

Nonlinear Macroscopic Optical Response Tensors for 2-Color Excitation and Electron-Multiphoton Interaction

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 26, 2012 (HP)

Abstract

An interesting aspect of this thesis should be mentioned right at the beginning. It was shown that the higher harmonics generated by non-centrosymmetric bonded electrons can take on properties of negative index systems. By controlling the nonlinearity, tailor-made optical metamaterials with a defined negative refractive index are possible. This becomes interesting in the context of the fact that matter waves with a refractive index of exactly minus one form the perfect microscope.

A suitable set of new characteristic optical response tensors, which are no longer Lorentzartig in view of the newly gained knowledge, were derived for non-centrosymmetric media and their importance for the various nonlinear orbital response functions was shown and discussed. The nonlinear resonant denominator function can α be rewritten depending on the strength of the nonlinearity, where noncentrosymmetric matter scales in the nonlinear mode with negative SKEWNESS and centrosymmetric matter, as well as the transition bulk / surface with positive SKEWNESS, and the harmonics can be classified depending on the introduced parameters p and q . The nonlinearity in the denominator function takes into account the occurring skewness and the destabilization of increasing nonlinear amplitudes, in contrast to the current literature (e.g. Boyd), in which α occurs only as a proportionality factor, in which the amplitude is linearly and directly influenced and no destabilization of the amplitudes in the nonlinear regime is described.

Due to the symmetry of non-centrosymmetric matter, no longitudinal modes are capable of propagation. The nonlinear dielectric spectral response function has singularities for non-dissipative matter at any transition frequency. The analysis taking into account dissipative effects showed an elimination of these singularities. You get curves with negative skewness. In the identified regions of negative dielectric function, a real refractive index of less than 1 exists. The refractive index is imaginary there, which is usually characteristic of surface plasmons. In this area, it is in principle possible to produce optical metamaterials by setting suitable nonlinearity. In the linear case, the spectral function has a zero position, so that

longitudinal modes can also propagate for this. Variation of nonlinearity causes a very large positive or negative skew depending on the sign and shows frequency conversion. The nonlinear electrical susceptibility to surface particles is favored by shifting to the lower frequency range. For ordinary bulk, it is also somewhat weaker, in contrast to positively doped bulk, which is higher frequency to resonate, better to polarize and excite. Thus, the nonlinear electrical susceptibility is frequency-dependent, depending on the material symmetry. Thus, surfaces in the material bulk that is slightly below the excitation frequency appear optically denser and real material bulk above their excitation frequency appear denser. Disturbing skew effects in components, for example, can be eliminated by materials with varying refractive indices.

The nonlinear refractive index can be specified in the form $n = n_0^{res} + \bar{n}_2^{skew} \langle \tilde{E}^2 \rangle + \dots$.

Thus, the refractive index varies according to the singularities or with increasing uncertainty (width of the curve, increased range of variation of the refractive index) in a dissipative environment. The index can be controlled with the intensity.

Zusammenfassung

Ein sich ergebender interessanter Aspekt in dieser Arbeit sei gleich zu Beginn erwähnt. Es zeigte sich, dass die von nichtzentrosymmetrisch gebundenen Elektronen erzeugten höheren Harmonischen, Eigenschaften von Negativ- Index- Systemen annehmen können. Durch Kontrolle der Nichtlinearität sind demnach maßgeschneiderte optische Metamaterialien mit definierten negativen Brechungsindex möglich. Dies wird interessant im Zusammenhang, dass Materiewellen mit einem Brechungsindex von exakt minus Eins das perfekte Mikroskop bilden.

Ein geeigneter Satz von neuen charakteristischen optischen Resonatoren, welche unter Berücksichtigung der neu hinzugewonnenen Erkenntnisse nicht mehr lorentzartig sind, wurden für nichtzentrosymmetrische Medien hergeleitet und dessen Wichtigkeit für die verschiedenen nichtlinearen orbitalen Responsefunktionen gezeigt und diskutiert. Die nichtlineare resonante Nennerfunktion kann in Abhängigkeit der Stärke der Nichtlinearität α neu geschrieben werden, wobei nichtzentrosymmetrische Materie im nichtlinearen Regime mit negativer SKEWNESS und zentrosymmetrische Materie, sowie der Übergang Bulk / Oberfläche mit positiver SKEWNESS skaliert und sich die Harmonischen in Abhängigkeit der eingeführten Parameter p und q klassifizieren lassen. Die Nichtlinearität in der Nennerfunktion berücksichtigt die auftretende Skewness und die Destabilisierung zunehmender nichtlinearer Amplituden, ganz im Gegensatz zur aktuellen Literatur (z. B. Boyd), in der α lediglich als Proportionalitätsfaktor auftritt, in der die Amplitude linear und direkt beeinflusst wird und keine Destabilisierung der Amplituden im nichtlinearen Regime beschrieben wird.

Aufgrund der Symmetrie nichtzentrosymmetrischer Materie sind keine longitudinalen Moden propagationsfähig. Die nichtlineare dielektrische spektrale Antwortfunktion besitzt für nicht-dissipative Materie Singularitäten bei jeder Übergangsfrequenz. Die Analyse unter Berücksichtigung dissipativer Effekte zeigte eine Beseitigung dieser Singularitäten. Man erhält Kurven mit negativer Skewness. In den identifizierten Bereichen negativer dielektrischer Funktion existiert ein reeller Brechungsindex kleiner 1. Der Brechungsindex ist dort imaginär, was normalerweise charakteristisch für Oberflächenplasmonen ist. In diesem

Bereich ist es prinzipiell möglich durch Einstellen geeigneter Nichtlinearität optische Metamaterialien zu erzeugen. Im linearen Fall besitzt die Spektralfunktion eine Nullstelle, sodass hierfür auch longitudinale Moden propagieren können. Variation der Nichtlinearität bewirkt abhängig vom Vorzeichen einen sehr großen positiven bzw. negativen Skew und zeigt Frequenzkonversion. Die nichtlineare elektrische Suszeptibilität für Oberflächenpartikel ist durch Verschiebung in den niederfrequenteren Bereich begünstigt. Für gewöhnlichen Bulk etwas schwächer ausgeprägt ebenfalls, ganz im Gegensatz zu positiv dotierten Bulk, der höherfrequenter zur Resonanz, besser zu polarisieren und anzuregen ist. Somit ist die nichtlineare elektrische Suszeptibilität, abhängig von der Materialsymmetrie frequenzabhängig. Somit wirken Oberflächen leicht unterhalb der Anregungsfrequenz optisch dichter und realer Materialbulk oberhalb ihrer Anregungsfrequenz dichter. Störende Skew-Effekte in Bauteilen zum Beispiel lassen sich demnach durch Materialien variierender Brechungsindices beseitigen.

Der nichtlineare Brechungsindex kann in der Form $n = n_0^{res} + \bar{n}_2^{Skew} \langle \tilde{E}^2 \rangle + \dots$ angegeben werden. Damit variiert der Brechungsindex gemäß den Singularitäten bzw. mit zunehmender Unschärfe (Breite der Kurve, erhöhter Variationsbereich des Brechungsindex) in dissipativer Umgebung. Der Index kann mit der Intensität kontrolliert werden.

Keywords: Nonlinear Optics, Nonlinear Photonics, Nonlinear Refractive Index, Nonlinear Susceptibility, Noncentrosymmetric matter, Centrosymmetric matter, Plasmons, High-Energy physics, HHG, Many-body theory, Statistical physics.

