}(\lambda^{N+1})
\end{aligned} \right\} \quad (77)$$

mit der exakten komplexen, nichtlinearen Resonanzfunktion:

$$\left(\mathcal{D}_{mn;\dots,q}^\alpha (\omega_k + \phi_{m\omega} + \phi_{2n\omega}) \right) = \begin{cases} \text{linear} & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} (\omega_k + \phi_{m\omega} + \phi_{2n\omega}) \text{ für } \alpha=0 \\ & \rightarrow \infty \\ \text{nichtlinear} & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 - \mathbf{x}_{mn;\dots,q}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} (\omega_k + \phi_{m\omega} + \phi_{2n\omega}) \text{ für } \alpha \neq 0 \\ & \{m, n, q^{-1}\} \omega_k^2 - \omega_0^2 - \boldsymbol{\omega}_\alpha^{(N)}(\tilde{b}) + 2i\gamma \{m, n, q^{-1}\} (\omega_k + \phi_{m\omega} + \phi_{2n\omega}) \end{cases} \quad (78)$$

Zur explizit genaueren Beschreibung der Erzeugung und Dynamik der Photo- und Spinströme aufgrund der Zweifarbenanregung müssen höhere Näherungen berücksichtigt werden. Für Näherungen mit einer Genauigkeit bis einschließlich zur 7. nichtlinearen Ordnung kleiner Größen λ^7 können folgende Frequenzkorrekturen angegeben werden:

$$\begin{aligned}
\bar{x} = & -\lambda \frac{\alpha \tilde{b}^2}{2\omega_0^2} - \lambda^3 \frac{19\tilde{b}^4 \alpha^3}{72\omega_0^6} - \lambda^5 \frac{10617\tilde{b}^6 \alpha^5}{41472\omega_0^{10}} + \left(\lambda^2 \frac{\alpha^2 \tilde{b}^3}{6\omega_0^2} - \lambda^2 \frac{3\tilde{b}^4 \beta}{4} + \lambda^4 \frac{\tilde{b}^5 \alpha^4 55}{96\omega_0^6} + \lambda^6 \frac{49\tilde{b}^7 \alpha^6}{20736(\omega_0^{12} - \omega^2 \omega_0^{10})} \right) \cos(\omega t) \\
& + \left(\lambda \frac{\alpha \tilde{b}^2}{8\omega^2 - 2\omega_0^2} + \lambda^3 \frac{7\tilde{b}^4 \alpha^3}{48(\omega_0^6 - 4\omega^2 \omega_0^4)} + \lambda^5 \frac{491\tilde{b}^6 \alpha^5}{10368(\omega_0^{10} - 4\omega^2 \omega_0^8)} + \lambda^7 \frac{265916\tilde{b}^8 \alpha^7}{5971968(\omega_0^{12} - 4\omega^2 \omega_0^{10})} \right) \cos(2\omega t) \\
& + \left(\lambda^2 \frac{\tilde{b}^3 \alpha^2}{54\omega^2 \omega_0^2 - 6\omega_0^4} + \lambda^3 \frac{\tilde{b}^3 \beta}{32\omega_0^2} + \lambda^4 \frac{29\tilde{b}^5 \alpha^4}{432(\omega_0^8 - 9\omega^2 \omega_0^6)} + \lambda^6 \frac{319\tilde{b}^7 \alpha^6}{124416(\omega_0^{12} - 9\omega^2 \omega_0^{10})} \right) \cos(3\omega t) \\
& + \left(-\lambda^3 \frac{5\tilde{b}^4 \alpha^3}{144(\omega_0^6 - 16\omega^2 \omega_0^4)} + \lambda^5 \frac{385\tilde{b}^6 \alpha^5}{20736(\omega_0^{10} - 16\omega^2 \omega_0^8)} + \lambda^7 \frac{11110\tilde{b}^8 \alpha^7}{5971968(\omega_0^{14} - 16\omega^2 \omega_0^{12})} \right) \cos(4\omega t)
\end{aligned} \tag{79}$$

Damit können die Singularitätskurven mit sehr hoher Genauigkeit berücksichtigt werden. Es zeigt sich eine verbesserte Kurvenform, welche die Skewness noch besser fittet. Die nachfolgende Abbildung zeigt die generierte Amplitude der kohärent erzeugten Photo- und Spinströme analytisch und numerisch. Der Response bei der 2. Harmonischen ($\omega_0/2$, erzeugt durch die zweite kohärente Quelle mit $2\omega_0 + \text{Phasenverschiebung}$ und die Skewness bei beiden Peaks sind rein nichtlineare Effekte.

