

Aufbau eines Experiments zum Nachweis des nichtlinearen
Faradayeffekts und der nichtlinearen optischen Aktivität

DIPLOMARBEIT

FRIEDRICH-SCHILLER-UNIVERSITÄT JENA

PHYSIKALISCH-ASTRONOMISCHE
FAKULTÄT



eingereicht von: Bodo Schmidt
geboren am: 3. April 1977 in Naumburg/S.

Jena, den 22. Juni 2000

1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. R. Sauerbrey

2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. L. Wenke

Tag der Verleihung des Diploms:



The World little knows how many thoughts and theories
which have passed through the mind of a scientific investigator
and have been crushed in silence and secrecy of his own criticism.

Michael Faraday (1791-1867)

Einführung

Mit der Entdeckung des Lasers durch *Theodore Maiman* [1] brach ein neues Kapitel der Optik an. Zeitgleich dazu begannen Arbeiten auf dem Gebiet der nichtlinearen Optik. Im Jahr 1961 entdeckten *Franken et. al.* [2] die Erzeugung der zweiten Harmonischen mit einem gepulsten Rubin-Laser bei einer Grundwellenlänge von $\lambda = 694,2$ nm, einer Pulsenergie von 3 J und einer Pulsdauer von 1 ms. Die Erzeugung von höheren Harmonischen von elektromagnetischen Wellen niedriger Frequenzen war bereits bekannt. Für den optischen Bereich standen aber bis dahin keine ausreichend intensiven Lichtquellen zur Verfügung. Erst mit der Entwicklung des Lasers und der damit verbundenen hohen Intensität konnte man in den Bereich der optischen Nichtlinearitäten vorstoßen. Zahlreiche Arbeiten zu nichtlinearen Phänomenen folgten [3, 4, 5, 6]. Im Laufe dieser Entwicklung war man bestrebt, die Lichtintensität zu erhöhen. Dies erreicht man zum Beispiel mit der Erhöhung der Energie des Laserpulses. Dabei können aber thermische Effekte auftreten. Eine elegantere Möglichkeit ist die zeitliche Verkürzung des Laserpulses. Wird die Pulsenergie in einer kürzeren Zeit abgegeben, steigt die Leistung und damit die Lichtintensität. Die Zeitskala, die technisch beherrschbar ist, spielt also eine große Rolle.

An folgendem Beispiel soll die Bedeutung einer hohen Zeitauflösung erläutert werden. Die Zeitauflösung der menschlichen Wahrnehmung liegt im Bereich von 40 ms. Unterhalb dieser Zeitskala konnten lange Zeit keine Messungen durchgeführt werden.

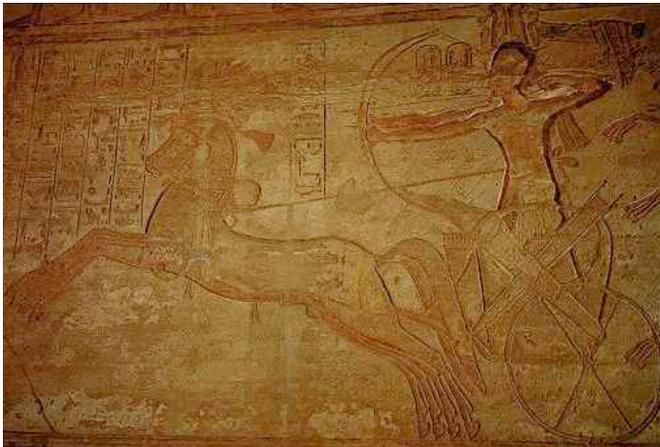


Abbildung 1: Pharaon Ramses II. auf einem Tempelrelief von Abu Simbel [7]



Abbildung 2: Prinz Baltasar Carlos Equestrian von Spanien auf einem Gemälde von Diego Velázquez [8]

Abbildung 1 zeigt den ägyptischen Pharaon *Ramses II.* auf einem Relief im Tempel von Abu Simbel (ca. 1250 v. Chr.). In Abbildung 2 ist ein Gemälde (1634-1635) des spanischen Malers *Diego Velázquez* mit *Prinz Baltasar Carlos Equestrian von Spanien* zu sehen. Die Werke zeigen Pferde in einer „Galoppstellung“. Beide Künstler konnten die zeitliche Bewegung eines Pferdes nicht auflösen und so ist die Darstellung der Pferde ungenau, denn diese Schrittstellung kommt beim Galopp nicht vor. Der Gouverneur

von Kalifornien *Leland Stanford* beauftragte *Eadweard Muybridge*, festzustellen, ob ein galoppierendes Pferd für einen kurzen Moment alle 4 Beine in der Luft hat. Der Nachweis gelang ihm im Jahr 1878, als er den Bewegungsablauf eines galoppierenden Pferdes mit einer Zeitauflösung von ca. 2 ms aufzeichnete (siehe Abbildung 3).

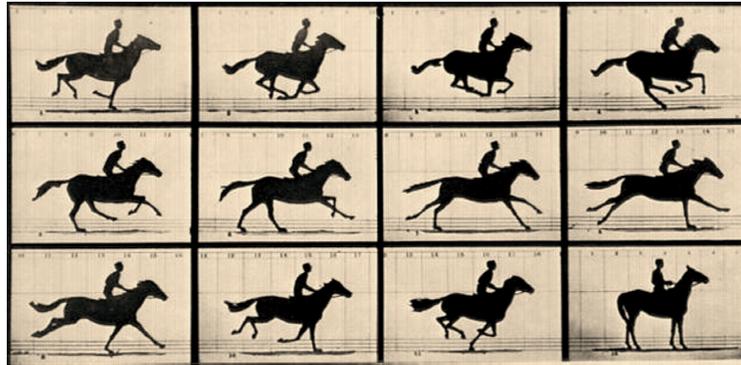


Abbildung 3: „Sallie Gardner at a gallop.“ Aufgenommen von Eadweard Muybridge in Palo Alto (Kalifornien) im Jahr 1878. [9]

Die Zeitskalen, in die man vordringen konnte, wurden immer kürzer. Die „Streak-Technik“, die Muybridge benutzte, wurde weiter verbessert, und man erreichte eine maximale Zeitauflösung von ca. 10^{-8} Sekunden. Erst durch die Entwicklung der Pulslaser und Anwendung von Q-Switch-Techniken und Mode-Locking gelang es, die Zeitauflösung auf 10^{-14} Sekunden zu steigern. Der kürzeste Laserpuls im optischen Bereich hat eine Pulsdauer von 4,5 fs. Zur Zeit scheint es sogar möglich, Pulse von ca. 100 Attosekunden Dauer zu erzeugen. Mit der Verkürzung der Laserpulse konnten immer höhere Spitzenleistungen erreicht werden. Durch Anwendung der CPA (**chirped pulse amplification**) ist man inzwischen in der Lage, Laser zu bauen, die Spitzenleistungen von mehreren Terawatt besitzen. Mehrere Projekte beschäftigen sich momentan damit, Petawatt-Laser zu bauen. Die Lichtintensitäten bei Kurzpulslasern sind hoch genug, um nichtlineare Effekte zu beobachten – in diesem Bereich wirken sie sich sogar oft als störend aus (Selbstphasenmodulation, Selbstfokussierung).

Die Polarisation einer elektromagnetischen Welle spielt bei vielen Prozessen eine große Rolle. Erhöht man die Intensitäten der Laserfelder, muß man auch nichtlineare Effekte beachten, die den Polarisationszustand beeinflussen. In vielen Lasern werden zum Beispiel Faraday-Isolatoren eingesetzt, um Rückreflexe zu vermeiden – Quarz-Plättchen dienen dazu, die Polarisationssebene zu drehen. Ein tieferes Verständnis der nichtlinearen Polarisationsdrehungen ist wichtig. In dieser Arbeit wird der nichtlineare Faradayeffekt und die nichtlineare optische Aktivität untersucht. Der Terminus nichtlinear bezieht sich auf nichtlineare Prozesse 3. Ordnung, die durch das elektrische Feld des einfallenden Laserlichts erzeugt werden. Es existieren auch Untersuchungen zu nichtlinearen Prozessen 2. Ordnung [10]. Sie sollen aber nicht Gegenstand dieser Arbeit sein. Für die experimentellen Arbeiten wird ein Ti-Sa Lasersystem benutzt, das in der Lage ist, Pulse mit einer Spitzenintensität von einigen Gigawatt pro cm^2 zu erzeugen. Die optische Aktivität wird an kristallinem Quarz untersucht, der Faradayeffekt an einem kommerziellen Faradayrotator. Eine der ersten theoretischen Arbeiten zur nichtlinearen optischen Aktivität stammt von *Akhmanov* und *Zharikov* [11]. Die Autoren gaben eine allgemeine Materialgleichung für gyrotrope Medien an.

$$D_i = \varepsilon_{ij} E_j + \gamma_{ijk} \frac{\partial E_j}{\partial x_k} + \chi_{ijk} E_j E_k + \chi'_{ijkl} E_j \frac{\partial E_k}{\partial x_l} + \theta_{ijkl} E_j E_k E_l + \Gamma_{ijklm} E_j E_k \frac{\partial E_l}{\partial x_m} \quad (1)$$

Den nichtlinearen Beitrag schrieben sie dem letzten Term mit der Konstanten Γ_{ijklm} zu. Die Bestimmung dieser Tensorelemente war das Ziel der darauf folgenden Experimente. Unerwünschte Effekte waren zusätzliche Drehungen, die durch thermische Prozesse induziert wurden. Diese Prozesse waren die

Folge der hohen Pulsenergien der damals verfügbaren Laser [12]. Bei der Untersuchung der Selbstfokussierung von Argon-Laser Strahlung in $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ wurden sowohl die nichtlineare optische Aktivität als auch der nichtlineare Faradayeffekt beobachtet. Der zusätzliche Drehwinkel ist in der folgenden Tabelle in Abhängigkeit von der Fluenz angegeben.

