hat (A_4 schwach ortsabhängig), so ist die formale Behandlung ähnlich wie in Abschnitt 1.2.1 (" *Vierwellenwechselwirkung*"). Insbesondere treten PM–Bedingungen auf. Beispielsweise führt der Term

$$P^{(3)} \sim A_1 A_2 A_3 e^{[(\vec{k}_1+\vec{k}_2+\vec{k}_3)\vec{r}-(\omega_1+\omega_2+\omega_3)t]}$$

auf die Erzeugung der Frequenz

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$$

mit der Phasenanpassungsbedingung

$$\vec{k}_4 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_3.$$

Als Spezialfall ergibt sich für $E_1 = E_2 = E_3$

$$\omega_4 = 3\omega_1$$

mit der Phasenanpassungsbedingung

$$\vec{k}_4 = 3 \cdot \vec{k}_1.$$

Demgegenüber führt der Term

$$P^{(3)} \sim A_1 A_2 A_3^* e^{i[(\vec{k}_1+\vec{k}_2-\vec{k}_3)\vec{r}-(\omega_1+\omega_2-\omega_3)t]}$$

auf

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$$

mit der Bedingung

$$\vec{k}_4 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3.$$

Ist jetzt $\vec{E}_2(\vec{r},t) = \vec{E}_3(\vec{r},t)$, so geht die Vierwellenwechselwirkung in eine *Zweiwellenwechselwirkung* über, denn offenbar ist mit $\omega_2 = \omega_3$ und $\vec{k}_2 = \vec{k}_3$:

$$\omega_4 = \omega_1, \; \vec{k}_4 = \vec{k}_1.$$

Es tritt also gar keine neue Welle auf; vielmehr wird die Welle 1 durch die Welle 2 nichtlinear modifiziert. Noch spezieller ist der Prozeß, sofern

$$\vec{E}_1 = \vec{E}_2 = \vec{E}_3.$$

Auch in diesem Fall ergibt sich natürlich

$$\omega_4 = \omega_1; \; \vec{k}_4 = \vec{k}_1.$$

Die Welle beeinflußt sich selbst nichtlinear. Bei den zuletzt genannten Prozessen ist die PM–Bedingung automatisch erfüllt — das bedeutet, daß wir gar keine PM–Bedingung bemerken.
In dem zuvor betrachteten Fall hat die nichtlineare Polarisation die Form

$$P^{(3)} \sim A_1 \cdot |A_1|^2 e^{i(\vec{k}_1\vec{r}-\omega_1 t)}$$

und ist damit proportional zur Intensität I. Die Gesamtpolarisation läßt sich daher in der Form

$$P = \varepsilon_0[\chi^{(1)} + 2n_2 I] \cdot E$$

schreiben; dabei wird n_2 durch die nichtlineare Koppelkonstante bestimmt. Der Brechungsindex

$$n_0 = \sqrt{\varepsilon} = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} \approx 1 + \chi^{(1)}/2 \qquad (|\chi^{(1)}| \ll 1)$$

der linearen Optik ist daher zu ersetzen durch

$$n_{nichtlinear} = \sqrt{1 + \chi^{(1)} + 2n_2 I} \approx n_0 + n_2 \cdot I. \tag{8}$$

Wenn keine weiteren nichtlinearen Prozesse vorhanden sind, so bleibt immer noch, dass bei großen Intensitäten eines Lichtstrahls der Brechungsindex durch Gl. (8) zu beschreiben ist. Man sagt dann, es liege ein "*Kerrmedium*" vor. Es wird sich zeigen, dass $\chi^{(2)}$ in isotropen Medien verschwindet, während in allen Medien $\chi^{(3)} \neq 0$ gilt. Eine Substanz wie Glas ist daher für monochromatisches Licht ein Kerrmedium.

Ein interessanter Prozeß entsteht, wenn

$$\vec{E}_1(\vec{r}, t) = \vec{E}_2(\vec{r}, t).$$

In diesem Fall wird

$$\omega_4 = 2\omega_1 - \omega_3$$

mit der Bedingung

$$\vec{k}_4 = 2\vec{k}_1 - \vec{k}_3.$$

Häufig besitzt nun $|\chi^{(3)}|$ eine ausgeprägte Resonanz, wenn die "Ramanresonanzbedingung"[6]

$$\omega_1 - \omega_3 = \omega_{vib}$$

erfüllt ist. Dabei bezeichnet ω_{vib} die Frequenz einer "ramanaktiven" inneren Schwingung des materiellen Systemes. (Beim Ramaneffekt würde bei Einstrahlung mit der Frequenz ω_1 die Frequenz

$$\omega_3 = \omega_1 - \omega_{vib},$$

die sogen. "Stokes–Frequenz" im Spektrum des gestreuten Lichtes auftreten.) Werden also ein starker Pumpstrahl[7] mit der Frequenz ω_p und ein schwacher Teststrahl E_s mit der Stokesfrequenz

$$\omega_s = \omega_p - \omega_{vib},$$

eingestrahlt, so ergibt sich durch den gerade diskutierten Prozeß

$$\omega_4 = 2\omega_p - \omega_s = \omega_p + \omega_{vib}.$$

[6] Die Herkunft der Resonanz wird in Kap. 3 behandelt.

[7] Der Pumpstrahl sollte möglichst stark sein, da er den Prozeß im Gegensatz zum Teststrahl quadratisch beeinflußt.