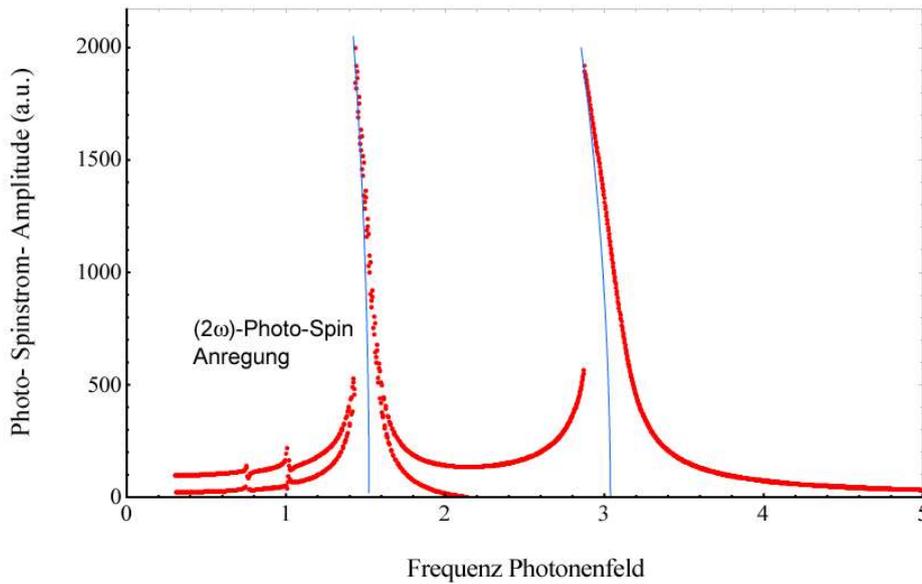


Abbildung 1 zeigt den charakteristischen Verlauf der nichtlinearen Amplitude der kohärent erzeugten Photo- und Spinströme als Singularitätslösung (blau) in der Näherung kleiner Größen 7. nichtlinearer Ordnung und die dissipative Numerische Lösung (rot). Die neue Modellbildung wird dadurch hervorragend bestätigt.

Verglichen mit dem stromfreien Response weisen die nichtlinearen Anregungspeaks niederfrequente und höherfrequente Bereiche auf. Das deutet auf Aufspaltung des Frequenzbereiches hin. Verglichen mit Versuchsergebnissen aus der Literatur [] können damit die symmetrischen (harmonischen) im Frequenzbereich leicht verschobenen Mehrfachpeaks mit diesen nichtlinearen Effekten erklärt werden.

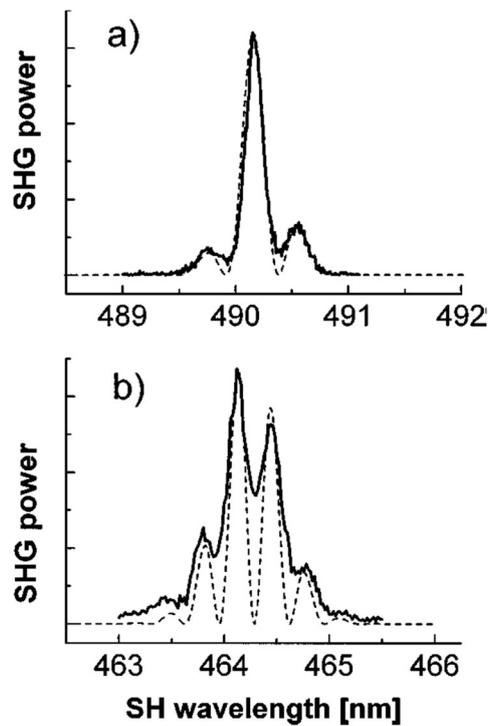


Abbildung 2 zeigt den charakteristischen Verlauf der 2. Harmonischen an ZnS. Es sind deutlich weitere Frequenzkomponenten zu erkennen, welche mit den nichtlinearen Effekten in dieser Arbeit erklärt werden können. aus [H. P. Wagner and M. Kühnelt, W. Langbein and J. M. Hvam, *Dispersion of the second-order nonlinear susceptibility in ZnTe, ZnSe, and ZnS*, PHYSICAL REVIEW B, VOLUME 58, NUMBER 16]

Das Anregungsmaximum liegt bei diesen "solvatisierten" Elektronen, d. h. nichtzentrosymmetrisch gebundenen (Oberflächen)elektronen im niederfrequenten Bereich, was auf Systemstabilisierung durch Energieabsenkung zurückzuführen ist. Diese entsprechen den angeregten Photo- und Spinstrom an Oberflächen, welche von "solvatisierten" Elektronen herrühren.

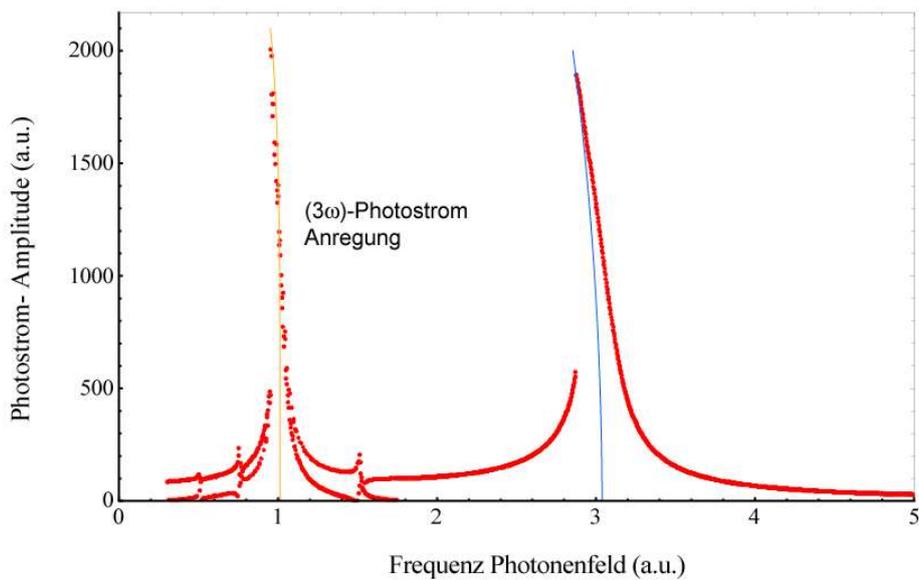
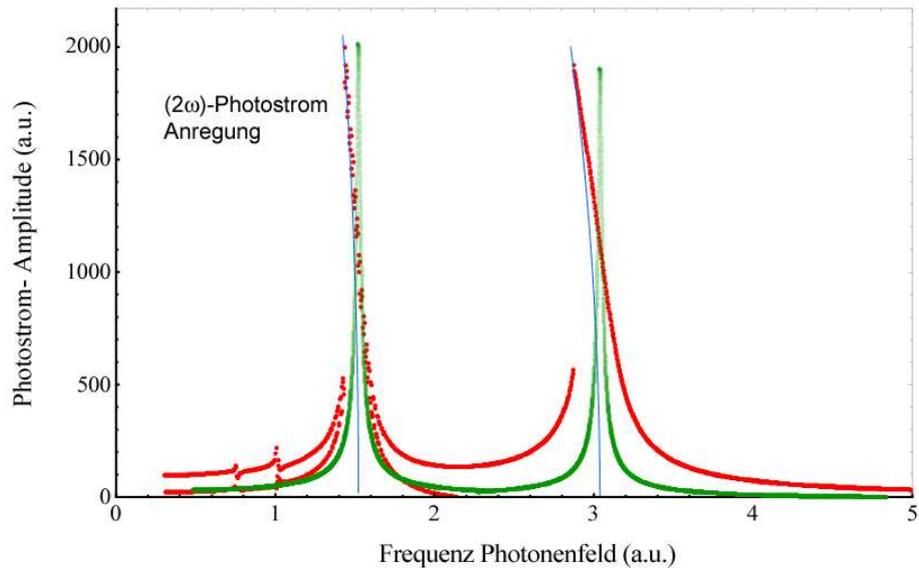