	$F = 80 \text{ W/cm}^2$	$F = 2000 \text{ W/cm}^2$	$F = 4000 \text{ W/cm}^2$
Optische Aktivität	$\varphi = 51^\circ 45'$	$\varphi = 51^\circ 24'$ $\Delta\varphi = -21'$	$\varphi = 50^\circ 54'$ $\Delta\varphi = -51'$
Faradayeffekt	$\varphi = 18^\circ 48'$	$\varphi = 20^\circ$ $\Delta\varphi = 1^\circ 12'$	$\varphi = 21^\circ$ $\Delta\varphi = 2^\circ 12'$

Allerdings betrug die Dauerleistung des benutzten Lasers bei maximaler Fluenz 1 Watt, so daß der dort gemessene Effekt mit Sicherheit thermischen Ursprungs ist. Andere Untersuchungen wurden an LiIO_3 durchgeführt [13]. Die Angabe der zusätzlichen Drehung erfolgt durch eine Konstante α^* . Den zusätzlichen Winkel α kann man dann mittels

$$\alpha = \alpha^* LI \quad (2)$$

berechnen. L ist die Wechselwirkungslänge und I die Intensität des Laserpulses. Der ermittelte Wert für LiIO_3 bei $\lambda = 532 \text{ nm}$ beträgt

$$\alpha^*(\text{LiIO}_3) = (1 \pm 0,6) \cdot 10^{-11} \text{ deg} \cdot \text{cm} \cdot \text{W}^{-1}. \quad (3)$$

Die einzige bekannte Arbeit über Untersuchungen an Quarz wurde von *Gorban et. al.* veröffentlicht [14]. Der spezifische zusätzliche Drehwinkel bei $\lambda = 694,3 \text{ nm}$ beträgt

$$\alpha^*(\text{Quarz}) = (1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-8} \text{ deg} \cdot \text{cm} \cdot \text{W}^{-1}. \quad (4)$$

Thermische Effekte konnten nach den Angaben der Autoren ausgeschlossen werden. Außerdem stellten sie fest, daß das Vorzeichen der zusätzlichen Drehung gegenläufig zum Vorzeichen der linearen Drehung und der thermischen Effekte war. Bei der Messung der nichtlinearen optischen Aktivität, muß darauf geachtet werden, thermische Effekte möglichst klein zu halten. Eine Arbeit zur thermischen nichtlinearen optischen Aktivität in BSO wurde von *Zheludev et. al.* veröffentlicht [15]. Die Untersuchungen wurden mit einem cw-Laser durchgeführt. Der nichtlineare Drehwinkel betrug bei einer Laserleistung von 200 mW ca. 0,3 Grad. Ultrakurze Laserpulse erreichen hohe Intensitäten ($50 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$) bei verhältnismäßig kleinen Pulsenergien ($<1 \text{ mJ}$). Mit diesen Lasersystemen sollte es möglich sein, die schnellen elektronischen Prozesse der nichtlinearen Effekte zu messen.

Der nichtlineare Faradayeffekt wurde vor allem in resonanter Umgebung gemessen. Auch hier kann der Begriff nichtlinear für verschiedene Effekte, wie zum Beispiel hohe Lichtintensitäten oder hohe Magnetfelder, stehen. Die ersten Messungen stammen von *Vlasov und Zaitsev* [12] an $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (siehe oben) sowie von *Bairamov et. al.* [16] an $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$.

	$F = 20 \text{ W/cm}^2$	$F = 750 \text{ W/cm}^2$	$F = 1000 \text{ W/cm}^2$
Optische Aktivität	$\varphi = 51^\circ 50'$	$\varphi = 51^\circ 41'$ $\Delta\varphi = -9'$	$\varphi = 51^\circ 35'$ $\Delta\varphi = -15'$
Faradayeffekt	$\varphi = 13^\circ$	$\varphi = 13^\circ 6'$ $\Delta\varphi = 6'$	$\varphi = 13^\circ 15'$ $\Delta\varphi = 15'$

Diese Dauerleistung des Lasers betrug aber ebenfalls 1 Watt. Somit scheint dieser Effekt auch thermischen Ursprungs zu sein. Eine der ersten ausführlichen theoretischen Arbeiten zum nichtlinearen Faradayeffekt stammt von *Yu und Osborn* [17]. Die Autoren gaben eine grobe Abschätzung des zu erwartenden Effekts an. Für $I = 50 \text{ GW} \cdot \text{cm}^{-2}$ geben Sie einen Drehwinkel von

$$\alpha \approx 4,12 \cdot 10^{-4} a_0^2 \text{ rad} \quad (5)$$

an. Dabei ist a_0 der effektive Ionenradius in Å . Die nachfolgenden experimentellen Arbeiten beschäftigen sich ausschließlich mit resonanten Übergängen [18, 19, 20, 21, 22, 23, 24]. Nichtlineare Untersuchungen

im nichtresonanten Bereich sind bis jetzt nicht bekannt. Die Arbeit im nichtresonanten Gebiet hätte außerdem den Vorteil, daß die theoretischen Herleitungen klassisch durchgeführt werden können. Aus diesen Gründen wurde für diese Arbeit ein nichtresonanter Wellenlängenbereich gewählt (um 800 nm). Die Ergebnisse der Experimente sind nicht von thermischen Effekte dominiert.

Im ersten Kapitel wird auf die Grundlagen ultrakurzer Laserpulse eingegangen. Im darauf folgenden Kapitel werden die Modelle für den linearen und nichtlinearen Faradayeffekt bzw. für die optische Aktivität vorgestellt. Anschließend werden der experimentelle Aufbau erläutert und die Ergebnisse dargestellt. Zum Schluß werden die Resultate interpretiert.

Inhaltsverzeichnis

1	Grundlagen ultrakurzer Laser	1
1.1	Maxwell-Gleichungen	1
1.2	Mathematische Beschreibung	2
1.3	Modenkopplung	4
1.4	Propagation von Laserpulsen	5
1.5	Drehungen der Polarisationssebene	8
2	Faradayeffekt	10
2.1	Kerreffekt	10
2.2	Linearer Faradayeffekt	11
2.3	Nichtlinearer Faradayeffekt	13
2.3.1	Nichtlinearität als Störung	13
2.3.2	Magnetfeld als Störung	16
2.3.3	Kriterium für eine zusätzliche Drehung	17
3	Optische Aktivität	20
3.1	Historisches	20
3.2	Optische Aktivität im Quarz	21
3.2.1	Gitterstruktur	21
3.2.2	Das Helix-Modell beim Quarz	21
3.2.3	Theorie der linearen optischen Aktivität	24
3.3	Nichtlineare optische Aktivität	30
4	Experimente	33
4.1	Lasersystem	33
4.2	Rotationsdispersion	34
4.3	Aufbau des Experiments	39
4.4	Darstellung der Spektren	41
4.5	Ergebnisse – Faraday-Rotator	42
4.6	Ergebnisse – Quarz-Kristalle	42
5	Diskussion	51
5.1	Vergleich mit theoretischen Voraussagen	51
5.2	Konkurrenzeffekte	52
5.2.1	Thermische Effekte	52
5.2.2	Anisotropie	53
5.2.3	Kreuzphasenmodulation (XPM)	53
5.2.4	Induzierte Anisotropie	54
5.2.5	Zusätzliche nichtlineare Effekte	55

6 Simulationen	57
6.1 Darstellung des elektrischen Feldes	57
6.2 Die Split-Step-Methode	58
6.3 Nichtlinearer Faradayeffekt	59
6.4 Nichtlineare optische Aktivität	63
7 Ausblick	69

Kapitel 1

Grundlagen ultrakurzer Laser

1.1 Maxwell-Gleichungen

Die Grundlage zur Beschreibung aller optischen Phänomene sind die Maxwell-Gleichungen. Sie stellen ein gekoppeltes Differentialgleichungssystem dar, das die elektrischen und magnetischen Felder miteinander verknüpft. Die allgemeine Form der differentiellen Maxwell-Gleichungen lautet

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 & \vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= \varrho \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} & \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j}.\end{aligned}\quad (1.1)$$

Die Materialgleichungen verknüpfen die dielektrische Verschiebung mit der elektrischen Feldstärke sowie die magnetische Induktion mit der magnetischen Feldstärke. Für ein homogenes und isotropes Medium mit linearer Response haben sie folgende Form (diese Gleichung gilt strenggenommen nur im Frequenzraum)

$$\vec{D} = \varepsilon_r \varepsilon_0 \vec{E} \qquad \vec{B} = \mu_r \mu_0 \vec{H}.\quad (1.2)$$

Die Stromdichte ist der elektrischen Feldstärke proportional.

$$\vec{j} = \sigma \vec{E} \quad (1.3)$$

Die Maxwell-Gleichungen vereinfachen sich, falls man Dielektrika ohne freie Ladungsträger und ohne Ströme betrachtet, wie folgt:

$$\begin{aligned}\vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 & \vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= 0 \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} & \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}.\end{aligned}\quad (1.4)$$

Aus diesen Maxwell-Gleichungen lassen sich die allgemeinen Wellengleichungen für elektromagnetische Wellen herleiten.

$$\Delta \vec{E} = \mu_0 \mu_r \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} \qquad \Delta \vec{H} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{\partial^2 \vec{B}}{\partial t^2} \quad (1.5)$$

Für lineare Medien vereinfachen sich diese Gleichungen zu

$$\Delta \vec{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \qquad \Delta \vec{H} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial t^2} \qquad c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_r \varepsilon_0 \mu_r \mu_0}}.\quad (1.6)$$

Im Vakuum ist $\varepsilon_r = \mu_r = 1$, und die Phasengeschwindigkeit c geht in die Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 über. Die Lichtgeschwindigkeit in Materie und die Vakuumlichtgeschwindigkeit sind über den Brechungsindex miteinander verknüpft.

$$c = \frac{c_0}{n} \quad \Longleftrightarrow \quad n = \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \quad (1.7)$$

Eine Lösung der Wellengleichung sind ebene Wellen.