Diese Frequenz heißt beim Ramaneffekt "Antistokesfrequenz". Der ramanresonante Prozeß der NLO wird als "Coherent Antistokes Raman Scattering" (CARS) bezeichnet ("Kohärente" Ramanstreuung im Gegensatz zur "spontanen" Ramanstreuung der linearen Optik). Die Richtung der Emission wird durch die PM–Bedingung

$$\vec{k}_{CARS} = 2\vec{k}_p - \vec{k}_s$$

festgelegt. Die Ramanresonanz ist spezifisch für einzelne Substanzen und kann deshalb zum Nachweis der Substanzen benutzt werden. Der Nachweis ist empfindlich, da die nachzuweisende Strahlung eine andere Frequenz hat ($\omega_{AS} = \omega_p + \omega_{vib}$) als die benutzten Laser ($\omega_p, \omega_s = \omega_p - \omega_{vib}$) und da die Emission in eine andere Richtung als $\vec{k}_p$ oder $\vec{k}_s$ erfolgt. Zu beachten ist, daß die *Intensität* der neuen Welle proportional ist zu $|\chi^{(3)}|^2$. Andererseits ist $|\chi^{(3)}|$ proportional zur Konzentration der gesuchten Spezies. Damit ist das CARS–Signal im allgemeinen nicht proportional zur Konzentration.

Zum CARS–Verfahren gibt es viele Varianten. Wir werden in Kapitel 3 noch darauf zurückkommen.

Phasenkonjugierte Reflexion:
Im Fall

$$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega_4 = \omega$$

spricht man von *entarteter Vierwellenwechselwirkung*. Die Polarisationskomponente

$$A_1 A_2 A_3^* e^{[(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3)\vec{r} - \omega t]}$$

führt insbesondere im Fall

$$\vec{k}_1 = -\vec{k}_2$$

zu einem interessanten Ergebnis (vgl. Abb. 8). Es wird nämlich die PM–Bedingung der Vierwellenwechselwirkung erfüllt, sobald

$$\vec{k}_4 = -\vec{k}_3.$$

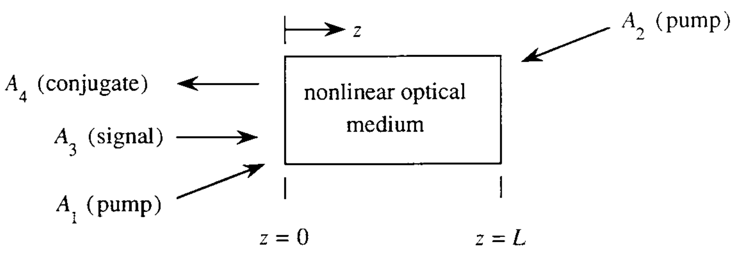

Abbildung 8: Geometrie der Phasenkonjugation bei der entarteten Vierwellen–Wechselwirkung

Es tritt also scheinbar eine *Reflexion* der Welle 3 auf. Wenn $|A_1|$ und $|A_2|$ hinreichend groß sind, kann durchaus gelten:

$$|A_4| > |A_3|,$$

d. h. der "Reflexionsfaktor" $|A_4|^2/|A_3|^2$ kann *größer als 1* sein!

Außerdem gilt

$$A_4 \sim A_3^*.$$

Ist speziell die Welle E_3 räumlich phasenmoduliert,

$$A_3 = |A_3| e^{i\varphi(\vec{r}_\perp)}$$

(ist $\vec{r}_\perp$ ein Vektor, der auf $\vec{k}_3$ senkrecht steht) — das ist die wichtigste Möglichkeit, räumliche Information zu tragen —, so wird

$$A_4 \sim e^{-i\varphi(\vec{r}_\perp)}.$$

Es tritt also eine "phasenkonjugierte Reflexion" auf, im Gegensatz zur gewöhnlichen Reflexion, bei der sich nur der k–Vektor, aber nicht die Phase ändert.[8] "Phasenkonjugierte Spiegel" finden u. a. als Endspiegel in Laserresonatoren eine wichtige Anwendung. Werden im Laser durch optische Defekte Phasenstörungen induziert, so können diese kompensiert werden, wenn eine Phasenkonjugation durchgeführt wird und dann das imperfekte Medium noch einmal durchlaufen wird (vgl. Abb. 9). Schließlich sei noch erwähnt, daß ein enger Zusammenhang zwischen der Phasenkonjugation und der Holographie besteht ("Echtzeitholographie").

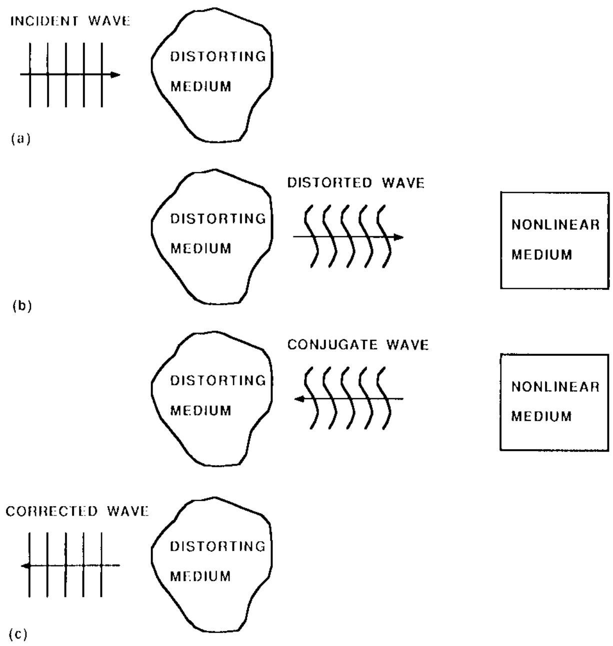

Abbildung 9: Wirkung der Kombination eines optisch inhomogenen Mediums und eines Phasenkonjugators.

[8]Die intensiven Wellen E_1 und E_2 werden als "Pumpwellen" bezeichnet, E_3 als "Signalwelle".