Abbildung 3 zeigt den oben charakteristischen Verlauf der nichtlinearen Amplitude der kohärent erzeugten Photostrom im Vergleich zum angeregten linearen Photolumineszenz Response (grün) und die nichtlinearen Responses der kohärent erzeugten bichromatischen Anregung mit ω und 3ω in der Näherung kleiner Größen 7. nichtlinearer Ordnung. Es zeigen sich zudem in der Umgebung der höheren Anregung zusätzliche kleine Amplituden, welche aufgrund höherer Dipolschwingungen zustande kommen und höhere Harmonischen aus den kohärenten Anregungsfrequenzen erzeugen.

Zwei zueinander parallele kohärente Photonenquellen generieren Photoströme. In Abhängigkeit von der Phasenbeziehung und dem Amplitudenverhältnis der beiden Wellen ergeben sich für Phasenverschiebungen gemäß $(2\varphi_\omega - \varphi_{2\omega}) = 0, \pi, 2\pi, \dots, n\pi \quad n \in \mathbb{N}$ Photoströme, wobei für Phasenverschiebungen mit $(2\varphi_\omega - \varphi_{2\omega}) = 0, 2\pi, 4\pi, \dots, 2n\pi \quad n \in \mathbb{N}$ maximale Ladungsströme generiert werden. Für betragsmäßig gleiche optische Feldamplituden, ist die Ausgangspolarisation elliptisch polarisiert. Für betragsmäßig unterschiedliche Feldamplituden ergibt sich eine lineare Ausgangspolarisation deren Richtung vom Amplitudenverhältnis abhängig ist. Diese maximalen Ladungsströme entsprechen einer harmonischen Anregung, welche zu keiner Spinstromanregung führt. Das ist der Anregungspunkt, der mit der Position der angeregten Photolumineszenz ohne Spinströme zusammenfällt. Für diesen Punkt ergibt sich keine Skewness. Für gekreuzte Lichtfeldpolarisation mit einer Phasenverschiebung von $(2\varphi_\omega - \varphi_{2\omega}) = (\pi/2), (5\pi/2), (9\pi/2), \dots, (\pi/2) + 2n\pi \quad n \in \mathbb{N}$, welche in der Optik der Subharmonischen und Ultrasubharmonischen entsprechen, ergeben sich maximale Spinströme mit elliptischer Polarisation. Elektronen mit Spin "down" werden aus dem zentralen spinstromfreien Lumineszenzpunkt heraus nach rechts und Elektronen mit Spin "up" nach links verschoben. Das bedeutet, dass die Position der zentralen Photolumineszenzpunktbewegung für Spin "up" nach links sich wie aufgrund der sich einstellenden negativen Skewness verhalten und für Spin "down" entsprechend einer positiven Skewness nach rechts wandern. Für dazwischenliegende Phasendifferenzen von $(-\pi/2) + 2n\pi$ mit n als Integer, $(2\varphi_\omega - \varphi_{2\omega}) = (-\pi/2), (3\pi/2), (7\pi/2), \dots, (-\pi/2) + 2n\pi \quad n \in \mathbb{N}$, zeigt sich eine Umorientierung der Spinströme durch den Fluss von Elektronen mit Spin "up" nach rechts und Spin "down" nach links, ganz analog dem Vorzeichenwechsel der Skewness von links nach rechts und umgekehrt. Dieser Sachverhalt ist in Abb. (4) gezeigt, welcher für tieferliegende Bloch Elektronen der Bulkbindungen (mit erhöhter Löcherkonzentration) gezeigt ist.