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}, t) &= \frac{1}{2} \left[\vec{E}_0 e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} + \vec{E}_0^* e^{-i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \right] \\ &= \Re(\vec{E}_0) \cos(\omega t - \vec{k}\vec{r} - \varphi) \end{aligned} \quad (1.8)$$

Der Phasenterm φ ist die Phase von \vec{E}_0 . Einsetzen dieser Lösung in die Wellengleichung liefert die Dispersionsrelation für den Wellenvektor

$$\vec{k}^2 = \frac{\omega^2}{c^2}. \quad (1.9)$$

Die Intensität einer elektromagnetischen Welle erhält man, wenn man den Poyntingvektor kennt. Unter Ausnutzung der Beziehung $\vec{H} = \sqrt{\varepsilon/\mu} (\vec{n} \times \vec{E})$, kann man ihn wie folgt aufschreiben:

$$\vec{S} = \vec{E} \times \vec{H} = \sqrt{\varepsilon/\mu} \cdot \vec{E} \times (\vec{n} \times \vec{E}) = \sqrt{\varepsilon/\mu} \vec{n} \vec{E}^2 = \varepsilon_0 \varepsilon_r c \vec{n} \vec{E}^2. \quad (1.10)$$

Die Oszillationen des elektrischen Feldes können nicht aufgelöst werden. Deshalb wird die Intensität als zeitliches Mittel des Poyntingvektors über eine Oszillation definiert.

$$I(t) = \frac{1}{T} \int_{t-\frac{T}{2}}^{t+\frac{T}{2}} |S(t')| dt' \quad (1.11)$$

Setzt man das elektrische Feld in der Form (1.8) mit zeitlich veränderlicher Amplitude ein, erhält man

$$I(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_r n c_0 \Re(\vec{E}_0(t))^2. \quad (1.12)$$

1.2 Mathematische Beschreibung

Eine elektromagnetische Welle läßt sich sowohl im Zeitbereich als auch im Frequenzbereich beschreiben. Beide Darstellungen sind äquivalent und beschreiben das elektrische Feld vollständig. Der Übergang zwischen beiden Domänen erfolgt mittels Fouriertransformation.

$$\vec{E}(\omega) = \mathcal{F}(\vec{E}(t)) = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(t) e^{-i\omega t} dt \quad (1.13)$$

$$\vec{E}(t) = \mathcal{F}^{-1}(\vec{E}(\omega)) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (1.14)$$

Dabei werden Größen im Frequenzraum mit einer Tilde gekennzeichnet. Das elektrische Feld eines Laserpulses ist reell. Die Fouriertransformation liefert Frequenzkomponenten im negativen ($\vec{E}^-(\omega)$) und positiven Frequenzbereich ($\vec{E}^+(\omega)$). Da negative Frequenzen unphysikalisch sind, zieht man es vor, nur mit positiven Frequenzen zu rechnen.

$$\vec{E}^\pm(\omega) = \begin{cases} \vec{E}(\omega) & \text{für } \pm\omega \geq 0 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (1.15)$$

Das elektrische Feld im Zeitbereich ist demnach gegeben durch

$$\vec{E}(t) = \mathcal{F}^{-1}(\vec{E}^+(\omega) + \vec{E}^-(\omega)) = 2 \Re \mathcal{F}^{-1}(\vec{E}^+(\omega)). \quad (1.16)$$

Die allgemeine Darstellung des elektrischen Feldes ergibt sich damit als:

$$\vec{E}^+(t) = \frac{1}{2} \vec{E}_0(t) e^{i\Phi(t)}. \quad (1.17)$$

Dabei ist $\vec{E}_0(t)$ die Amplitudenfunktion und $\Phi(t)$ die Phasenfunktion. Oszilliert das elektrische Feld mit einer Mittenfrequenz ω_L , führt man das Konzept der Trägerfrequenz ein und schreibt

$$\vec{E}^+(t) = \frac{1}{2} \vec{E}_0(t) e^{i\phi(t)} e^{i\omega_L t}. \quad (1.18)$$

Die momentane Frequenz ist die Ableitung der zeitlichen Phase $\Phi(t)$ nach der Zeit und damit gegeben durch

$$\omega(t) = \omega_L + \frac{d}{dt} \phi(t). \quad (1.19)$$

Falls die momentane Frequenz zeitlich variiert, besitzt der Puls einen Chirp – er ist frequenzmoduliert. Ein Beispiel für einen gechirpten Gaußpuls der Form

$$E(t) = \Re \left[e^{-\frac{t^2}{\tau^2}} e^{i\phi(t)} e^{i\omega_L t} \right] \quad (1.20)$$

ist in Abbildung 1.1 dargestellt.

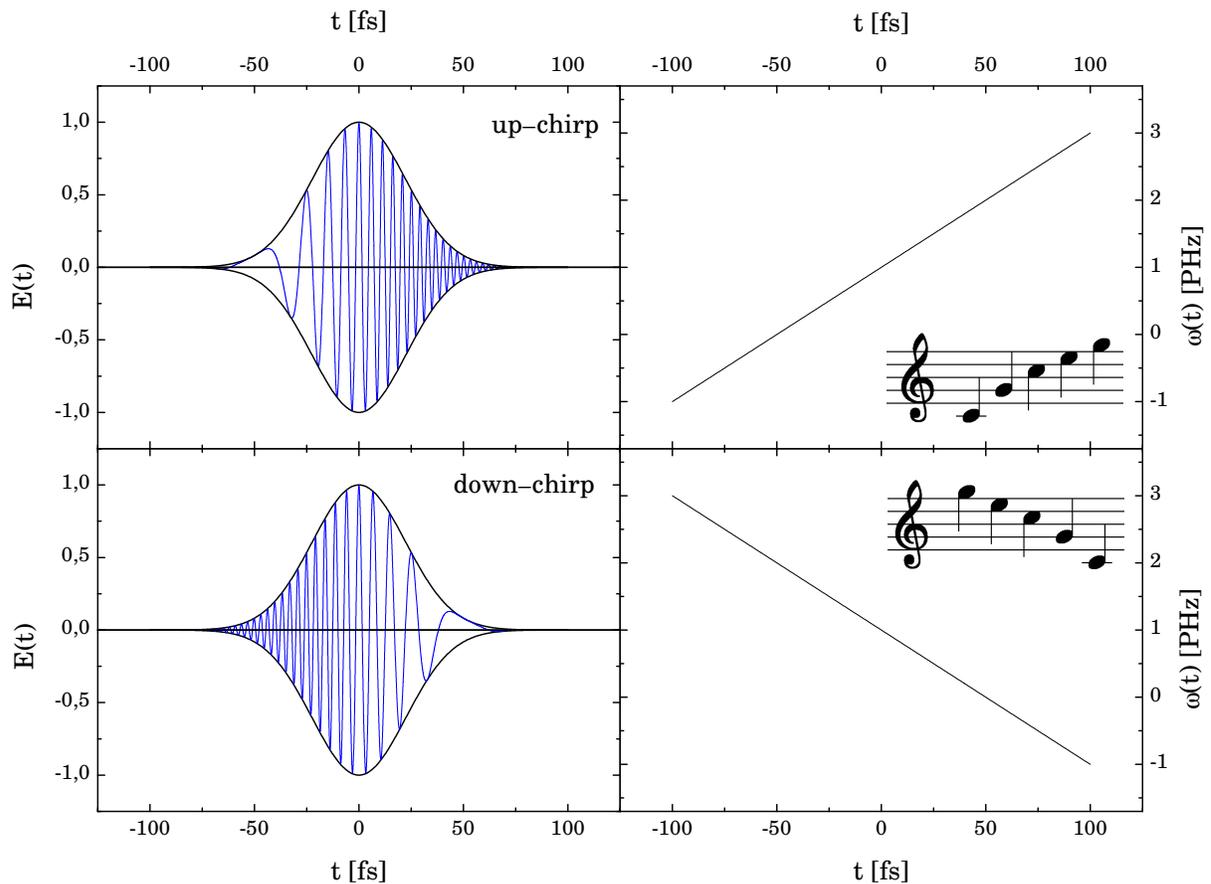


Abbildung 1.1: Gaußpuls mit Up- bzw. Down-Chirp und instantaner Frequenz entsprechend (1.20) ($\tau = 32$ fs, $\omega_L = 10^{15}$ Hz, $\phi(t) = \pm 0,01$ fs $^{-2} \cdot t^2$). Einen ähnlichen Frequenzverlauf, mit niedrigeren Frequenzen, kann man auch in musikalischen Darstellungen finden. Für beide Fälle ist ein ähnliches Beispiel in der temperierten Stimmung dargestellt.

1.3 Modenkopplung

Ein Laser besteht im wesentlichen aus 3 Komponenten, dem aktiven Medium, der Pumpquelle und dem Resonator (siehe Abbildung 1.2).