Nichtlineare Makroskopische optische Response Tensoren für 2- Farben Anregung und Elektron- Multiphoton Wechselwirkung

Peter Krampfl*

1. Zusammenfassung: Ein sich ergebender interessanter Aspekt in dieser Arbeit sei gleich zu Beginn erwähnt. Es zeigte sich, dass die von nichtzentrosymmetrisch gebundenen Elektronen erzeugten höheren Harmonischen, Eigenschaften von Negativ- Index- Systemen annehmen können. Durch Kontrolle der Nichtlinearität sind demnach maßgeschneiderte optische Metamaterialien mit definierten negativen Brechungsindex möglich. Dies wird interessant im Zusammenhang, dass Materiewellen mit einem Brechungsindex von exakt minus Eins das perfekte Mikroskop bilden. Ein geeigneter Satz von neuen charakteristischen optischen Resonanzensensoren, welche unter Berücksichtigung der neu hinzugewonnenen Erkenntnisse nicht mehr lorentzartig sind, wurden für nichtzentrosymmetrische Medien hergeleitet und dessen Wichtigkeit für die verschiedenen nichtlinearen orbitalen Responsefunktionen gezeigt und diskutiert. Die nichtlineare resonante Nennerfunktion kann in Abhängigkeit der Stärke der Nichtlinearität α neu geschrieben werden, wobei nichtzentrosymmetrische Materie im nichtlinearen Regime mit negativer SKEWNESS und zentrosymmetrische Materie, sowie der Übergang Bulk / Oberfläche mit positiver SKEWNESS skaliert und sich die Harmonischen in Abhängigkeit der eingeführten Parameter p und q klassifizieren lassen. Die Nichtlinearität in der Nennerfunktion berücksichtigt die auftretende Skewness und die Destabilisierung zunehmender nichtlinearer Amplituden, ganz im Gegensatz zur aktuellen Literatur (z. B. Boyd), in der α lediglich als Proportionalitätsfaktor auftritt, in der die Amplitude linear und direkt beeinflusst wird und keine Destabilisierung der Amplituden im nichtlinearen Regime beschrieben wird. Aufgrund der Symmetrie nichtzentrosymmetrischer Materie sind keine longitudinalen Moden propagationsfähig. Die nichtlineare dielektrische spektrale Antwortfunktion besitzt für nicht- dissipative Materie Singularitäten bei jeder

*Corresponding author.

Übergangsfrequenz. Die Analyse unter Berücksichtigung dissipativer Effekte zeigte eine Beseitigung dieser Singularitäten. Man erhält Kurven mit negativer Skewness. In den identifizierten Bereichen negativer dielektrischer Funktion existiert ein reeller Brechungsindex kleiner 1. Der Brechungsindex ist dort imaginär, was normalerweise charakteristisch für Oberflächenplasmonen ist. In diesem Bereich ist es prinzipiell möglich durch Einstellen geeigneter Nichtlinearität optische Metamaterialien zu erzeugen. Im linearen Fall besitzt die Spektralfunktion eine Nullstelle, sodass hierfür auch longitudinale Moden propagieren können. Variation der Nichtlinearität bewirkt abhängig vom Vorzeichen einen sehr großen positiven bzw. negativen Skew und zeigt Frequenzkonversion. Die nichtlineare elektrische Suszeptibilität für Oberflächenpartikel durch Verschiebung in den niederfrequenten Bereich begünstigt. Für gewöhnlichen Bulk etwas schwächer ausgeprägt ebenfalls, ganz im Gegensatz zu positiv dotierten Bulk der höherfrequenten zur Resonanz besser zu polarisieren und anzuregen ist. Somit ist die nichtlineare elektrische Suszeptibilität, abhängig von der Materialsymmetrie frequenzabhängig. Somit wirken Oberflächen leicht unterhalb der Anregungsfrequenz optisch dichter und realer Materialbulk oberhalb ihrer Anregungsfrequenz dichter. Störende Skew-Effekte in Bauteilen zum Beispiel lassen sich demnach durch Materialien variierender Brechungsindices beseitigen. Der nichtlineare Brechungsindex kann in der Form $n = n_0^{res} + \bar{n}_2^{Skew} \langle \tilde{E}^2 \rangle + \dots$ angegeben werden. Damit variiert der Brechungsindex gemäß den Singularitäten bzw. mit zunehmender Unschärfe (Breite der Kurve, erhöhter Variationsbereich des Brechungsindex) in dissipativer Umgebung. Der Index kann mit der Intensität kontrolliert werden.

2. Nichtlineare Suszeptibilität und Brechungsindex: In dieser Arbeit wird der nichtlineare Skewness- Effekt im Kontext der nichtlinearen makroskopischen Response- Tensoren in dissipativer Umgebung diskutiert. Wie in den vorhergehenden Arbeiten [PKM] gezeigt, lassen sich für die die makroskopischen optischen Response Tensoren im nichtlinearen Regime exakt nichtlineare analytische Ausdrücke für die optischen Response Tensoren angeben. Die nichtlineare orbitale Suszeptibilität in der ersten nichtlinearen Näherung kleiner Größen $\mathcal{O}(\lambda)$ zur Beschreibung der Wechselwirkung von bichromatischen Photonenfeldern mit nichtzentrosymmetrischer Materie ergibt Ausdrücke, welche für komplex konjugierte Felder in dissipativer Umgebung behobene Singularitäten bei den Resonanzen mit den Frequenzen $-2\omega_1$, $-2\omega_2$, $-(\omega_1+\omega_2)$, $-(\omega_1-\omega_2)$ besitzt, welche einen amplitudenabhängigen negativen Skew aufweisen. Für NZS & ZS- Materie zeigt sich ein negativer Skew, für die Schnittstelle Oberfläche / Bulk und ladungsunterschüssigen Bulk stellt sich ein positiver Skew ein.

$$\left.
\begin{aligned}
\chi_{ijk}^{(2)}(\mp(2\omega_1, \omega_1, \omega_1))^{*'} &= \frac{N_v(e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 + \omega_1)^*} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\chi_{ijk}^{(2)}(\mp(2\omega_2, \omega_2, \omega_2))^{*'} &= \frac{N_v(e^3/m_e^2)}{(\mathcal{D}^\alpha)^2(\omega_2)^* \mathcal{D}^\alpha(2\omega_2)^*} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\chi_{ijk}^{(2)}(\mp(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2))^{*'} &= \frac{N_v(e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 + \omega_2)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 + \omega_2)^*} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\chi_{ijk}^{(2)}(\mp(\omega_1 - \omega_2, \omega_1, -\omega_2))^{*'} &= \frac{N_v(e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_2) \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 - \omega_2)^*} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\chi_{ijk}^{(2)}(\mp(0, \omega_2, -\omega_2))^{*'} &\equiv \chi_{ijk}^{(2)}(\mp(0, \omega_2, -\omega_2))' = \frac{N_v(e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_2)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_2) \mathcal{D}^\alpha(0)^*} \\
&\quad + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned}
\right\} \quad (1)$$

Die nichtlineare Suszeptibilität in $\chi_{\alpha\mu}^{(N)'}$ setzt sich aus der Summe all dieser Komponenten zusammen. Mithilfe der Dispersionstheorie lässt sich auf den exakten molekularen Dielektrizitätstensor beliebiger Ordnung schließen und somit der nichtlineare Brechungsindex exakt analytisch bestimmen. Für homogene, isotrope Materie kann man anschreiben:

$$\begin{aligned}
(\mathcal{E}_{ijk}(\Omega_N))^{(N)'} &= \left(n_{ijk}^{(N)}(\Omega_N) \right)'^2 \\
&= 1 + 4\pi \chi_{ijk}^{(N)}(\Omega_N)'
\end{aligned} \quad (2)$$

wobei $\Omega_N \equiv \sum_{i=N} \omega_i$ die optischen Pumpfrequenzen darstellen. Die nichtlinearen Spektraleigenschaften im Fourier- Raum können damit zusammenfassend für bichromatische c. c. Photonenfelder und deren komplex konjugierten Felder wie folgt angegeben werden:

$$\left. \begin{aligned}
\mathcal{E}_{ijk}^{(2)}(\mp(2\omega_1, \omega_1, \omega_1))^{*'} &= 1 + \frac{4\pi N_v (e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 + \omega_1)^*} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathcal{E}_{ijk}^{(2)}(\mp(2\omega_2, \omega_2, \omega_2))^{*'} &= 1 + \frac{4\pi N_v (e^3/m_e^2)}{(\mathcal{D}^\alpha)^2(\omega_2)^* \mathcal{D}^\alpha(2\omega_2)^*} + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathcal{E}_{ijk}^{(2)}(\mp(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2))^{*'} &= 1 + \frac{4\pi N_v (e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 + \omega_2)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 + \omega_2)^*} \\
&\quad + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathcal{E}_{ijk}^{(2)}(\mp(\omega_1 - \omega_2, \omega_1, -\omega_2))^{*'} &= 1 + \frac{4\pi N_v (e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_1)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_2) \mathcal{D}^\alpha(\omega_1 - \omega_2)^*} \\
&\quad + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2) \\
\mathcal{E}_{ijk}^{(2)}(\mp(0, \omega_2, -\omega_2))^{*'} &\equiv \mathcal{E}_{\alpha\mu}^{(2)}(\mp(0, \omega_2, -\omega_2))' = 1 + \frac{4\pi N_v (e^3/m_e^2)}{\mathcal{D}^\alpha(\omega_2)^* \mathcal{D}^\alpha(\omega_2) \mathcal{D}^\alpha(0)^*} \\
&\quad + c.c. + \mathcal{O}(\lambda^2)
\end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Dabei ist zu beachten, dass die Nichtlinearität α in der komplexen nichtlinearen Resonanzfunktion nur noch im Nenner auftritt. Definiert auf die tatsächlich im Spektrum auftretenden reziproken Frequenzen lässt sich anschreiben:

$$\left(\mathcal{D}_{pq}^\alpha(\omega_k) \right) = \begin{cases} \text{linear} & \omega_k^2 - (q/p)^2 \omega_0^2 - \alpha \mathfrak{x}_{pq}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma(p/q)\omega_k = \infty & \text{für } \alpha=0 \\ \\ \text{nichtlinear} & \omega_k^2 - (q/p)^2 \omega_0^2 - \mathfrak{x}_{pq}^\alpha \tilde{b}^2 + 2i\gamma(p/q)\omega_k & \\ & \omega_k^2 - (q/p)^2 \omega_0^2 - \omega_\alpha^{(2)}(\tilde{b}) + 2i\gamma(p/q)\omega_k & \text{für } \alpha \neq 0 \end{cases} \quad (4)$$

mit den Anharmonizitätskoeffizienten, α_{pq}^α , welche allgemein die Skewness für Harmonische und Subharmonische beliebiger Ordnung mit einer Genauigkeit $\mathcal{O}(\lambda)$ berücksichtigt.

$$\alpha_{pq}^{\alpha\beta\mp} = \left\{ \begin{array}{l} \text{allgemein} \\ \text{Fundamentale} \\ \text{SubHG} \\ \text{HHG} \end{array} \right. \quad (5)$$

$$\left(\mp \frac{3\beta q}{8p\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3(p/q)^2 \omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{4 \left(4\omega_\varepsilon^2 (p/q)^3 \omega_0^3 - (p/q)^5 \omega_0^5 \right)} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0}$$

$$\forall \left\{ n \in \mathbb{N} \mid (p_\alpha, q_\alpha) = 2n \wedge (p_\beta, q_\beta) = 2n + 1 \right\}_{p_{(\beta)\alpha} \neq q_{(\beta)\alpha}}$$

$$\left(\mp \frac{3\beta}{8\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3\omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{16\omega_\varepsilon^2 \omega_0^3 - 4\omega_0^5} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0} \quad \forall p_{(\beta)\alpha} = q_{(\beta)\alpha} = 1$$

$$\left(\mp \frac{3\beta q}{8\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3(1/q)^2 \omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{4 \left(4\omega_\varepsilon^2 (1/q)^3 \omega_0^3 - (1/q)^5 \omega_0^5 \right)} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0}$$

$$\forall \left\{ n \in \mathbb{N} \mid (p_\alpha, q_\alpha) = 2n \wedge (p_\beta, q_\beta) = 2n + 1 \right\}_{p_{(\beta)\alpha} \neq q_{(\beta)\alpha}}$$

$$\left(\mp \frac{3\beta}{8p\omega_0} + \frac{\alpha^2 \left(3p^2 \omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2 \right)}{4 \left(4\omega_\varepsilon^2 p^3 \omega_0^3 - p^5 \omega_0^5 \right)} \right)_{\omega_\varepsilon \neq \omega_0}$$

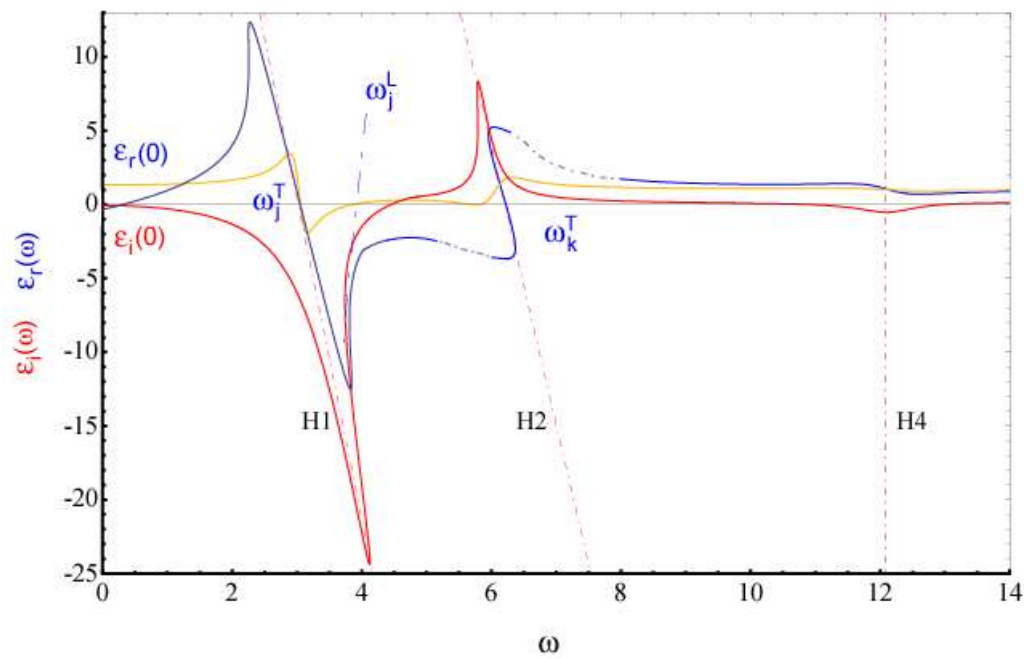
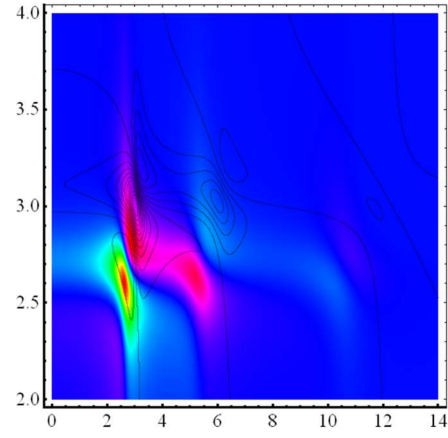
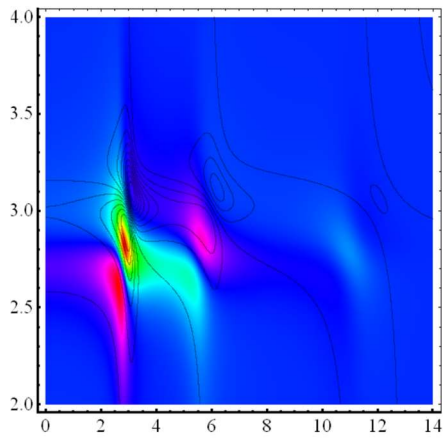
$$\forall \left\{ n \in \mathbb{N} \mid (p_\alpha, q_\alpha) = 2n \wedge (p_\beta, q_\beta) = 2n + 1 \right\}_{p_{(\beta)\alpha} \neq q_{(\beta)\alpha}}$$

Damit kann mittels der Nichtlinearität die Skewness exakt berücksichtigt werden. Weiters sagen die Ausdrücke eine destabilisierende Wirkung auf die Amplitude für hohe Felder vorher. In der aktuellen Literatur, wird die Nichtlinearität α als Proportionalitätsfaktor berücksichtigt. Demzufolge würde der Betrag der Amplitude mit zunehmender Nichtlinearität ebenfalls zunehmen und dass auch noch stabil. Weiters bewirkt in der bisherigen Modellbildung ein Vorzeichenwechsel der Nichtlinearität eine vollständige Amplitudenumkehr, was bedeuten würde, dass aus Emmission, nach Durchlaufen der Nichtlinearität eines vollständigen Vorzeichens, Absorption wird, was physikalisch unsinnig ist. In der verbesserten Modellbildung bewirkt ein Vorzeichenwechsel in der Nichtlinearität einen Skewnesswechsel, was Sinn macht.