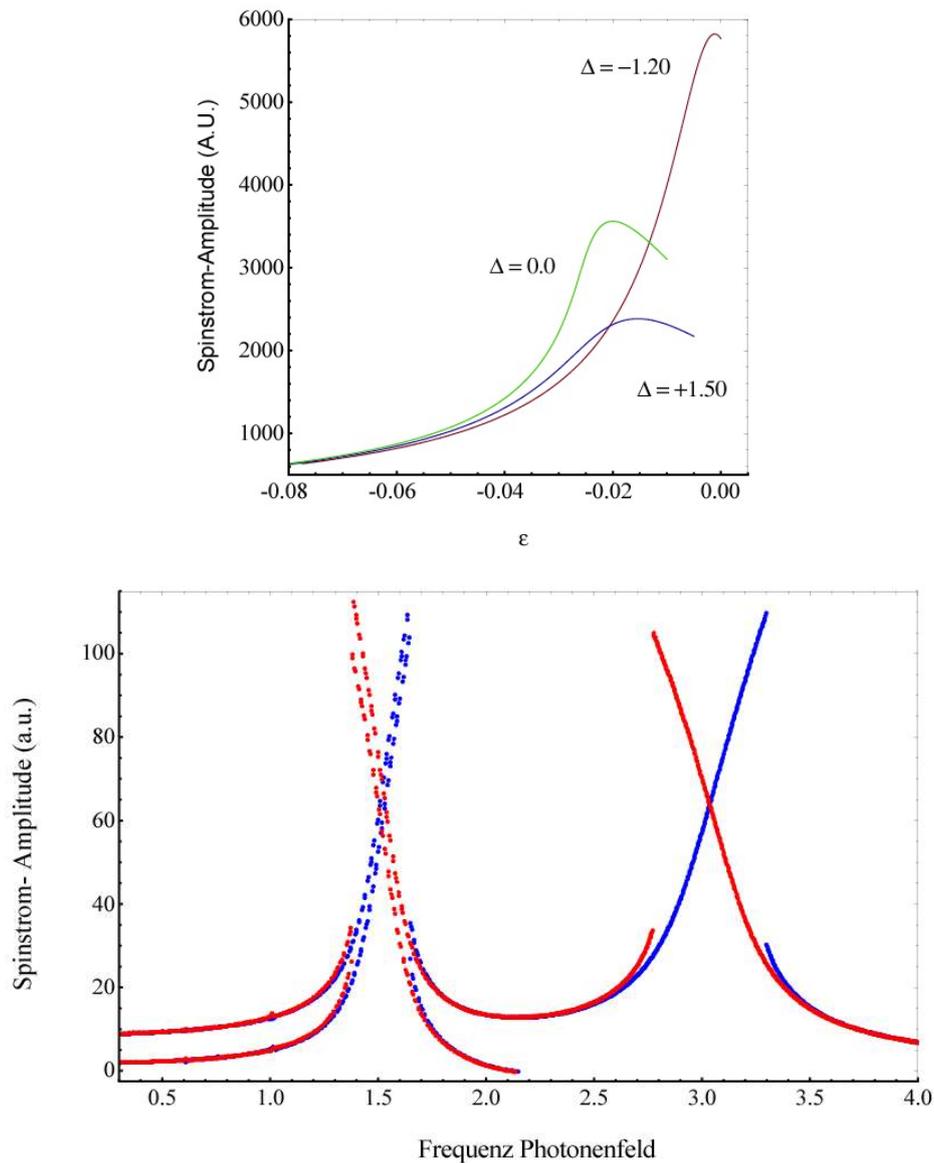


Abbildung 4 zeigt unter Berücksichtigung kohärent erzeugter Spinströme an Oberflächen (oben) und in den tieferliegenden Bulkbindungen (unten) den sich ergebenden Skewnesswechsel durch Phasenverschiebung im nichtlinearen Medium, welcher eine Umpolung der Spinströme hervorruft.

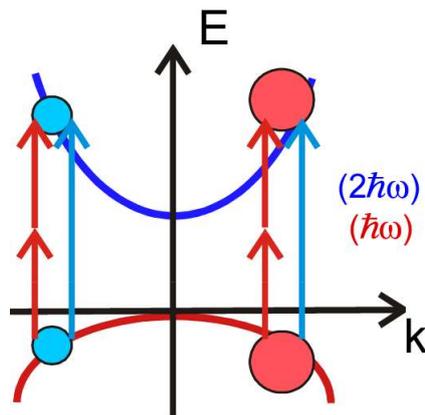


Abbildung 5 zeigt die schematische asymmetrische Anregung für ein Zwei-Band-System. Die Stärke sowie Richtung der Asymmetrie lassen sich über die Phasenbeziehungen zueinander kohärent kontrollieren.

Aufgrund der Anregung des Systems mit zwei kohärenten Quellen mit den Zentralfrequenzen ω und 2ω werden durch Interferenzphänomene asymmetrische Verteilungen im k -Raum erzeugt. Es kann jetzt angenommen werden, dass durch nichtlineare Skewnesseffekte diese Asymmetrie verursacht wird. Der zu berücksichtigende Asymmetriegrad sowie deren Orientierung lassen sich über die Phasenverschiebung der kohärenten Laserpulse kontrollieren. Der Skewnessbeitrag entspricht dabei dem Energieunterschied wie er beim Übergang vom Gas über die Flüssigkeit zum und Festkörper auftritt. Die Skewnessdifferenz entspricht dabei der aufzubringenden notwendigen Energie zur Umordnung zum Feststoff und zeigt dass hierfür Energiezufuhr durch Dotierung notwendig ist. Im nichtlinearen Regime befindet es sich im höher energetischen Zustand. Betrachtet man die Zustände in solchen Bändern, so ergeben sich im nichtlinearen Regime im Vergleich zu linearen Systemen signifikante Unterschiede wie in Abb. 6 anschaulich dargestellt.