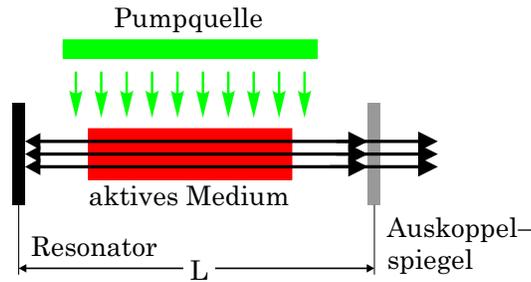


Abbildung 1.2: Resonator (mit hochreflektivem und teildurchlässigem Spiegel), aktives Medium und Pumpquelle bilden die Bestandteile eines Lasers. Die Länge des Resonators L ist für die Modenselektion ein wichtiger Parameter.

Die Pumpquelle liefert die nötige Energie, um das aktive Medium zu invertieren. Mit Hilfe des Resonators baut das aktive Medium seine Inversion durch stimulierte Emission ab. Die Resonatorgeometrie bestimmt die longitudinalen und transversalen Moden, die im Laser anschwingen können. Die longitudinalen Moden mit der Frequenz ν_m werden durch die Resonatorlänge L bestimmt.

$$\nu_m = m \frac{c}{2L} \tag{1.21}$$

Der aktive Laserübergang selbst bestimmt die Linienbreite der Emission. Im Resonator können nur Frequenzen anschwingen, die einerseits die Resonatorverluste kompensieren und andererseits mit den Resonatoreigenfrequenzen übereinstimmen (Abbildung 1.3).

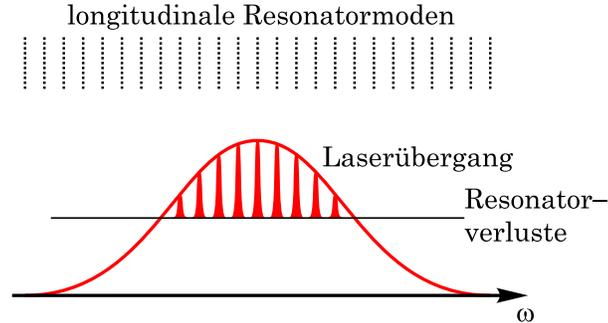


Abbildung 1.3: Nur Moden, die innerhalb des Verstärkungsprofils liegen und mit den Resonatormoden übereinstimmen, können anschwingen

Die Phasenlage zwischen den anschwingenden Moden ist normalerweise statistisch. Gelingt es, eine feste Phasenbeziehung der Form $\phi_m(t) = m \cdot \alpha$ einzustellen, hat das entstehende Feld folgende Form [25]

$$E(t) = E_0 \frac{\sin \left[\frac{2M+1}{2} (\Delta\omega t + \alpha) \right]}{\sin \left[\frac{1}{2} (\Delta\omega t + \alpha) \right]} \sin(\omega_0 t). \tag{1.22}$$

Dabei ist $\Delta\omega$ der Frequenzabstand der longitudinalen Moden. Das Ergebnis der Kopplung verschiedener Moden ist in Abbildung 1.4 zu sehen.

Mit zunehmender Anzahl von gekoppelten Moden erhöht sich die Intensität und die Pulsdauer nimmt ab. Im Ti-Sa Laser sind ca. 10^5 - 10^6 Moden gekoppelt. Damit erreicht man Pulsdauern im fs-Bereich. Die Modenkopplung wird durch das Kerr-Lens-Modelocking (KLM) realisiert. Das räumliche Strahlprofil im

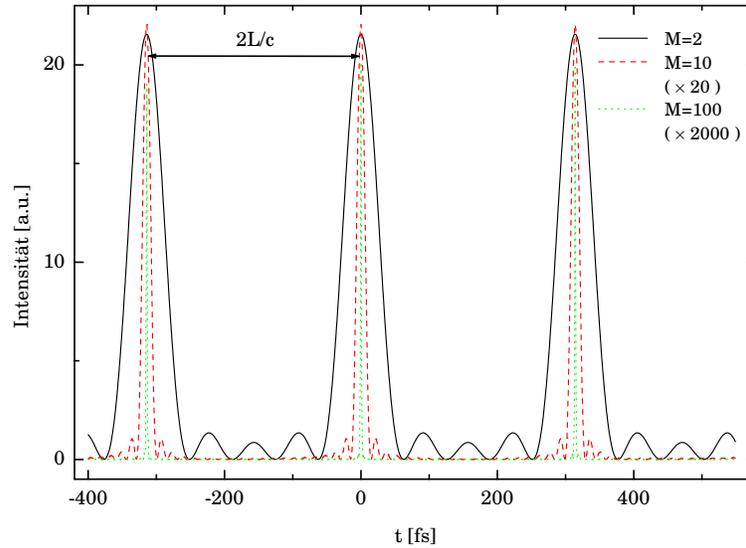


Abbildung 1.4: Die Anzahl der gekoppelten Moden (M) beeinflusst die Breite und die Spitzenintensität der Pulszüge. Die Intensität muß mit den angegebenen Faktoren skaliert werden.

Resonator soll gaußförmig verteilt sein (TEM₀₀-Mode) und im Ti-Sa Kristall den kleinsten Durchmesser besitzen. Der optische Kerr-Effekt ändert den Brechungsindex in Abhängigkeit von der Intensität des elektrischen Feldes entsprechend

$$n = n_0 + n_2 I. \quad (1.23)$$

Dabei ist n_0 der lineare Brechungsindex und n_2 der nichtlineare Brechungsindex. Bei genügend hohen Intensitäten tritt also im Kristall eine Brechungsindexverteilung auf, die der räumlichen Intensitätsverteilung des elektrischen Feldes proportional ist – der Kristall wirkt wie eine intensitätsabhängige Konvexlinse, da die optische Dicke in der Mitte des Strahlquerschnitts am größten ist. Stellt man an geeigneter Stelle eine Apertur in den Resonator, so ändert man die Güte derart, daß nur Laserpulse hoher Intensität eine ausreichende Verstärkung erfahren – die Modenkopplung ist realisiert.

1.4 Propagation von Laserpulsen

Die Propagation von Laserpulsen wird mit der Wellengleichung (1.5) beschrieben. Setzt man statt (1.2) die modifizierte Materialgleichung

$$\vec{D}(t, \vec{r}) = \varepsilon_0 \vec{E}(t, \vec{r}) + \vec{P}(\vec{E}(t, \vec{r})) \quad (1.24)$$

mit der induzierten Polarisation \vec{P} in die Wellengleichung ein, erhält man

$$\Delta \vec{E}(t, \vec{r}) - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(t, \vec{r}) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(t, \vec{r}). \quad (1.25)$$

Angenommen, als Lösung kommen ebene Wellen bzw. eine Superposition von ebenen Wellen in Frage, die sich in z -Richtung ausbreiten, dann hat das elektrische Feld folgende Form:

$$\vec{E}(t, z) = \vec{E}_0(t) e^{i(\omega_L t - k_z z)}. \quad (1.26)$$

Die Wellengleichung lautet somit

$$-k_z^2 \vec{E}(t, z) - \frac{1}{c_0^2} \left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}_0(t) + 2i\omega_L \frac{\partial}{\partial t} \vec{E}_0 - \omega_L^2 \vec{E}_0 \right) e^{i(\omega_L t - k_z z)} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(t, z). \quad (1.27)$$

Wenn die Einhüllende des elektrischen Feldes ein Gaußpuls der Form $\vec{E}_0(t) = \vec{E}_0 e^{-\frac{t^2}{\tau^2}}$ ist, kann man die zweifache Zeitableitung der elektrischen Feldstärke explizit angeben.

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \left(\underbrace{-\frac{2}{\tau^2}}_a + \underbrace{\frac{4t}{\tau^4}}_b - \underbrace{\frac{4i\omega_L t}{\tau^2}}_c - \underbrace{\omega_L^2}_c \right) \vec{E}_0(t) \quad (1.28)$$

Für einen Gaußpuls sind die Beträge der Parameter a, b und c in Abbildung 1.5 berechnet.

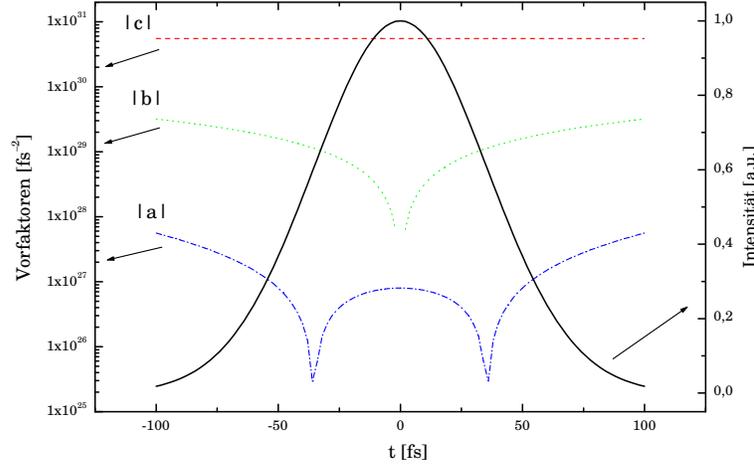


Abbildung 1.5: Gaußpuls und Konstanten der Wellengleichung für $\tau = 50$ fs und $\omega_L = 2,35 \cdot 10^{15}$ Hz. Die SVEA vernachlässigt die Einflüsse der Faktoren b und c gegenüber dem Faktor a .