Der nichtlineare Brechungsindex kann in der Form $n = n_0^{res} + \bar{n}_2^{Skew} \langle \tilde{E}^2 \rangle + \dots$ entwickelt werden, wobei n_0^{res} der Index ist, welcher generiert wird durch schwache Felder (an der Resonanzfrequenz und deren kleinen Umgebung) und mit \bar{n}_2^{Skew} als eine neue optische Indexvariation gemäß der ermittelten Singularitäten, in welcher der Index zunimmt bzw. abnimmt, jeweils in Abhängigkeit des zugrundeliegenden Skews. Damit bleibt der nichtlineare Index Intensitätsabhängig ist aber im Gegensatz zur bisherigen Literatur keine einfache Konstante mehr, sondern variiert mit der Intensität im nichtlinearen Regime und kann damit kontrolliert werden. Somit nimmt an Oberflächen der Brechungsindex im nichtlinearen Regime ab, der ladungsüberschüssige Bulk etwas schwächer ab und der "reale" Bulk im Ladungsunterschuss entsprechend der Nichtlinearität zu.

Die nachfolgenden Abbildungen zeigen den berechneten nichtlinearen dielektrischen Spektral-Response $\varepsilon(\omega)$ für die Licht- Materie Wechselwirkung im extrem nichtlinearen Regime. Die nichtlineare dielektrische spektrale Antwortfunktion besitzt für nicht- dissipative Materie Singularitäten bei jeder Übergangsfrequenz $\omega = \omega_{jk}^T$. Der erste Peak mit negativer Imaginarität zeigt Absorption und der zweite Peak zeigt ein dazu inverses Verhalten mit positiver Imaginarität. Der Realteil der dielektrischen Funktion identifiziert an den Flanken der ersten Übergangsfrequenz normale Dispersion und anormale Dispersion in einem schmalen Band um die Übergangsfrequenz $\varpi = \varpi_j^T$ und in der Umgebung der zweiten Übergangsfrequenz ϖ_k^T dazu ein Gebiet inverser Dispersion. Die Dispersion hat hier das umgekehrte Vorzeichen wie bei einer gewöhnlichen absorptiven Resonanz, d. h. sie ist „normal“ am Übergang und anormal an den Flanken. Dies deutet auf eine Dunkelresonanz hin. Insbesondere ist in diesem schmalen Band größter Imaginärwerte für normale Dispersion ein Wendepunkt und Vorzeichenwechsel des Index- Systems nachzuweisen. Die starke Änderung des Brechungsindex wird induziert durch die Dunkelresonanz, welche in einem extrem schmalen Bereich sehr stark ausgeprägt ist. Die Relaxationsfrequenzen liegen jeweils bei den Harmonischen gerader, d. h. 2N- ter Ordnung. Im Frequenzbereich $\omega_j^T < \omega (< \omega_j^L) < \omega_k^T$ der transversalen Übergangsfrequenzen, d. h. zwischen der 2. und 4. Harmonischen, ist die dielektrische Funktion negativ, und somit ein reeller Brechungsindex kleiner 1, $-\infty < \tilde{n} < 1$ möglich. Der Brechungsindex $\tilde{n}(\omega)$ ist imaginär d. h. $n = 0$ und $\kappa(\omega) = \sqrt{|\varepsilon|}$, was normalerweise charakteristisch für Oberflächenplasmonen und Festkörperplasmonen ist. In diesem Bereich ist es prinzipiell

möglich durch Einstellen geeigneter Nichtlinearität optische Metamaterialien zu erzeugen. Außerhalb des Frequenzbereichs $\omega_j^T < \omega (< \omega_j^L) < \omega_k^T$ ist $\tilde{n} = \sqrt{\varepsilon}$ und $\kappa = 0$, der Reflektionskoeffizient ist also kleiner als Eins.



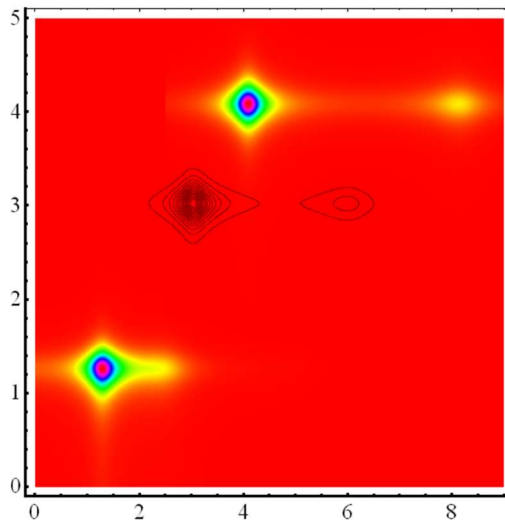


Abbildung 1 (oben) Phasen- und Amplitudendichten als Funktion der Frequenz im nichtzentrosymmetrischen Modell für Silizium und HeNe- Laser Puls im extrem nichtlinearen Regime mit einer optischen Feldamplitude von $E = 1.0 \times 10^{12}$ V/cm, $B = 0.7 \times 10^5$. Die Phasen und Amplituden werden für sehr hohe Harmonische extrem klein. Deshalb wurde die Phasen- und Amplitudenverteilung um die 4. Harmonische aus Darstellungsgründen höher gewichtet. Aufgrund der Symmetrie sind keine longitudinalen Moden propagationsfähig. Das nichtlineare System ist damit vom linearen Fall isoliert. Die lineare Phasen- und Intensitätsverteilung sind entsprechend als Contourlinien berücksichtigt. **(Mitte)** Exemplarische Darstellung der berechneten Phasen (Realteil) und Amplitude (Imaginärteil) des nichtlinearen dielektrischen Spektral- Responses $\epsilon(\omega)$ für 6.5×10^{10} Partikel, Nichtlinearität, $\alpha = 4.6165$ in nichtzentrosymmetrischen, dissipativen Medien mit $\gamma = 0.13494$. Die nichtlineare dielektrische spektrale Antwortfunktion besitzt für nicht- dissipative Materie Singularitäten bei jeder Übergangsfrequenz $\omega = \omega_{jk}^T$. Die gestrichelten Geraden zeigen die Orte der Singularitäten. Die Analyse unter Berücksichtigung dissipativer Effekte beseitigt diese Singularitäten. Wir erhalten Kurven mit negativer Skewness. Zusätzlich gelb eingezeichnet ist der reelle lineare Fall. Die lineare Spektralfunktion hat bei dem extrapolierten Wert wjl eine Nullstelle, sodass hierfür auch longitudinale Moden propagieren können. **(Unten)** Intensitätsverteilung Si-Kristall mit He- Ne- Puls in hochdissipativer Umgebung ($\gamma = 0.23$) für verschiedene Nichtlinearitäten α im extrem nichtlinearen Regime simuliert durch kleine Amplituden mit sehr großen Nichtlinearitätskoeffizienten $\alpha = \pm 7.165$. Die sehr starke Variation der Nichtlinearität mit $\alpha = \pm 7.165$ bewirkt abhängig vom Vorzeichen einen sehr großen positiven bzw. negativen Skew (links unten und rechts oben) und zeigt Frequenzkonversion. Aufgrund der Materiesymmetrie werden nur geradzahlige Harmonische generiert. Die hochdissipative Umgebung bewirkt ein Verschmieren der Intensitäten für positive Nichtlinearitäten (l. u.). Die

Nichtlinearität durchläuft ein vollständiges Vorzeichen und macht den Einfluß der Skewness deutlich sichtbar. In der Nähe der Nullstelle der Nennerfunktion verstärkt sich die Intensitätsdeformation (links unten). Für ein umgekehrtes Vorzeichen der Nichtlinearität verschiebt sich das Maximum in die entgegengesetzte Richtung (rechts oben). Zum Vergleich ist der schwach nichtlineare Fall mit Realwerten für Kristalle $\alpha = 0.046165$ als Contour-Linien Plot mit eingezeichnet.