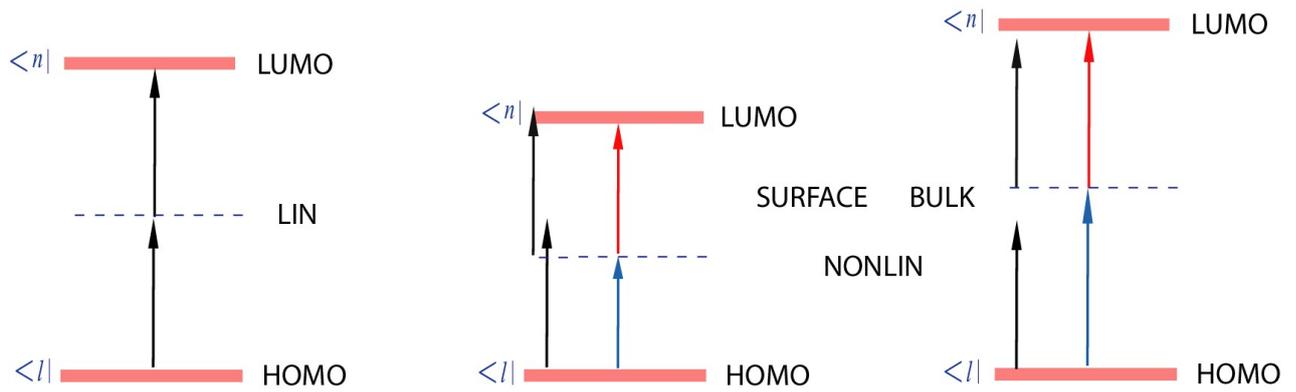


Abbildung 6 zeigt die HOMO und LUMO Grenzzustände / Grenzorbitale für lineare (links) und nichtlineare Systeme (Mitte und rechts). In nichtlinearen Systemen ist jeweils abhängig von der Materiesymmetrie eine im Vergleich zum linearen System niedrigerer HOMO Zustand für nichtzentrosymmetrische und zentrosymmetrische Materie und höherer HOMO-Zustand für Bulkmaterialien erhöhter Löcherkonzentration zu erwarten.

Dieser Energieaspekt wurde bereits gemessen und ist in der Literatur dargestellt.

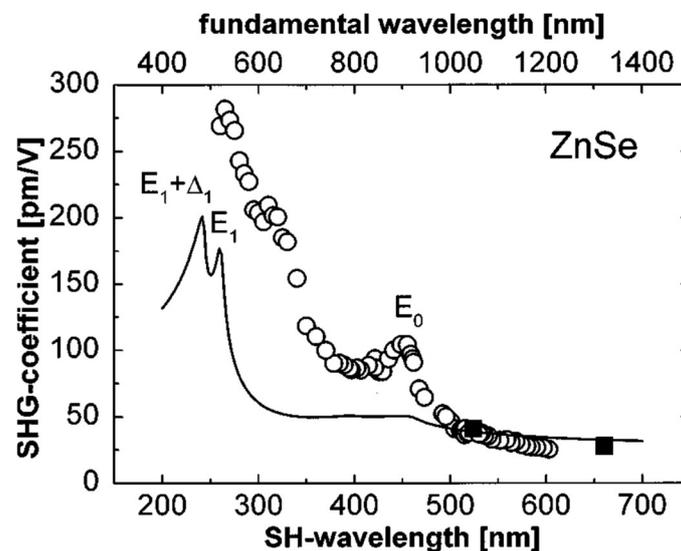


Abbildung 7 zeigt die experimentell gemessene SHG- Dispersionskurve in ZnSe (Kreise) und die berechnete Dispersionskurve. Es zeigt sich eine Energieverschiebung in den höherfrequenten Bereich, aus [H. P. Wagner, M. Kühnelt, W. Langbein, J. M. Hvam, Dispersion of the second-order nonlinear susceptibility in ZnTe, ZnSe, and ZnS, PHYSICAL REVIEW B, VOLUME 58, NUMBER 16]

5. Photonische Kristalle: Aufgrund von Interferenzphänomenen und Anregung durch Wellenmischen müssen nichtlineare Effekte berücksichtigt werden. Für photonische Kristalle sind nachfolgende Messergebnisse in der Literatur bereits dargestellt, welche durch die in dieser Arbeit dargelegten nichtlinearen Effekte zu erklären sind.

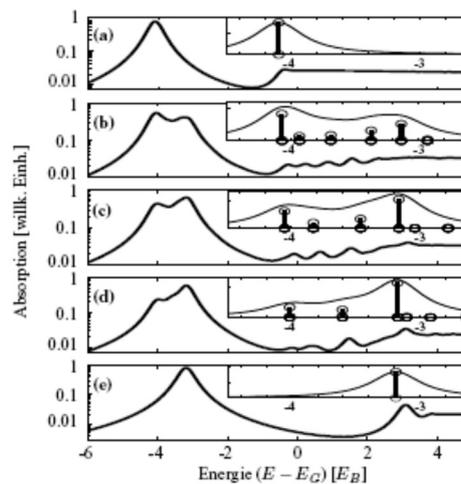


Abb. aus: [Dissertation Bernhard Pasenow, *Optische Erzeugung außergewöhnlicher Ladungsträgerverteilungen in Halbleiterstrukturen*]

Abbildung 8 gemessene Spektralkurven in photonischen Kristallen mit exzitonischen Resonanzen. Darin ist deutlich die Zerlegung der Resonanz in gebundene exzitonische Zustände und der exzitonischen Oszillatorstärke zu erkennen. Für große Breiten ($W = 180\text{nm}$) und für verschwindende Breiten $W=0$ der photonischen Kristallstruktur ist ein eindeutige Resonanz zu beobachten. Für in den Grenzbereichen dazwischenliegende Breiten ergeben sich energetisch verschobene Doppelpeaks, was eine Verschiebung der Kontinuums-kante zu höheren Energien sowie eine verstärkte exzitonische Bindungsenergie hindeutet. Diese kommen durch Materiewechselwirkungen zustande, welche nichtlineare Effekte tragen.