Man erkennt, daß die Näherung

$$|a| \ll |b| \ll |c|, \quad (1.29)$$

die auch als SVEA (Slowly Varying Envelope Approximation) bezeichnet wird, gerechtfertigt ist. Die Wellengleichung reduziert sich damit auf die Form

$$\left(k_z^2 - \frac{\omega_L^2}{c_0^2} \right) \vec{E}(t, z) = -\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(t, z). \quad (1.30)$$

Um nichtlineare Effekte beschreiben zu können, entwickelt man die Abhängigkeit $\vec{P} = \vec{P}(\vec{E})$ in eine Potenzreihe. Dabei muß man beachten, daß die Abhängigkeit der induzierten Polarisation einen „Gedächtniseffekt“ beinhalten muß. Die Polarisation wird also von allen vorher wirkenden Feldstärken beeinflusst. Die vollständige Materialgleichung lautet demnach

$$\begin{aligned} P_i(t) &= \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t \sum_j \chi_{ij}(t-t') E_j(t') dt' \\ &+ \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^t \sum_{jk} \chi_{ijk}(t-t', t-t'') E_j(t') E_k(t'') dt' dt'' \\ &+ \varepsilon_0 \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^t \sum_{jkl} \chi_{ijkl}(t-t', t-t'', t-t''') E_j(t') E_k(t'') E_l(t''') dt' dt'' dt''' \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (1.31)$$

$\chi(t)$ heißt Suszeptibilitätstensor und beschreibt die Antwort des Mediums auf das elektrische Feld. Falls man $\chi(t) = 0$ für $t > 0$ setzt, lautet der lineare Anteil der zeitlichen Polarisation im Zeit- bzw.

Frequenzraum

$$P_i^L(t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_j \chi_{ij}(t-t') E_j(t') dt' \quad (1.32)$$

$$\tilde{P}_i^L(\omega) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_j \chi_{ij}(t-t') E_j(t') dt' e^{-i\omega t} dt. \quad (1.33)$$

Die zeitliche Polarisation ist eine Faltung der Funktionen $\chi_{ij}(t-t')$ und $E_j(t')$ im Zeitbereich. Die Fouriertransformierte einer Faltung im Zeitbereich ist aber nichts anderes als das Produkt der einzelnen Fouriertransformierten, das heißt

$$\tilde{P}_i^L(\omega) = \varepsilon_0 \sum_j \chi_{ij}(\omega) \tilde{E}_j(\omega). \quad (1.34)$$

Dabei ist $\chi_{ij}(\omega) = \mathcal{F}(\chi_{ij}(t))$ (bei χ wird auf die Tilde verzichtet). Im Frequenzbereich ist die lineare Polarisation also besonders einfach zu beschreiben.

Die nichtlineare Wechselwirkung wird am Beispiel eines Zwei-Photonen-Prozesses dargestellt (Abbildung 1.6).

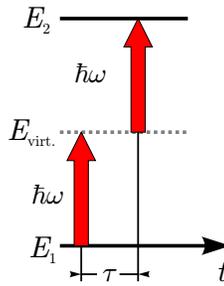


Abbildung 1.6: Die 2 Photonenabsorption in einem Zweiniveausystem

Das Zweiniveausystem hat die Energiezustände E_1 und E_2 , wobei $E_2 - E_1 = 2\hbar\omega$ gilt. Ein Photon der Energie $\hbar\omega$ wird absorbiert. Dabei muß es ein virtuelles Zwischenniveau mit der Energiedifferenz $\Delta E = E_{\text{virt.}} - E_1$ besetzen. Dies ist aufgrund der Heisenbergschen Unschärferelation möglich. Wegen

$$\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar \quad (1.35)$$

kann sich das Atom für kurze Zeit (Δt) im Zustand $E_{\text{virt.}}$ befinden.

$$\Delta t \approx \frac{1}{\omega} = \frac{\lambda}{2\pi c_0} \quad (1.36)$$

Im optischen Bereich entspricht dies einigen Zehntel Femtosekunden. Das bedeutet, nichtlineare Effekte sind für Laser mit Pulsdauern von ca. 50 fs quasi instantan. Damit reduzieren sich die „Gedächtniseffekte“ zu instantanen Effekten, und man kann annehmen

$$\chi_{ijk}(t-t', t-t'') = \chi_{ijk} \delta(t-t') \delta(t-t'') \quad (1.37)$$

$$\chi_{ijkl}(t-t', t-t'', t-t''') = \chi_{ijkl} \delta(t-t') \delta(t-t'') \delta(t-t''') \quad \text{u.s.w.} \quad (1.38)$$

Die nichtlinearen Polarisationseffekte kann man also instantan schreiben

$$P_i^{\text{NL}}(t) = \varepsilon_0 [\chi_{ij} E_j(t) + \chi_{ijk} E_j(t) E_k(t) + \chi_{ijkl} E_j(t) E_k(t) E_l(t) + \dots]. \quad (1.39)$$

Für die numerische Berechnung der Pulspropagation führen diese Betrachtungen zu zwei wichtigen Schlüssen.

- Die Berechnung linearer Propagationseffekte erfolgt im Frequenzraum.
- Die Berechnung nichtlinearer Propagationseffekte erfolgt im allgemeinen im Zeitbereich.

Die Lösung der Wellengleichung im Zeit- bzw. Frequenzraum lautet für einen Propagationsschritt Δz

$$\vec{E}(t, z + \Delta z) = \vec{E}(t, z)e^{-i\phi(t)} = \vec{E}(t, z)e^{-ik(t)\Delta z} \quad (1.40)$$

$$\vec{E}(\omega, z + \Delta z) = \vec{E}(\omega, z)e^{-i\phi(\omega)} = \vec{E}(\omega, z)e^{-ik(\omega)\Delta z}. \quad (1.41)$$

1.5 Drehungen der Polarisationssebene

In diesem Kapitel soll gezeigt werden, wie der Suszeptibilitätstensor $\vec{\chi}$ beschaffen sein muß, um eine Drehung der Polarisationssebene zu bewirken. Um die Behandlung zu vereinfachen, wird angenommen, daß das elektrische Feld sich in z -Richtung ausbreitet. Das heißt, man braucht nur die x und y -Komponenten zu betrachten. Es ist offensichtlich, daß $\vec{\chi}$ von Null verschiedene Nichtdiagonalelemente besitzen muß, damit ein Energietransfer zwischen den Polarisationskomponenten stattfindet. Da es in der xy -Ebene keine Richtungsabhängigkeit geben darf, muß $\chi_{xx} = \chi_{yy}$ gelten. Wegen der Energieerhaltung muß außerdem die Bedingung $|\chi_{xy}| = |\chi_{yx}|$ erfüllt sein. Geht man mit dem Ansatz

$$\vec{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} \\ -\chi_{12} & \chi_{11} \end{pmatrix} \quad (1.42)$$

in (1.30) ein, erhält man mit der allgemeinen Definition des elektrischen Feldes (1.8) für den Realteil der Wellengleichung

$$\left(k_z^2 - \frac{\omega_L^2}{c_0^2}\right) \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i(\omega_L t - k_z z)} = \frac{\omega_L^2}{2c_0^2} \begin{pmatrix} \chi_{11} E_{x0} + \chi_{12} E_{y0} \\ -\chi_{12} E_{x0} + \chi_{11} E_{y0} \end{pmatrix} e^{i(\omega_L t - k_z z)}. \quad (1.43)$$

Damit kann man für E_{x0} und E_{y0} ein Gleichungssystem aufstellen, das folgende Form hat:

$$\begin{aligned} \left(k_z^2 - \frac{\omega_L^2}{c_0^2}\right) E_{x0} &= \frac{\omega_L^2}{c_0^2} (\chi_{11} E_{x0} + \chi_{12} E_{y0}) \\ \left(k_z^2 - \frac{\omega_L^2}{c_0^2}\right) E_{y0} &= \frac{\omega_L^2}{c_0^2} (-\chi_{12} E_{x0} + \chi_{11} E_{y0}). \end{aligned}$$

Das Lösen dieses Gleichungssystems führt zu einer Eigenwertgleichung für die Wellenzahl k_z .

$$k_{z\odot/\ominus} = \pm \frac{\omega_L}{c_0} \sqrt{1 + \chi_{11} \pm i\chi_{12}} \quad (1.44)$$

Setzt man dieses Ergebnis wiederum in die Wellengleichung ein, erhält man eine Beziehung für die Eigenvektoren, die zirkular polarisiertem Licht entsprechen. Der Definition von [26] folgend, werden die beiden Zustände wie folgt bezeichnet:

$$\vec{E}_{\odot} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{i(\omega_L t - k_{z\odot} z)} + \text{c.c.} \quad \text{linkszirkular} \quad (1.45)$$

$$\vec{E}_{\ominus} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{i(\omega_L t - k_{z\ominus} z)} + \text{c.c.} \quad \text{rechtszirkular.} \quad (1.46)$$

Wegen der Beziehung

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} \\ -\chi_{12} & \chi_{11} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} \chi_{11} + i\chi_{12} & 0 \\ 0 & \chi_{11} + i\chi_{12} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} \chi_{11} & \chi_{12} \\ -\chi_{12} & \chi_{11} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} \chi_{11} - i\chi_{12} & 0 \\ 0 & \chi_{11} - i\chi_{12} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \end{aligned}$$

vereinfacht sich der Ausdruck für die Polarisation zu einem Produkt eines Skalars mit einem Vektor.

$$\vec{P}_{\circ/\circ} = \varepsilon_0 \vec{\chi} \vec{E}_{\circ/\circ} = \varepsilon_0 \chi_{\circ/\circ} \vec{E} \quad (1.47)$$

Den Brechungsindex erhält man über die Maxwellrelation.

$$\begin{aligned} n_{\circ/\circ} &= \sqrt{1 + \chi_{\circ/\circ}} = \sqrt{1 + \chi_{11} \pm i\chi_{12}} = \sqrt{1 + \chi_{11}} \cdot \sqrt{1 \pm \frac{i\chi_{12}}{1 + \chi_{11}}} \\ &\approx \underbrace{\sqrt{1 + \chi_{11}}}_{n_0} \left(1 \pm \frac{1}{2} \frac{i\chi_{12}}{1 + \chi_{11}} \right) \\ &= n_0 \pm \frac{i\chi_{12}}{2n_0} \end{aligned} \quad (1.48)$$