Der sich anschließende Bereich des Resonanzdurchgangs der 4. Harmonischen zeigt wieder normale Dispersion mit positivem Index und kleiner positiver Imaginarität. Für noch größere Frequenzen stellt sich ein konstanter positiver Index ein. Für höhere Harmonische ist eine Plateauphase des dielektrischen Responses zu beobachten. Das deutet auf einen Polarisierungseffekt hin, dessen Wirkung zu Harmonischen höherer Ordnungen nachläßt. Dieselben Effekte sind für hohe Nichtlinearitäten ebenfalls zu beobachten. Der Relaxationspeak (reelle Dielektr. Resp.) bei höheren Harmonischen ist wesentlich kleiner und zu geringeren Frequenzen, für positive Brechungsindices (=reelle Indices), verschoben und entsprechend zu höheren Frequenzen für negative Brechungsindices (=imaginärer Index) verschoben. Wie aus Abb. (1, Mitte) weiters ersichtlich ist, besitzt die reelle lineare dielektrische Funktion bei $\omega = \omega_j^l$ eine Nullstelle und daher können, ganz im Gegensatz zum nichtlinearen Fall, zusätzlich zu transversalen Moden auch longitudinale Moden durch nichtzentrosymmetrische Materie mit der Frequenz $\omega = \omega_{jk}^l$ propagieren. Bemerkenswert ist hierbei, dass für hohe Nichtlinearitäten der reelle dielektrische Response keine Nullstelle bei $\omega = \omega_{jk}^l$ aufweist und sich somit für den nichtlinearen Fall in nichtzentrosymmetrischer Materie keine longitudinalen Moden ausbreiten. Demnach ist diese spezielle Anregungsform, die an der Oberfläche mit der Frequenz ω_1 propagieren kann, nicht möglich. Die numerische Analyse zeigt zudem, dass in hochdissipativer und niedrigdissipativer Materie, sowie im extrem nichtlinearen Regime, in keiner auch noch so abgeschwächten Ausprägung, longitudinale Modenpropagation möglich sind. Das nichtlineare System kann nicht in ein lineares System dissipiert werden und demnach sind nur transversale Moden möglich. Dies zeigt sehr anschaulich, dass an Oberflächen oder allgemein an nichtzentrosymmetrischer Materie Mikro- und Nanostrukturen für Metamaterialien erzeugt werden können. Diese werden über die Einstellung der Nichtlinearität explizit definiert und maßgeschneiderte Metamaterialien mit definierten negativen Brechungsindex sind möglich. Negativ- Index- Systeme von exakt -1 sind das perfekte

Mikroskop. Die Negativbrechung ist aber besser an Metalloberflächen handhabbar, da hier Oberflächenplasmonen entstehen, deren Ladungsträger- Dichteschwankungen sich mit der Plasmafrequenz $\omega_p^2 = N_V e^2 / \epsilon_0 m_e$ als Wellen im Material fortpflanzen. Sie lassen sich in Wellenleitern durch die Schichtdicke ausgewählter Metalle und Isolatoren sehr präzise steuern. So ist es beispielsweise mit einer Plasmonen- Erregung mit blau- grünem Licht in einem Sandwich aus Wellenleitern gelungen, Elektronenschwingungen zu erzeugen, die Licht abstrahlen und zwar in einem Winkel, der negativer Lichtbrechung entspricht¹.

3. Bulk und Übergang Oberfläche / Bulk: An der Schnittstelle Oberfläche / Bulk (Konturlinien oben) besitzt das System bereits negative Nichtlinearität, was anschaulich zeigt, dass der Skew des Bulks prägender auf das Gesamtsystem wirkt, als die Skewness der Oberfläche. Die nachfolgenden Abbildungen 2 und 3 zeigen zum Vergleich die berechneten Phasen- und Amplitudendichten und den nichtlinearen dielektrischen Spektral- Response $\epsilon(\omega)$, sowie die Intensitätsdichten für zentrosymmetrische Materie und deren Oberfläche / Bulk Übergang zur nichtzentrosymmetrischen Materie im extrem nichtlinearen Regime. Die nichtlineare dielektrische spektrale Antwortfunktion für zentrosymmetrische Materie und deren Oberfläche / Bulk Übergang besitzt hierbei nahezu dieselben Eigenschaften wie für nichtzentrosymmetrische Materie. Unterschiede sind zu finden in der Skewnesskompensation mit Skewnesswechsel, die Generation ausschließlich ungeradzahlig hoher Harmonischer und vor allem die beinahe Nullstelle, die einen markanten Eigenschaftsunterschied zur nichtzentrosymmetrischen Materie bedeutet. Im approximativen Grenzfall, kann dieses als Nullstelle gewertet werden, was bedeutet, dass neben transversalen Moden zusätzlich auch longitudinale Modenpropagation im Festkörperbulk beobachtet werden können.

¹ Lezec, H. J., Dionne, N. A. & Atwater, H. A. Negative refraction at visible frequencies. *Science* 316, 430–432 (2007).

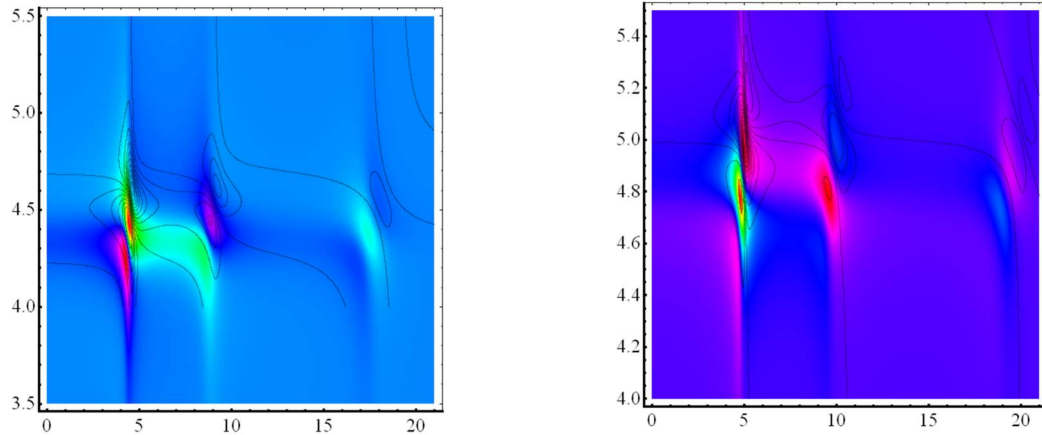
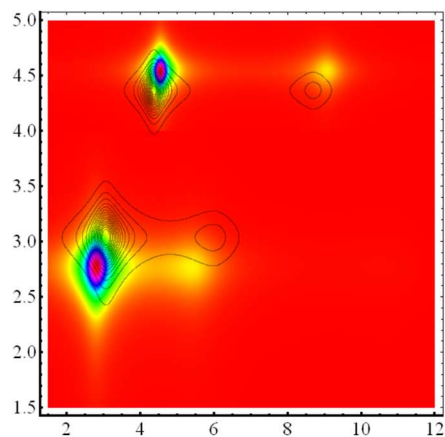


Abbildung 2 (oben) Phasen- und Amplitudendichten als Funktion der Frequenz im zentrosymmetrischen Modell (Bulk) und deren Übergang Oberfläche / Bulk für Silizium und HeNe- Laser Puls im extrem nichtlinearen Regime mit einer optischen Feldamplitude von $E = 1.0 \times 10^{12}$ V/cm, $B = 0.5 \times 10^5$. Die Phasen- und Intensitätsverteilung für den Bulk sind zum direkten Vergleich entsprechend als Contourlinien mit eingezeichnet. Es ist offensichtlich zu erkennen, dass die Skewness im extrem nichtlinearen Regime die Lage der Resonanzstellen deutlich verschiebt, (wenn hohe Amplituden $B = 50\,000$ zugelassen werden). Im Skew könnte die Ursache für die Generation der ungeraden Harmonischen liegen, welche die 3. Harmonische hier bei $3 \times 3 = 9$ bewirkt. Aber auch die Fundamentale wird stark nach höheren Frequenzen verschoben.