Die Unterdrückung der Hystereseeffekte in photonischen Kristallen, wie auch in allen anderen Mikro- und Nanoskaligen Bauteilen, wird von großer Wichtigkeit werden, um Störungen zu vermeiden welche durch abrupte Änderung in der Dynamik ihre Ursache haben und um z. B.

in photonischen Kristallen einen glatten Übergang zwischen stabilen Responses in den dielektrischen Schichten sicherzustellen.

6. Chemisches Potential: Mit den Eigenenergien und Eigenfunktionen ergeben sich fermi-Dirac- artige Gleichgewichtskohärenzen für Elektronen und Löcher gemäß:

$$f_{12}^{e,qe} = L^{-\delta} \sum_{\lambda,k} \Phi_{\lambda,k}^e(\mathbf{r}_1)^* \Phi_{\lambda,k}^e(\mathbf{r}_2) \frac{1}{\exp[\beta(E_{\lambda,k}^e - \mu_e + \delta\mu_e)] + 1} \quad (80)$$

$$f_{12}^{h,qe} = L^{-\delta} \sum_{\lambda,k} \Phi_{\lambda,k}^h(\mathbf{r}_1)^* \Phi_{\lambda,k}^h(\mathbf{r}_2) \frac{1}{\exp[\beta(E_{\lambda,k}^h - \mu_h + \delta\mu_h)] + 1}$$

Dies entspricht der nichtlinearen Elektron- und Holon- Photonen Wechselwirkung an Quantenpunkten (0 Dim. Wechselwirkung). Abb xx.yy zeigt die Nichtlinearen Singularitäten bis zu kleinen Größen 7. Ordnung. Dabei entsprechen die Singularitätskurven negativer Skewness der Photonenwechselwirkung mit solvatisierten Elektronen und Oberflächenbindungselektronen. Für die photonengetriebenen Wechselwirkung mit den tieferliegenden Bulkbindungen ergibt sich eine Singularitätsskewnesskurve mit vollständigem Vorzeichenwechsel nur für Bulkmaterialien mit erhöhter Löcherkonzentration erzeugbar durch Dotierung mit Elementen der 3. Hauptgruppe (positive Dotierung). Daran ist sehr anschaulich erkennbar, wie mit den geänderten Eigenfunktionen und Eigenenergien durch Änderung des chemischen Potentials vom "Fermi"- Gas bzw. "Fermi"- Flüssigkeit durch einen nichtkontinuierlichen Phasenübergang 2. Ordnung das entropiereiche System in ein entropieärmeres Festkörpersystem übergeht. Diese nichtlineare chemische Potentialänderung wird aufgrund des Skewnesswechsels erst ermöglicht.

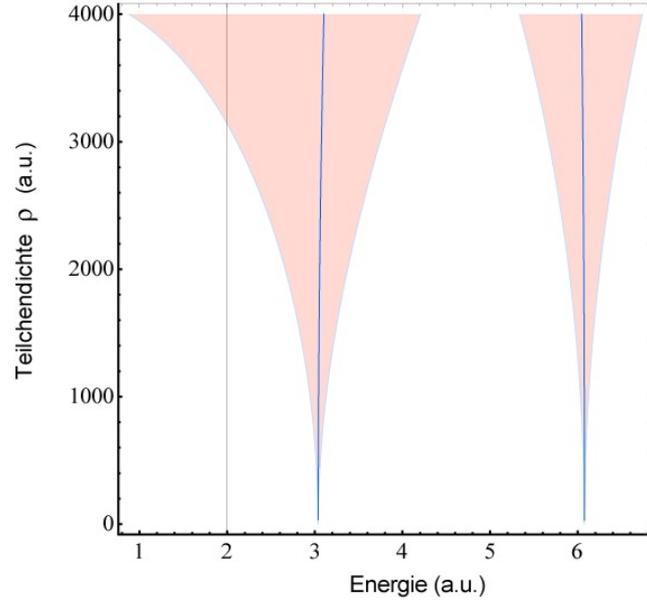


Abbildung 9 zeigt die Singularitäten der Quantenpunkte nach Multiphotonenwechselwirkung in Abhängigkeit der Materiesymmetrie. Mit zunehmender Energie werden die stabilen Singularitätsbereiche sehr schnell schmal. Dies ist ein Indiz dafür, dass Phasenübergänge mit zunehmender Ordnung immer schwerer zu realisieren sind.