Dieser Brechungsindex wird nun in die Propagationsgleichung (1.41) eingesetzt. Die einfallende Welle sei in x -Richtung polarisiert. Nach Transmission durch ein Medium der Länge L hat die Welle die Form

$$\begin{aligned} \vec{E}(L) &= \frac{E_{x0}}{2\sqrt{2}} \left[\begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{i(\omega t - k_0 L)} + \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{i(\omega t - k_0 L)} \right] + \\ &\quad \frac{E_{x0}^*}{2\sqrt{2}} \left[\begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{-i(\omega t - k_0 L)} + \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{-i(\omega t - k_0 L)} \right] \\ &= \frac{E_{x0}}{2\sqrt{2}} e^{i(\omega t - k_0 L)} \left[\begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{-i\Delta k L} + \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{i\Delta k L} \right] + \\ &\quad \frac{E_{x0}^*}{2\sqrt{2}} e^{-i(\omega t - k_0 L)} \left[\begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{i\Delta k L} + \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{-i\Delta k L} \right] \\ &= \frac{E_{x0}}{\sqrt{2}} e^{i(\omega t - k_0 L)} \begin{pmatrix} \cos(\Delta k L) \\ \sin(\Delta k L) \end{pmatrix} + \frac{E_{x0}^*}{\sqrt{2}} e^{-i(\omega t - k_0 L)} \begin{pmatrix} \cos(-\Delta k L) \\ \sin(-\Delta k L) \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (1.49)$$

Der Drehwinkel der Polarisationssebene α lautet also:

$$\alpha = \Delta k L = \frac{\omega_L}{c_0} \Delta n L = \frac{\omega_L}{c_0} \frac{i\chi_{12}}{2n_0} L. \quad (1.50)$$

Um die Polarisationssebene von linear polarisiertem Licht zu drehen, muß der Suszeptibilitätstensor $\vec{\chi}$ folgende Eigenschaften erfüllen.

- Die Diagonalelemente müssen denselben Wert besitzen ($\chi_{xx} = \chi_{yy}$) und reell sein.
- Die Nichtdiagonalelemente müssen zueinander konjugiert komplex ($\chi_{xy} = \chi_{yx}^*$) und rein imaginär sein.

Der Drehwinkel hängt nur von den Nichtdiagonalelementen ab.

Kapitel 2

Faradayeffekt

In diesem Kapitel werden die Modelle für den Kerreffekt und den linearen bzw. nichtlinearen Faradayeffekt vorgestellt. Dabei geht es darum, die Suszeptibilität bzw. den Suszeptibilitätstensor auf der Basis einer mikroskopischen Theorie herzuleiten. Die dabei verwendeten Modelle lehnen sich stark an das Drude-Modell an. Die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilitäten erfolgt mittels Störungsrechnung. Die Herleitung des mikroskopischen Modells erfolgt unter der Annahme von monochromatischen Wellen. Damit vereinfacht sich die Herleitung erheblich. Außerdem soll die Theorie für den Fall nichtresonanter Anregung hergeleitet werden, das heißt, für das Verhältnis aus Anregungsfrequenz und Resonanzfrequenz soll stets $\frac{\omega_L}{\omega_0} \ll 1$ gelten.

2.1 Kerreffekt

In diesem Abschnitt wird ein nichtlinear gebundenes Elektron einer elektromagnetischen Welle ausgesetzt. Den Ausgangspunkt bildet die Lagrangefunktion \mathcal{L} , die als Differenz zwischen kinetischer Energie T und potentieller Energie U definiert ist.

$$\mathcal{L} = T - U \quad (2.1)$$

Das Potential des nichtlinear gebundenen Elektrons enthält den quadratischen Federterm und einen Term 4. Ordnung.

$$U = \frac{1}{2}k \left(x^2 + y^2 - \frac{K}{2}(x^2 + y^2)^2 \right) \quad (2.2)$$

Dabei ist k die Federkonstante und K die Kopplungskonstante für den nichtlinearen Anteil. Das elektromagnetische Feld liefert ebenfalls einen Beitrag zur Lagrangefunktion. Die kinetische Energie enthält einen zusätzlichen Term – das kinetische Potential. Wählt man die Strahlungseichung, kann man das elektrische Feld mit dem Vektorpotential $\vec{A}_{\vec{E}}$ wie folgt darstellen:

$$\vec{E} = -\frac{\partial \vec{A}_{\vec{E}}}{\partial t}. \quad (2.3)$$

Die Lagrangefunktion lautet also

$$\mathcal{L} = \frac{m}{2}(\dot{x}^2 + \dot{y}^2) + e \dot{\vec{r}} \cdot \vec{A}_{\vec{E}} - \frac{1}{2}k(x^2 + y^2) + \frac{1}{4}kK(x^2 + y^2)^2. \quad (2.4)$$

Geht man damit in die Lagrangegleichungen II. Art ein, erhält man mit $\frac{\partial \vec{A}_{\vec{E}}}{\partial t} = -\vec{E}$ und $\omega_0^2 = \frac{k}{m}$ die Bewegungsgleichungen

$$\ddot{x} + \omega_0^2 (x - K(x^2 + y^2)x) = \frac{e}{2m} [E_{x0}e^{i\omega_L t} + E_{x0}^*e^{-i\omega_L t}] \quad (2.5)$$

$$\ddot{y} + \omega_0^2 (y - K(x^2 + y^2)y) = \frac{e}{2m} [E_{y0}e^{i\omega_L t} + E_{y0}^*e^{-i\omega_L t}]. \quad (2.6)$$

Führt man nun eine Störungsrechnung nach dem kubischen Term durch, erhält man folgende Gleichungen in 0. bzw. 1. Ordnung Störungstheorie.

$$\lambda = 0 : \quad \ddot{x}^{(0)} + \omega_0^2 x^{(0)} = \frac{e}{2m} [E_{x0} e^{i\omega_L t} + E_{x0}^* e^{-i\omega_L t}] \quad (2.7)$$

$$\ddot{y}^{(0)} + \omega_0^2 y^{(0)} = \frac{e}{2m} [E_{y0} e^{i\omega_L t} + E_{y0}^* e^{-i\omega_L t}] \quad (2.8)$$

$$\lambda = 1 : \quad \ddot{x}^{(1)} + \omega_0^2 x^{(1)} = \omega_0^2 K \left[\left(x^{(0)} \right)^2 + \left(y^{(0)} \right)^2 \right] x^{(0)} \quad (2.9)$$

$$\ddot{y}^{(1)} + \omega_0^2 y^{(1)} = \omega_0^2 K \left[\left(x^{(0)} \right)^2 + \left(y^{(0)} \right)^2 \right] y^{(0)}. \quad (2.10)$$

Die Lösung für $\lambda = 0$ wird im Fourierraum durchgeführt, das heißt für $x^{(0)}$ bzw. $y^{(0)}$:

$$\begin{aligned} (\omega_0^2 - \omega^2) \begin{pmatrix} \tilde{x}^{(0)} \\ \tilde{y}^{(0)} \end{pmatrix} &= \frac{e}{2m} 2\pi \left[\begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} \delta(\omega - \omega_L) + \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} \delta(\omega + \omega_L) \right] \\ \begin{pmatrix} x^{(0)} \\ y^{(0)} \end{pmatrix} &= \frac{e}{2m\omega_P^2} \underbrace{\frac{\omega_P^2}{\omega_0^2 - \omega_L^2}}_{\chi_{11}^L} \left[\begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right]. \end{aligned} \quad (2.11)$$

Somit lauten $x^{(1)}$ bzw. $y^{(1)}$ unter Vernachlässigung der Terme, die mit $3\omega_L$ oszillieren

$$\begin{pmatrix} x^{(1)} \\ y^{(1)} \end{pmatrix} = \frac{e}{2m\omega_P^2} \frac{3}{4} \underbrace{\left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{K\omega_0^2\omega_P^2}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^4} [|E_{x0}|^2 + |E_{y0}|^2]}_{\chi_{11}^{NL}} \left[\begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right]. \quad (2.12)$$

Für die Suszeptibilität folgt:

$$\chi = \chi_{11}^L + \chi_{11}^{NL} \quad (2.13)$$

und für den gesamten Brechungsindex

$$n = \sqrt{1 + \chi_{11}^L + \chi_{11}^{NL}} = \sqrt{1 + \chi_{11}^L} \cdot \sqrt{1 + \frac{\chi_{11}^{NL}}{1 + \chi_{11}^L}} \approx \underbrace{\sqrt{1 + \chi_{11}^L}}_{n_0} \left(1 + \frac{1}{2} \frac{\chi_{11}^{NL}}{1 + \chi_{11}^L} \right). \quad (2.14)$$

Im allgemeinen wird der Brechungsindex auch in der Form

$$n = n_0 + \frac{1}{2} \frac{\chi_{11}^{NL}}{n_0} \equiv n_0 + n_2 I \quad (2.15)$$

angegeben.

2.2 Linearer Faradayeffekt

In diesem Abschnitt soll ein linear gebundenes Elektron einem konstanten Magnetfeld ausgesetzt werden, das in Ausbreitungsrichtung der elektromagnetischen Welle gerichtet ist. Das Magnetfeld führt zu einem weiteren Term in der Lagrangefunktion. Die Bewegungsgleichungen ergeben den zusätzlichen Anteil der Lorentzkraft.