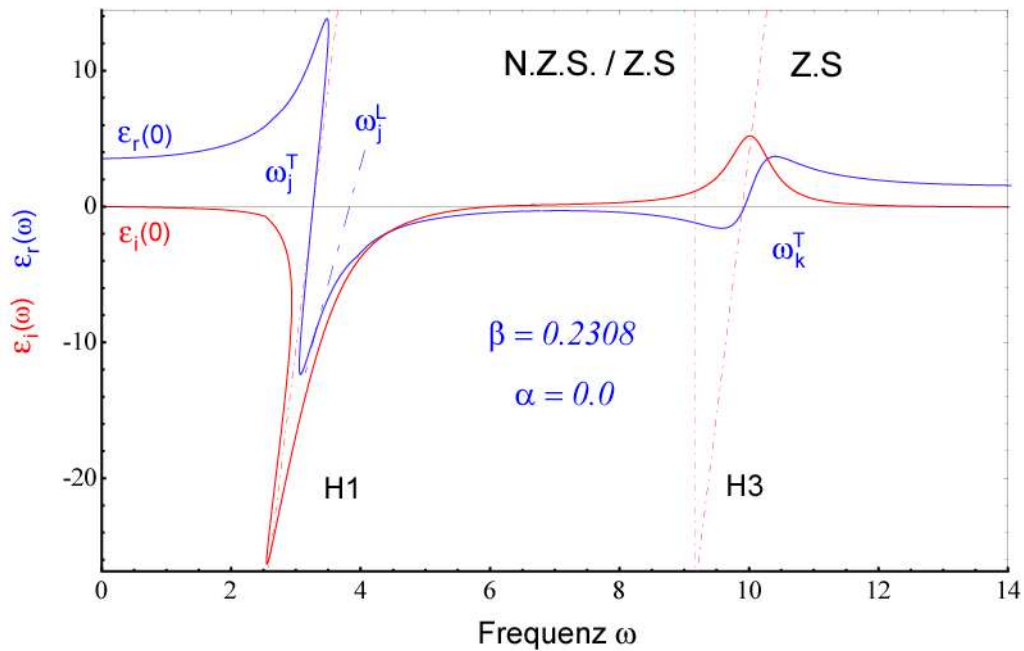


Abbildung 3 (oben) Intensitätsverteilung des mit He- Ne- Puls angeregten Si- Kristalls in hochdissipativer Umgebung ($\gamma = 0.32$) für zentrosymmetrische (Bulk, oben) und nichtzentrosymmetrische Medien (Oberfläche, unten) und deren Schnittselle (Konturlinien oben). Die Oberfläche besitzt negative Skewness, der Bulk wirkt entgegengesetzt mit positiver Skewness (bei Ladungsunterschuss). Der Nichtlinearitätskoeffizient α durchläuft beim Übergang von nichtzentrosymmetrischer Materie zu zentrosymmetrischer Materie dabei ein vollständiges Vorzeichen und macht den Einfluss der Skewness deutlich sichtbar. Dabei werden für zentrosymmetrische Materie die Intensitäten nach höheren Frequenzen verschoben, ganz im Gegensatz zur nichtzentrosymmetrischen Materie deren Intensitäten gemäß positiver Skewness nach links verschoben werden. **(unten):** Nichtlineare dielektrischen Spektral-Response $\varepsilon(\omega)$ zentrosymmetrischer Materie im Rahmen der erweiterten nichtlinearen Theorie. Der Realteil besitzt in approximativer Näherung eine Nullstelle zwischen den beiden Harmonischen. Damit sind im Bulk auch neben transversalen Phonenmoden auch longitudinale Phonenmoden propagierbar.

4. Spektraleigenschaften im Rahmen der linearen Approximationstheorie: Zum Vergleich ist der "lineare, harmonische" Fall mit eingezeichnet (Kontur- Linien Plot unten $\alpha=\beta= 0.0$). Im Skew könnte die Ursache für die Frequenzkonversion liegen. Im Bulk werden ungerade Harmonische generiert, hier die 3. Harmonische, welche bei der dreifachen Frequenz der

Fundamentalen ($\omega=9+$ kleine Abweichung durch Skew) identifiziert werden kann. Oberflächen generieren gerade Harmonische, welche bei $\omega=6$ unter Berücksichtigung positiver Skewness etwas links davon liegt. Der "lineare" Fall ($\alpha=\beta=0$) ergibt erwartungsgemäß exakt an den Resonanzstellen die Intensitäten aus, welche den Sachverhalt nach der aktuellen Modellbildung, wie z. B. nach [Boyd], widerspiegelt.

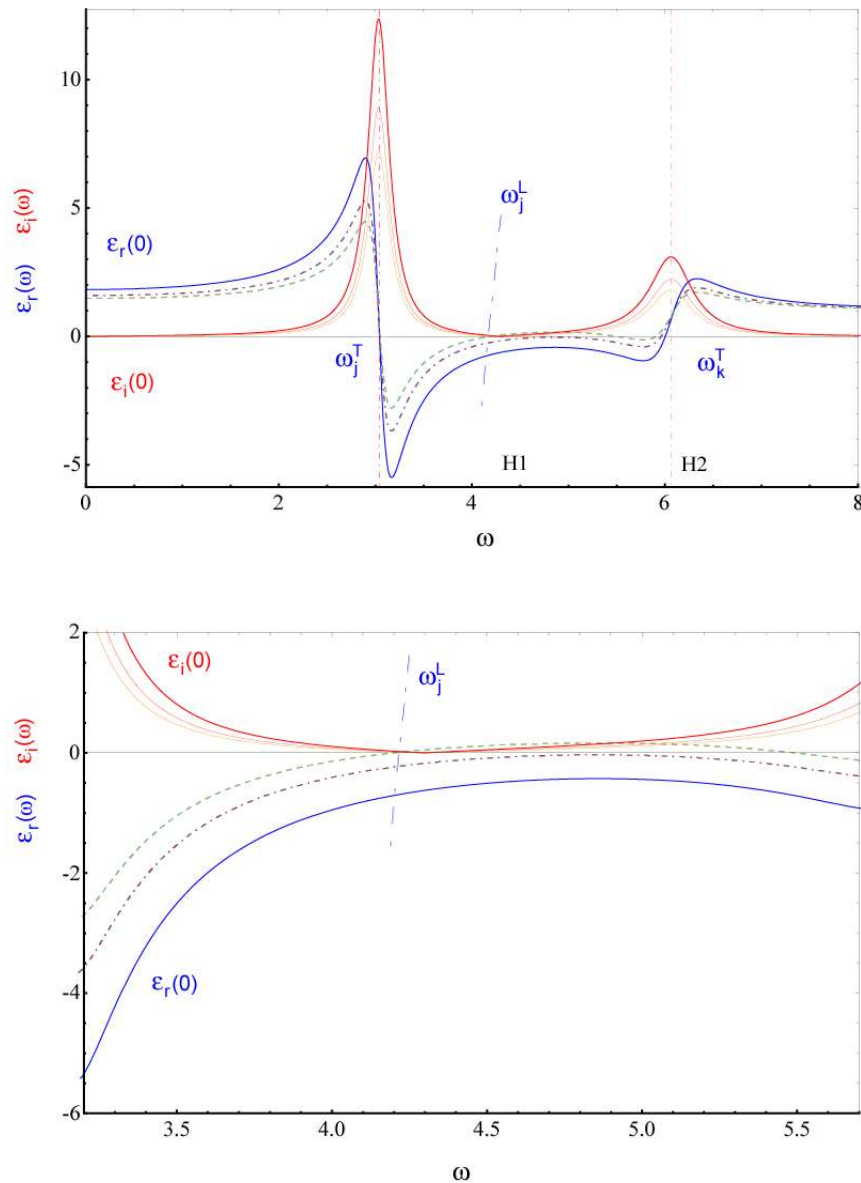
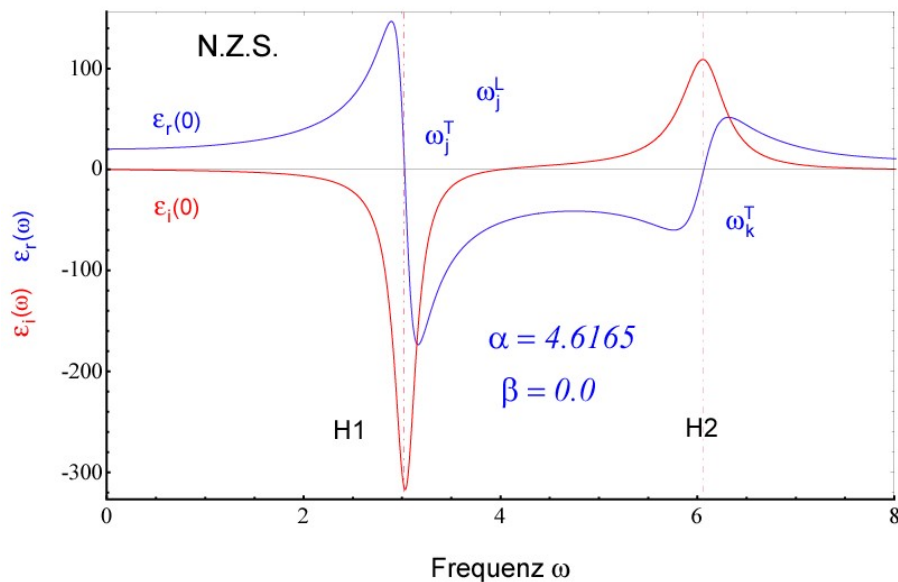


Abbildung 4 zeigt den nichtlinearen dielektrischen Spektral- Response $\epsilon(\omega)$ nichtzentrosymmetrischer Materie im Rahmen der linearen Approximationstheorie der aktuellen Literatur [Boyd].