Für die nichtlineare Dichteverteilung an einem einzelnen Quantenpunkt kann angeschrieben werden:

$$\rho^{nl}(E) \propto \delta(E - \varepsilon_{n\sigma}(k) + \delta\varepsilon) \quad (81)$$

mit E als quantisierte Energieniveaus, die aus den zusätzlichen Quantisierungen in den Raumrichtungen resultieren und $\varepsilon_{n\sigma}(k) + \delta\varepsilon$ als nichtlineare Energieverteilung nach Quantenpunkt- Multiphotonenwechselwirkung. Ein Quantenpunkt kann damit als Deltafunktion formuliert werden welche nach nichtlinearer Wechselwirkung mit Strahlung mit negativer Skewness behaftet ist, d.h. es gibt diskrete Energieniveaus welche nun nichtlinear entsprechend der singulären Skewnesskurven verbogen sind. Einstrahlung höherer Harmonischer ergibt Deltafunktionen an den natürlichen Resonanzpunkten der Quantenpunkte. Das sind die geraden Ordnungen. Auftragen der Elektronendichte als Funktion der Energie ergeben nichtlineare Singularitätskurven. Für Oberflächenpartikel erfolgt Energieabsenkung, für tieferliegende Bulkteilchen erfolgt zunächst auch in etwas abgeschwächerer Ausprägung Sys-

temstabilisierung durch Energieabsenkung. Unter Einbau von Ladungsunterschüssen (entsprechende Fremdatome, Verunreinigungen) wird unter nichtlinearen Skewnesswechsel ein Übergang in einen energetisch höheren Zustand begünstigt, welche dem Umbau in einem Festkörpervolumen entspricht.

7. *Ab initio* Nichtgleichgewichtsphänomene; Das nichtlineare Phasenübergangs- Modell:

Bezogen auf die Vielteilchen- Quantentheorie ist es sinnvoll, Phasenübergänge im Nichtgleichgewicht detaillierter zu betrachten, d. h. als nichtlineare Übergänge. Dieses Problem lässt sich mit den entwickelten Methoden lösen. Damit ist es möglich den Leiter- Nichtleiter-Übergang (Mott- Übergang) in Abhängigkeit der Kontrollparameter (z. B. Druck) genauer zu beschreiben. Dem nichtlinearem Phasenübergang 1. Ordnung wird hier gemäß Landau Theorie eine quartäre (freie) Energie zugrunde gelegt

$$f(m, h = 0, \theta) = f_0 + \frac{1}{2}am^2 + \frac{1}{4}bm^4 \quad (82)$$

mit m als (lokale) Magnetisierung und θ als Temperatur(phase) und h als magnetisches Feld und für den Fall nichtlinearer Phasenübergänge 2. Ordnung gemäß Landau Theorie die freie Energie sechster Ordnung, gemäß

$$f(m, h = 0, \theta) = f_0 + \frac{1}{2}am^2 + \frac{1}{4}bm^4 + \frac{1}{6}cm^6 \quad (83)$$

Es ergibt sich nach der entwickelten nichtlinearen Theorie für die quartäre und nur für die sextäre Landau Energie Hystereseverhalten mit Skew. Der Teilchenresponse ist in der Mean field Theorie exakter als die Korrelationsfunktion und wiedergibt die reale Physik. Es kann Hysterese gezeigt werden und beim kritischen Punkt die Aufspaltung in Nichtleiterbereiche und Leiterbereiche gemäß der Nichtlinearitäten. Bereiche korrelierter und unkorrelierter Elektronen entwickeln sich in Abhängigkeit der Temperatur entlang der Singularitäten. Unter dem Aspekt des Fermionen- Drucks, die besagt, dass der Energieinhalt der Phase mit der Teilchenzahldichte nichtlinear ansteigt, muss die kinetische Beschreibung der Phasen der nichtlinearen Energiezunahme im Vielteilchensystem als Korrektur berücksichtigt werden. Hierzu ist es notwendig die Differentialgleichungssysteme N - ter Ordnung entsprechend zu modifizieren, u. a. mit einem zusätzlichen Term zur Beschreibung der Fluktuationen in der

Besetzung der Gitterplätze, entweder als statisches (MFT) oder dynamisches Feld (DMFT) gemäß:

$$(DGL(z))^N \rightarrow (DGL^{NL}(Az^n, Bz^{n+1}, f_0, \eta(t)))^N \quad (84)$$

und

$$M\ddot{X} + 2\gamma M\dot{X} + M\omega_0^2 \tilde{X} + \lambda A\tilde{X}^2 \mp \lambda B\tilde{X}^3 = \lambda f_0 + \eta(t) \quad (85)$$

mit f_0 als konstante Kraft und $\eta(t)$ als Kraft als stochastische Wahrscheinlichkeitsverteilung. Für die nichtlineare Betrachtung wird das Verhalten eines Partikels in ein anharmonischen Potentialtopf untersucht. Laplace- Transformation liefert mit:

$$x(\nu) = \int_0^\infty dt e^{-\nu t} \eta(\nu), \quad \tilde{x}(t) = \int_0^\infty \frac{d\nu}{2\pi i} e^{\nu t} x(\nu) \quad (86)$$