Das konstante Magnetfeld wird durch einen zusätzlichen Term im Vektorpotential \vec{A} beschrieben. Somit setzt sich \vec{A} aus zwei Teilen zusammen, dem Term $\vec{A}_{\vec{E}}$ und dem Term $\vec{A}_{\vec{B}}$, der den Einfluß des Magnetfeldes beschreibt.

$$\vec{A} = \vec{A}_{\vec{E}} + \vec{A}_{\vec{B}} \quad (2.16)$$

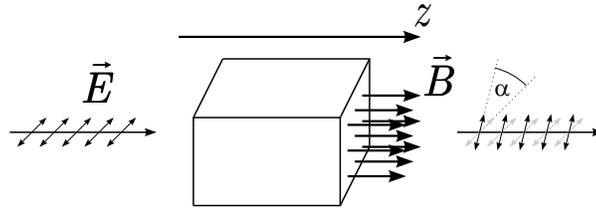


Abbildung 2.1: Zur Geometrie beim Faradayeffekt. Der Ausbreitungsvektor des elektromagnetischen Feldes, wie auch das \vec{B} -Feld zeigen in z -Richtung. Die Polarisationsebene wird um den Winkel α gedreht.

Der erste Term wurde bereits angegeben (2.3). Wählt man als Richtung des Magnetfeldes die z -Richtung, so ist eine mögliche Wahl von $\vec{A}_{\vec{B}}$:

$$\vec{A}_{\vec{B}} = \begin{pmatrix} 0 \\ Bx \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (2.17)$$

Damit lautet die Lagrangefunktion

$$\mathcal{L} = \frac{m}{2} \dot{\vec{r}}^2 + e \dot{\vec{r}} \cdot \vec{A}_{\vec{B}} + e j x B - \frac{1}{2} k \vec{r}^2. \quad (2.18)$$

Lösen der Lagrangegleichungen II. Art mit der Abkürzung für die Zyklotronfrequenz $\omega_C = \frac{eB}{m}$ ergibt die Bewegungsgleichungen.

$$\begin{aligned} \ddot{x} - \omega_C \dot{y} + \omega_0^2 x &= \left(\frac{e}{m}\right) E_x \\ \ddot{y} + \omega_C \dot{x} + \omega_0^2 y &= \left(\frac{e}{m}\right) E_y \end{aligned}$$

Die Lösung erfolgt wiederum im Fourierraum.

$$\begin{aligned} -\omega^2 \tilde{x} - i\omega\omega_C \tilde{y} + \omega_0^2 \tilde{x} &= \frac{e}{2m} 2\pi [E_{x0} \delta(\omega - \omega_L) + E_{x0}^* \delta(\omega + \omega_L)] \\ -\omega^2 \tilde{y} + i\omega\omega_C \tilde{x} + \omega_0^2 \tilde{y} &= \frac{e}{2m} 2\pi [E_{y0} \delta(\omega - \omega_L) + E_{y0}^* \delta(\omega + \omega_L)] \end{aligned}$$

Diese Gleichung lautet in Matrixschreibweise

$$\begin{pmatrix} \omega_0^2 - \omega^2 & -i\omega\omega_C \\ i\omega\omega_C & \omega_0^2 - \omega^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{x} \\ \tilde{y} \end{pmatrix} = \frac{e}{2m} 2\pi \left[\begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} \delta(\omega - \omega_L) + \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} \delta(\omega + \omega_L) \right]. \quad (2.19)$$

Um sie zu lösen, benötigt man die inverse Matrix:

$$\begin{pmatrix} \omega_0^2 - \omega^2 & -i\omega\omega_C \\ i\omega\omega_C & \omega_0^2 - \omega^2 \end{pmatrix}^{-1} = \begin{pmatrix} \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 - \omega^2 \omega_C^2} & \frac{i\omega\omega_C}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 - \omega^2 \omega_C^2} \\ \frac{-i\omega\omega_C}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 - \omega^2 \omega_C^2} & \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 - \omega^2 \omega_C^2} \end{pmatrix}. \quad (2.20)$$

Den Einfluß von ω_C im Nenner kann man vernachlässigen, wenn man sich weit weg von Resonanzen befindet:

$$\frac{\omega^2 \omega_C^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2} = \frac{\omega_C^2}{\omega^2} \left(\frac{\omega_0^2}{\omega^2} - 1\right)^{-2} \ll 1. \quad (2.21)$$

Führt man für die Matrixelemente folgende Abkürzung ein

$$\begin{pmatrix} \frac{\omega_P^2}{\omega_0^2 - \omega^2} & \frac{i\omega\omega_C \omega_P^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2} \\ \frac{-i\omega\omega_C \omega_P^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2} & \frac{\omega_P^2}{\omega_0^2 - \omega^2} \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \chi_{11}^L & \chi_{12}^L \\ -\chi_{12}^L & \chi_{11}^L \end{pmatrix} = \vec{\chi}_L, \quad (2.22)$$

kann man die Lösung folgendermaßen aufschreiben:

$$\begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = \frac{e}{2m\omega_P^2} \left[\vec{\chi}_L \begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \vec{\chi}_L^* \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right]. \quad (2.23)$$

Da der Tensor $\vec{\chi}_L$ die Form von (1.42) besitzt, folgt für die Suszeptibilitäten für links- bzw. rechtszirkular polarisiertes Licht

$$\begin{aligned} \chi_{\odot}^L &= \frac{Ne}{\varepsilon_0 \omega_P^2} \left(\frac{e}{m} \right) (\chi_{11}^L + i\chi_{12}^L) = \chi_{11}^L + i\chi_{12}^L \\ \chi_{\ominus}^L &= \frac{Ne}{\varepsilon_0 \omega_P^2} \left(\frac{e}{m} \right) (\chi_{11}^L - i\chi_{12}^L) = \chi_{11}^L - i\chi_{12}^L \end{aligned}$$

und für den Brechungsindex:

$$n_{\odot/\ominus} = n_0 \pm \frac{i\chi_{12}^L}{2n_0}. \quad (2.24)$$

Den spezifischen Drehwinkel erhält man mit (1.50).

$$\frac{\alpha}{L} = \frac{-\omega_L}{2c_0 n_0} \frac{\omega_L \omega_C \omega_P^4}{\omega_P^2 (\omega_0^2 - \omega_L^2)^2}. \quad (2.25)$$

Die durchgeführte Herleitung wurde unter der Näherung von **einer** Resonanzfrequenz durchgeführt. Es ist deshalb günstig, möglichst viele wellenlängenabhängige Größen durch χ_{11}^L auszudrücken, das wiederum durch n_0 dargestellt werden kann. Für den spezifischen Drehwinkel erhält man also folgende Gleichung:

$$\frac{\alpha}{L} = - \underbrace{\frac{2\pi^2 \omega_C c_0}{\omega_P^2}}_{\kappa} \frac{(n_0^2 - 1)^2}{n_0 \lambda^2}. \quad (2.26)$$

Für n_0 können dann Literaturwerte oder experimentell gewonnene Werte verwendet werden, die das Dispersionsverhalten wesentlich genauer beschreiben.

2.3 Nichtlinearer Faradayeffekt

Den Ausgangspunkt bilden die Bewegungsgleichungen in der Form (2.19), die um den nichtlinearen Anteil erweitert werden.

$$\begin{aligned} \ddot{x} - \omega_C \dot{y} + \omega_0^2 (x - Kx^3) &= \frac{e}{m} E_x \\ \ddot{y} + \omega_C \dot{x} + \omega_0^2 (y - Ky^3) &= \frac{e}{m} E_y \end{aligned} \quad (2.27)$$

Diese Gleichungen lassen sich im Rahmen der Störungsrechnung auf 2 Arten lösen. Entweder man führt die Störungsrechnung nach der Nichtlinearität durch, oder man faßt als Störung das Magnetfeld, also die Terme mit einer Zeitableitung auf.

2.3.1 Nichtlinearität als Störung

Angenommen, die Lösungen der Bewegungsgleichungen können in folgender Form geschrieben werden:

$$x = x^{(0)} + x^{(1)} \quad \text{und} \quad y = y^{(0)} + y^{(1)}. \quad (2.28)$$

Die Gleichungen für die Störungstheorie in 0. und 1. Ordnung nehmen dann folgendes Aussehen an:

$$\lambda = 0: \quad \ddot{x}^{(0)} - \omega_C \dot{y}^{(0)} + \omega_0^2 x^{(0)} = \frac{e}{m} E_x$$

$$\begin{aligned}
& \ddot{y}^{(0)} + \omega_C \dot{x}^{(0)} + \omega_0^2 y^{(0)} = \frac{e}{m} E_y \\
\lambda = 1 : & \quad \ddot{x}^{(1)} - \omega_C \dot{y}^{(1)} + \omega_0^2 x^{(1)} = \omega_0^2 K \left(x^{(0)} \right)^3 \\
& \quad \ddot{y}^{(1)} + \omega_C \dot{x}^{(1)} + \omega_0^2 y^{(1)} = \omega_0^2 K \left(y^{(0)} \right)^3.
\end{aligned}$$