Variationen der nichtlinearen Parameter lassen folgende relevante Rückschlüsse zu und ist in der nachfolgenden Abbildungsreihe anschaulich illustriert. Der Realteil ist für kleine positive Nichtlinearität ($0 < \alpha, \beta \ll 1$) unsymmetrisch bezüglich der Frequenzachse und zwar für positive Amplituden (Amplitude im positiven größer als im Negativen). Für Nichtlinearitäten größer 1 ($\alpha > 1$) verschiebt sich die Asymmetrie zugunsten negativer Realwerte. Vorzeichenänderung von α, β bewirkt eine Achsen- Spiegelung der Kurve an der Frequenzachse. Im Imaginärteil wirkt die Nichtlinearität direkt auf die Amplitude und verstärkt diese. Keine weiteren Asymmetrien beobachtbar. Vorzeichenwechsel der Nichtlinearität bewirkt, wie schon beim Realteil zu beobachten war, eine Spiegelung der Kurve an der Frequenzachse. Nachfolgende Abbildungen zeigen dies anschaulich.



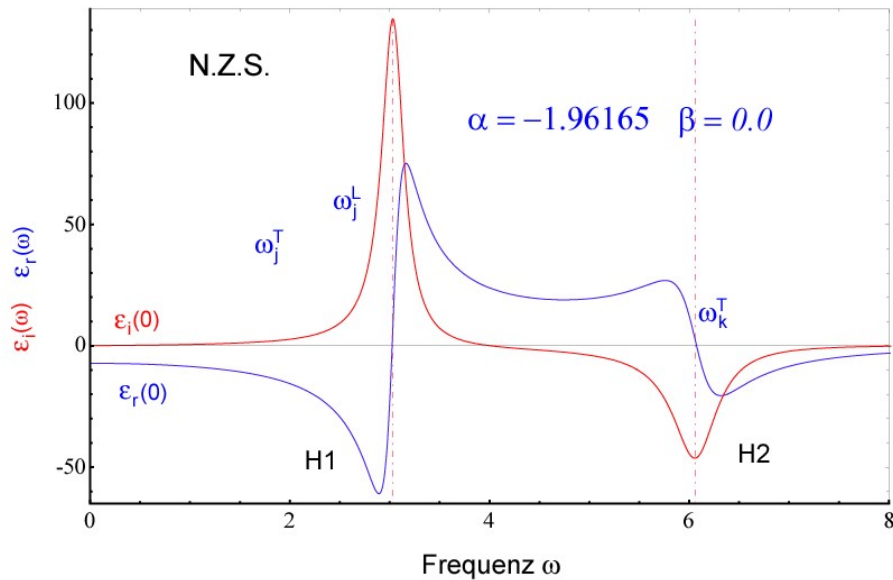
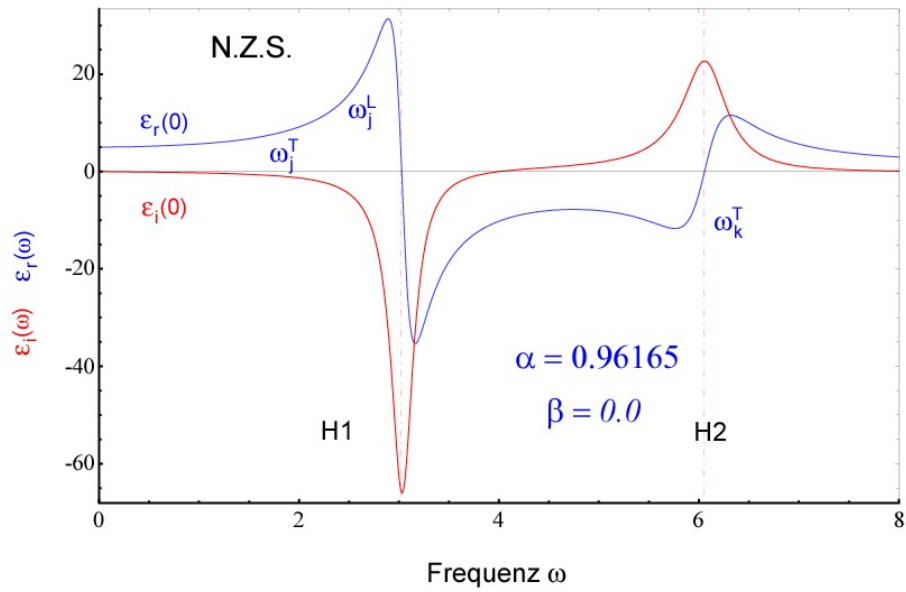


Abbildung 5 zeigt den nichtlinearen dielektrischen Spektral- Response $\varepsilon(\omega)$ nichtzentrosymmetrischer Materie im Rahmen der linearen Approximationstheorie der aktuellen Literatur [Boyd]. Dabei gehen die beiden Nichtlinearitäten als Proportionalitätsfaktor in auf der linearen Theorie basierenden Gleichungen ein (**oben und Mitte**). Inversion der Nichtlinearitäten bewirkt für die nichtlineare dielektrischen Funktion Achsenspiegelung bezüglich der Frequenzachse (**unten**). Das Verhalten der nichtlinearen Spektralfunktion steht im krassen Gegensatz zur genaueren entwickelten nichtlinearen Theorie der Licht- Materie Wechselwirkung.

5. Multiphotonenwechselwirkung N-ter Ordnung: allgemeine analytische ab initio Ausdrücke der neuen Modellbildung: Mit den neu gewonnenen Erkenntnissen können wir die nichtlineare Optik durch folgenden extrem kompakten Satz von nichtlinearen, makroskopischen optischen Response Tensoren $\chi_\mu^{(N)}$, $\mathcal{P}_\mu^{(N)}$, $\varepsilon_\mu^{(N)}$ und $n_\mu^{(N)}$ N-ter gerader Ordnung exakt analytisch darstellen.

$$\begin{aligned}
\left(\tilde{\mathcal{P}}_\mu^{(N)}\right)^\omega &= \mathcal{K}_{\dots\sigma\nu nml}(\omega_\sigma; \omega_p, \omega_q, \dots, \varpi_{N-1}, \varpi_N) \\
&\times \sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \chi_{\mu\alpha_p, \dots, \alpha_N}^N(\omega; \omega_p, \omega_q, \dots, \varpi_{N-1}, \varpi_N) \cdot E_{\alpha_p}^{\omega_p} \dots E_{\alpha_{N-1}}^{\omega_{N-1}} E_{\alpha_N}^{\omega_N} \\
&= -eN_\nu \tilde{x}^{(N)}(t) = \sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \frac{2e(e/m_e)^N N_\nu \prod_{j=2N} E_{\alpha_j}^{\omega_j}}{\varepsilon_0 \mathcal{D}^\alpha \left(\sum_{j=N} \varpi_j \right) \prod_{j=N} \mathcal{D}_j^\alpha(\varpi_j)}
\end{aligned} \tag{6}$$

mit

$$\begin{aligned}
\chi_{\mu\alpha_p, \dots, \alpha_N}^{(N)}(\omega_{\ell(YZ)}; \omega_p, \omega_q, \dots, \varpi_{N-1}, \varpi_N) &= \frac{N_\nu 2e(e/m_e)^N}{\varepsilon_0 \mathcal{D}^{\alpha_j} \left(\sum_{j=N} \varpi_j \right) \prod_{j=N} \mathcal{D}_{\alpha_j}(\varpi_j)} \\
\sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \chi_{\mu\alpha_p, \dots, \alpha_N}^{(N)}(\omega_\sigma; \omega_p, \omega_q, \dots, \varpi_{N-1}, \varpi_N) &= \frac{N_\nu}{\varepsilon_0} \sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \frac{2e(e/m_e)^N}{\mathcal{D}^{\alpha_j} \left(\sum_{j=N} \varpi_j \right) \prod_{j=N} \mathcal{D}_{\alpha_j}(\varpi_j)}
\end{aligned} \tag{7}$$

und

$$\begin{aligned}
\left(\varepsilon_\mu(\mathbf{k}, \Omega_\sigma)\right)^{(N)} &= \left(n_\mu^{(N)}(\Omega_\sigma)\right)^2 \\
&= 1 + 4\pi \sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \chi_{\mu\alpha_p, \dots, \alpha_N}^{(N)}(\Omega_\sigma)
\end{aligned} \tag{8}$$