Aus der nichtlinearen Differentialgleichung N- ter Ordnung kann das Partikelverhalten mittels der Hochenergieentwicklung Greenscher Funktionen beschrieben werden. Insgesamt ergibt sich für die Greensche- Funktion des Elektronenpartikels im Festkörper in der Fourier- Domäne:

$$\hat{G}(\omega) = \frac{1}{\hat{\mathcal{L}}(\omega)} = \frac{i^n}{(\omega - \omega_1)(\omega - \omega_2 + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(2)}) \cdots (\omega - \omega_n + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)})} \quad (87)$$

mit

$$\hat{\mathcal{L}}(\omega) = i^n (\omega - \omega_1)(\omega - \omega_2 + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(2)}) \cdots (\omega - \omega_n + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)}) \quad (88)$$

$$\hat{\mathcal{L}}(\omega) = i^n (\omega^2 - \omega_0^2 - i2\gamma\omega_1)(\omega_2^2 - \omega_0^2 - i2\gamma\omega_2 + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(2)}) \cdots (\omega_n^2 - \omega_0^2 - i2\gamma\omega_n + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)}) \quad (89)$$

und $\omega_{\alpha\beta}^{(n)}$ nichtlineare Korrekturen gemäß der entwickelten nichtlinearen Theorie in Abhängigkeit ihrer Symmetrie und Ladungsstruktur, Elektron und Holon. Die allgemeine Lösung der inhomogenen nichtlinearen Differentialgleichung setzt sich zusammen aus

$$\tilde{x}(t) = x_{\text{hom}}(t) + \int_{-\infty}^{\infty} dt' \hat{G}(t-t') \xi(t') \quad (90)$$

und liefert für die nichtlineare Green- Funktion:

$$\begin{aligned} \hat{G}(t-t') &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega(t-t')} \hat{G}(\omega) \\ &= i^n \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \frac{e^{-i\omega(t-t')}}{(\omega - \omega_1)(\omega - \omega_2 + \varpi_{\alpha\beta}^{(2)}) \cdots (\omega - \omega_n + \varpi_{\alpha\beta}^{(n)})} \\ &= \frac{e^{-i\omega_\sigma(t-t')}}{i\mathcal{L}'(\omega_\sigma)} \Theta(t-t') \end{aligned} \quad (91)$$

mit

$$\varpi_n^{\alpha\beta\pm} = \xi_n \omega_0 + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)} \quad (92)$$

und ξ_n für die zu betrachtende Resonanz. Da die Green- Funktion hier nur von der Zeitdifferenz $(t-t')$ abhängt, kann folgende modifizierte Formel für das nichtlineare Regime angegeben werden.

$$\Delta A_i^{nl} = \frac{1}{2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dE F(E) \hat{G}_{AB}^{ret}(E + \delta\varepsilon_{e,h} + i0^+) \exp\left[-\frac{i}{\hbar}(E + \delta\varepsilon_{e,h} + i0^+)t\right] \quad (93)$$

mit $E + \delta\varepsilon_{e,h}$ als nichtlineare Energievariation in Abhängigkeit ihrer jeweiligen Symmetrie und Ladungsstruktur.

Betrachtet man hierzu zudem das chemische Potential kann eine Reaktion, Umwandlung oder Umverteilung freiwillig nur stattfinden, wenn das chemische Potential im Ausgangszustand größer ist als im Endzustand, d. h. nur für positiven Skew ist eine Phasenübergang möglich

(Bulk, d. h. zum Festkörper). Bei einem Phasenübergang 1. Ordnung Fermi- Gas zur Fermi- Flüssigkeit gemäß der zugrundeliegenden Skewness ist nur eine leichte Anhebung des chemischen Potentials nötig. Beim Phasenübergang zweiter Ordnung, d. h. von der "Fermi- Flüssigkeit" zum Festkörper erfolgt ein vollständiger Vorzeichenwechsel. Dieser Phasenübergang erfolgt im Gegensatz zum Übergang 1. Ordnung nicht kontinuierlich. Dies erklärt den großen Skewnessunterschied von der "Fermi- Flüssigkeit" zum Festkörper als Phasenübergang zweiter Ordnung. Damit kann der Übergang zwischen Phasen unterschiedlicher Symmetrie (z. B. Kristall \leftrightarrow Flüssigkeit) und verschiedener kristalliner Modifikationen (nicht kontinuierlicher Übergang) beschrieben werden. Kontinuierlicher Übergang, z. B. Gas \leftrightarrow Flüssigkeit (lineare Response- Theorie). Je höher dabei die zu berücksichtigende Teilchenzahl ist, desto mehr muss in Bandmodellen formuliert werden. Es erfolgt eine Aufspaltung gemäß ihrer Symmetrie (N.Z.S. und Z.S.) nach oben (Bulk) und unten (Oberfläche). Das gesamte Band wird aufgebaut aus dem jeweiligen zugrundegelegten nichtlinearen Potential.

8. Literatur:

- [SYR84] Shen, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics*; Wiley: New York, 1984.
- [BRW03] Boyd, R. W. *Nonlinear Optics*, 2nd ed.; Elsevier: Amsterdam, The Netherlands, 2003.
- [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).
- [LL07- I] Landau, L. D., E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik*, Bd.I: Mechanik, 14., korrigierte Auflage, Akademie-Verlag, Berlin, (2007).
- [LL09- II] Landau, L. D., E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik*,

Bd.II: Klassische Feldtheorie, 12. Auflage, Akademie-Verlag, Berlin, (2009).

[LL07- III] Landau, L. D., E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik*, Bd.III: Quantenmechanik, 9. Auflage, Akademie-Verlag, Berlin, (2007).

[BM65] Bogoljubow, N. N. and J. A. Mitropolski, *Asymptotische Methoden in der Theorie der nichtlinearen Schwingungen*, Akademie-Verlag, Berlin (1965).

[Hayashi 64] Hayashi, C., *Nonlinear Oscillations in Physical Systems*, Princeton University Press, Princeton, NJ (1964).

[KHK02] Khalil, Hassan K., *Nonlinear Systems*, 3rd International edition, Pearson Education (2002).