mit $\Omega_\sigma \equiv \sum_i \varpi_i$ als Summe der eingestrahnten Frequenzen und $\mu\alpha_1\alpha_2\dots\alpha_N$, welche die räumlichen Richtungen indizieren. Die zugrunde gelegte intrinsische Permutationssymmetrie

impliziert Invarianz unter allen $N!$ Permutationen der Paare (α_1, ϖ_1) (α_2, ϖ_2) , ..., (α_N, ϖ_N) . Dabei charakterisieren die Materialeigenschaften mit $e^2 N_v / \varepsilon_0 m_e = \varpi_p^2$ die Plasmafrequenz. Die zugrundegelegte komplexe „nichtlineare“ Resonanzfunktion für SFG in NZS- Materie genügt den Gleichungen:

$$\left(\mathcal{D}^{\alpha_1 \beta_1} \dots \mathcal{D}^{\alpha_N \beta_N} \left(\sum_j \frac{p}{q} \varpi_j \right) \right) = \begin{cases} \text{linear} & \left(\sum_j \frac{p}{q} \varpi_j \right)^2 - \varpi_0^2 + 2i\gamma \frac{p}{q} \sum_j \varpi_j & \text{für } \alpha = (\\ & \left(\sum_j \frac{p}{q} \varpi_j \right)^2 - \varpi_0^2 - \varkappa^{\alpha\beta} b^2 + 2i\gamma \frac{p}{q} \sum_j \varpi_j & \text{für } \alpha \neq \\ \text{nichtlinear} & = \left(\sum_j \frac{p}{q} \varpi_j \right)^2 - \varpi_0^2 + \varpi_{\alpha\beta}^{(2)}(b) + 2i\gamma \frac{p}{q} \sum_j \varpi_j & \end{cases} \quad (9)$$

wobei nichtzentrosymmetrische Materie im nichtlinearen Regime mit negativer SKEWNESS und zentrosymmetrische Materie, sowie der Übergang Bulk / Oberfläche mit positiver SKEWNESS skaliert:

$$\varpi_{\alpha\beta}^2 = -\varpi_0^2 - \varpi_{\alpha\beta}^{(2)}(b)$$

$$= \begin{cases} \left(\mp \frac{3\beta q}{8p\omega_{0,\varepsilon}} + \frac{\alpha^2 (3(p/q)^2 - 8)}{4\omega_{0,\varepsilon}^3 (4(p/q)^3 - (p/q)^5)} \right) \tilde{b}^2 & \text{für } \omega_\varepsilon = \omega_0 \\ \left(\mp \frac{3\beta q}{8p\omega_0} + \frac{\alpha^2 (3(p/q)^2 \omega_0^2 - 8\omega_\varepsilon^2)}{4(4\omega_\varepsilon^2 (p/q)^3 \omega_0^3 - (p/q)^5 \omega_0^5)} \right) \tilde{b}^2 & \text{für } \omega_\varepsilon \neq \omega_0 \end{cases} \quad (10)$$

mit $\varpi_{\alpha\beta}^{(2)}(b)$ als frequenzabhängige Amplitudenverteilung und $\varpi_{\alpha\beta}^{(2)}$ die Frequenzkorrektur nichtzentrosymmetrischer und zentrosymmetrischer Materie sowie deren Übergang im nichtlinearen Regime. In Abhängigkeit der Parameter p und q können wir die / lassen sich die Harmonischen klassifizieren. Mit $p = q = 1$, d. h. $\varpi_0 \approx \varpi$ erhalten wir die Grundresonanz oder gewöhnliche Resonanz. Mit $q = 1$, $p_\alpha = 2, 4, 6, \dots, 2P_\alpha - 2$, $2P_\beta$ (NZS) mit $P_\alpha \in \mathbb{N}$ bzw. $p_\beta =$

1, 3, 5, ..., $2P_\beta - 1$, $P_\beta \in \mathbb{N}$ (ZS), d. h. $\varpi_0 \approx \frac{\omega}{p}$, erhalten wir die harmonische Lösung in p-ter Ordnung, d. h. die hohen Harmonischen. Mit $p = 1$ und $q_\alpha = 2, 4, 6, \dots, 2Q_\alpha - 2, 2Q_\alpha$ mit $Q_\alpha \in \mathbb{N}$, d. h. $\varpi_0 \approx q\varpi$ erhalten wir die subharmonische Lösung in q-ter Ordnung für Oberflächen bzw. $q_\beta = 1, 3, 5, \dots, 2Q_\beta - 1, Q_\beta \in \mathbb{N}$ für Bulk. Wohlgermerkt definiert am realen Spektrum. 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{11}$$

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

Für multichromatische Laserexperimente mit z. B. vier Einstrahlungsfrequenzen erhalten wir:

$$\begin{aligned}
\sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \chi_{j\alpha_p, \dots, \alpha_N}^N(\omega; \omega_p, \omega_q, \dots, \varpi_{2N-2}, \varpi_{2N}) &= \frac{N_v}{\varepsilon_0} \sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \frac{2e(e/m_e)^N}{\mathcal{D}^{\alpha_j \beta_j} \left(\sum_{j=N} \varpi_j \right) \prod_{j=N} \mathcal{D}^{\alpha_j \beta_j}(\varpi_j)} \\
&= \frac{N_v}{\varepsilon_0} \sum_{\alpha_p, \dots, \alpha_N} \frac{2e(e/m_e)^N}{\mathcal{D}^{\alpha_j \beta_j} \left(4\varpi_j \sum_{j=2N} \right) \mathcal{D}_{\alpha_j \beta_j}^2(2\varpi_j) \mathcal{D}_{\alpha_j \beta_j}^4(\varpi_j)}
\end{aligned} \tag{12}$$

$$\chi_{j\alpha_p, \dots, \alpha_N}^4(\omega; \omega_p, \omega_q, \omega_r, \omega_s)$$

$$\square\square\square\square = \frac{N_v}{\varepsilon_0} \frac{2e(e/m_e)^4}{\mathcal{D}_{\alpha_j}^1(4\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^1(\omega_p + \omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^1(\omega_p + \omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^1(\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^1(\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^1(\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^1(\omega_p)} \quad (13)$$

$$\square\square\square\square = \frac{N_v}{\varepsilon_0} \frac{2e(e/m_e)^4}{\mathcal{D}_{\alpha_j}^1(4\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^2(2\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j}^4(\omega_p)}$$

wobei dies einer Kombination beider Systeme entspricht:

$$\left. \begin{aligned} \chi_j^{(2)}(2\omega_p) &= \frac{N_v}{\varepsilon_0} \frac{2e(e/m_e)^2}{\underbrace{D(2\omega_p)D^2(\omega_p)}_{\rightarrow D^2(2\omega)D(\omega)}} \\ \chi_j^{(4)}(4\omega_p) &= \frac{N_v}{\varepsilon_0} \frac{2e(e/m_e)^4}{D(4\omega_p)D^4(\omega_p)} \end{aligned} \right\} = \frac{\varepsilon_0^{-1} N_v}{\mathcal{D}_{\alpha_j\beta_j}^1(4\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j\beta_j}^1(\omega_p + \omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j\beta_j}^1(\omega_p + \omega_p)} \quad (14)$$

$$\times \frac{2e(e/m_e)^4}{\mathcal{D}_{\alpha_j\beta_j}^1(\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j\beta_j}^1(\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j\beta_j}^1(\omega_p) \mathcal{D}_{\alpha_j\beta_j}^1(\omega_p)}$$

6. Literatur:

[SYR84] Shen, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics*; Wiley: New York, 1984.

[Boyd] Boyd, R. W. *Nonlinear Optics*, 2nd ed.; Elsevier: Amsterdam, The Netherlands, 2003.]

[PFTV92] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, und W. T. Vetterling, *Numerical Recipes in C*, 2nd ed., Press Syndicate of the University of Cambridge, 1992.

Kombination von Theorie und Praxis: Zum einen werden die numerischen Algorithmen vorgestellt und zum anderen C- oder Fortran-Programme mitgegeben, die diese Algorithmen implementieren.

[BSMM08] I. N. Bronstein, 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] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik*, Bd.I: Mechanik, 14., korrigierte Auflage, Akademie-Verlag, Berlin, (2007)

[LL09]

L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik*,
Bd.II: Klassische Feldtheorie, 12. Auflage, Akademie-Verlag, Berlin,
(2009)