Die Lösung für $\lambda = 0$ ist bereits aus dem vorigen Kapitel bekannt (2.23). Die Lösungen der Gleichungen 1. Ordnung erfolgt wieder im Fourierraum. Der Übersichtlichkeit halber werden folgende Abkürzungen eingeführt

$$\begin{aligned}
x^{(0)} &= x_{+0}^{(0)} e^{i\omega_L t} + x_{-0}^{(0)} e^{-i\omega_L t} \\
&\text{mit } x_{+0}^{(0)} = \frac{e}{2m\omega_P^2} (\chi_{11}^L E_{x0} + \chi_{12}^L E_{y0}) \\
&\text{und } x_{-0}^{(0)} = \frac{e}{2m\omega_P^2} (\chi_{11}^L E_{x0}^* - \chi_{12}^L E_{y0}^*) \\
y^{(0)} &= y_{+0}^{(0)} e^{i\omega_L t} + y_{-0}^{(0)} e^{-i\omega_L t} \\
&\text{mit } y_{+0}^{(0)} = \frac{e}{2m\omega_P^2} (-\chi_{12}^L E_{x0} + \chi_{11}^L E_{y0}) \\
&\text{und } y_{-0}^{(0)} = \frac{e}{2m\omega_P^2} (\chi_{12}^L E_{x0}^* + \chi_{11}^L E_{y0}^*).
\end{aligned}$$

Dann lauten die Gleichungen 1. Ordnung unter Vernachlässigung der $3\omega_L$ -Terme:

$$\begin{aligned}
\ddot{x}^{(1)} - \omega_C \dot{y}^{(1)} + \omega_0^2 x^{(1)} &= 3\omega_0^2 K \left[\left(x_{+0}^{(0)} \right)^2 x_{-0}^{(0)} e^{i\omega_L t} + x_{+0}^{(0)} \left(x_{-0}^{(0)} \right)^2 e^{-i\omega_L t} \right] \\
\ddot{y}^{(1)} + \omega_C \dot{x}^{(1)} + \omega_0^2 y^{(1)} &= 3\omega_0^2 K \left[\left(y_{+0}^{(0)} \right)^2 y_{-0}^{(0)} e^{i\omega_L t} + y_{+0}^{(0)} \left(y_{-0}^{(0)} \right)^2 e^{-i\omega_L t} \right].
\end{aligned}$$

Führt man die Abkürzungen $X = x_{+0}^{(0)} x_{-0}^{(0)}$ und $Y = y_{+0}^{(0)} y_{-0}^{(0)}$ ein, lauten die Lösungen der Gleichungen 1. Ordnung im Fourierraum

$$\begin{pmatrix} \omega_0^2 - \omega^2 & -i\omega\omega_C \\ i\omega\omega_C & \omega_0^2 - \omega^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \tilde{x}^{(1)} \\ \tilde{y}^{(1)} \end{pmatrix} = 2\pi \frac{3}{2} \left(\frac{e}{m} \right) \frac{\omega_0^2 K}{\omega_P^2} \begin{pmatrix} X & 0 \\ 0 & Y \end{pmatrix} \left[\overleftarrow{\chi}_L \delta(\omega - \omega_L) + \overleftarrow{\chi}_L^* \delta(\omega + \omega_L) \right]. \quad (2.29)$$

Die Lösung im Zeitbereich lautet also mit (2.20)

$$\begin{pmatrix} x^{(1)} \\ y^{(1)} \end{pmatrix} = \frac{3}{2} \left(\frac{e}{m} \right) \frac{\omega_0^2 K}{\omega_P^4} \left[\overleftarrow{\chi}_L \begin{pmatrix} X & 0 \\ 0 & Y \end{pmatrix} \overleftarrow{\chi}_L \begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \overleftarrow{\chi}_L^* \begin{pmatrix} X & 0 \\ 0 & Y \end{pmatrix} \overleftarrow{\chi}_L^* \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right]. \quad (2.30)$$

Ausmultiplizieren der Matrizen liefert folgenden Ausdruck:

$$\begin{aligned}
\begin{pmatrix} x^{(1)} \\ y^{(1)} \end{pmatrix} &= \frac{3}{2} \left(\frac{e}{m} \right) \frac{\omega_0^2 K}{\omega_P^4} \left[\begin{pmatrix} \chi_{11}^2 X - \chi_{12}^2 Y & \chi_{11}\chi_{12}(X+Y) \\ -\chi_{11}\chi_{12}(X+Y) & \chi_{11}^2 Y - \chi_{12}^2 X \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} \right. \\
&\quad \left. + \begin{pmatrix} \chi_{11}^2 X - \chi_{12}^2 Y & -\chi_{11}\chi_{12}(X+Y) \\ \chi_{11}\chi_{12}(X+Y) & \chi_{11}^2 Y - \chi_{12}^2 X \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right].
\end{aligned}$$

Wir betrachten wiederum zirkularpolarisiertes Licht (\vec{E}_\odot und \vec{E}_\ominus). Für \vec{E}_\odot erhält man

$$\begin{aligned}
X_\odot &= x_{+0}^{(0)} x_{-0}^{(0)} \\
&= \frac{e^2}{8m^2\omega_P^4} E_0^2 [(\chi_{11} + i\chi_{12})(\chi_{11} + i\chi_{12})] \\
&= \frac{e^2}{8m^2\omega_P^4} E_0^2 (\chi_{11} + i\chi_{12})^2
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
Y_{\circ} &= y_{+0}^{(0)} y_{-0}^{(0)} \\
&= \frac{e^2}{8m^2 \omega_{\text{P}}^4} E_0^2 [(-\chi_{12} + i\chi_{11})(\chi_{12} - i\chi_{11})] \\
&= \frac{e^2}{8m^2 \omega_{\text{P}}^4} E_0^2 (\chi_{11} + i\chi_{12})^2
\end{aligned}$$

und analog für \vec{E}_{\circ}

$$\begin{aligned}
X_{\circ} &= x_{+0}^{(0)} x_{-0}^{(0)} \\
&= \frac{e^2}{8m^2 \omega_{\text{P}}^4} E_0^2 [(\chi_{11} - i\chi_{12})(\chi_{11} + i\chi_{12})] \\
&= \frac{e^2}{8m^2 \omega_{\text{P}}^4} E_0^2 (\chi_{11} - i\chi_{12})^2 \\
Y_{\circ} &= y_{+0}^{(0)} y_{-0}^{(0)} \\
&= \frac{e^2}{8m^2 \omega_{\text{P}}^4} E_0^2 [(-\chi_{12} - i\chi_{11})(\chi_{12} + i\chi_{11})] \\
&= \frac{e^2}{8m^2 \omega_{\text{P}}^4} E_0^2 (\chi_{11} - i\chi_{12})^2.
\end{aligned}$$

In beiden Fällen ergibt sich das Ergebnis

$$X_{\circ} = Y_{\circ} \quad \text{bzw.} \quad X_{\circ} = Y_{\circ}. \quad (2.31)$$

Damit folgt für die Lösungen 1. Ordnung für \vec{E}_{\circ}

$$\begin{aligned}
\begin{pmatrix} x^{(1)} \\ y^{(1)} \end{pmatrix} &= \frac{3}{2\sqrt{2}} \left(\frac{e}{m}\right) \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^4} X_{\circ} E_0 \left[\begin{pmatrix} \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} & \chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} \\ -\chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} & \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{i\omega_{\text{L}} t} \right. \\
&\quad \left. + \begin{pmatrix} \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} & -\chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} \\ \chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} & \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{-i\omega_{\text{L}} t} \right] \\
&= \frac{3}{16\sqrt{2}} \left(\frac{e}{m}\right)^3 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^8} E_0^2 E_0 (\chi_{11}^{\text{L}} + i\chi_{12}^{\text{L}})^4 \left[\begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{i\omega_{\text{L}} t} + \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{-i\omega_{\text{L}} t} \right]
\end{aligned} \quad (2.32)$$

und für \vec{E}_{\circ}

$$\begin{aligned}
\begin{pmatrix} x^{(1)} \\ y^{(1)} \end{pmatrix} &= \frac{3}{2\sqrt{2}} \left(\frac{e}{m}\right) \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^4} X_{\circ} E_0 \left[\begin{pmatrix} \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} & \chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} \\ -\chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} & \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{i\omega_{\text{L}} t} \right. \\
&\quad \left. + \begin{pmatrix} \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} & -\chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} \\ \chi_{11}^{\text{L}} \chi_{12}^{\text{L}} & \chi_{11}^{\text{L}^2} - \chi_{12}^{\text{L}^2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{-i\omega_{\text{L}} t} \right] \\
&= \frac{3}{16\sqrt{2}} \left(\frac{e}{m}\right)^3 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^8} E_0^2 E_0 (\chi_{11}^{\text{L}} - i\chi_{12}^{\text{L}})^4 \left[\begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{i\omega_{\text{L}} t} + \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{-i\omega_{\text{L}} t} \right].
\end{aligned} \quad (2.33)$$

Mit der Definition für die Polarisation folgt für $\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}}$

$$\begin{aligned}
\chi_{\circ}^{\text{NL}} &= \frac{Ne}{\varepsilon_0} \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^3 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^8} E_0^2 (\chi_{11}^{\text{L}} + i\chi_{12}^{\text{L}})^4 \\
&= \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^6} E_0^2 (\chi_{11}^{\text{L}} + i\chi_{12}^{\text{L}})^4 \\
\chi_{\circ}^{\text{NL}} &= \frac{Ne}{\varepsilon_0} \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^3 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^8} E_0^2 (\chi_{11}^{\text{L}} - i\chi_{12}^{\text{L}})^4 \\
&= \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_{\text{P}}^6} E_0^2 (\chi_{11}^{\text{L}} - i\chi_{12}^{\text{L}})^4
\end{aligned}$$

Wegen $\chi_{11}^L \ll \chi_{12}^L$ folgt

$$\begin{aligned}\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}} &= \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_P^6} E_0^2 \chi_{11}^L{}^4 \left(1 \pm \frac{i\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L}\right)^4 \\ &\approx \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_P^6} E_0^2 \chi_{11}^L{}^4 \left(1 \pm 4 \frac{i\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L}\right)\end{aligned}$$

und somit

$$\begin{aligned}n_{\circ/\circ} &= \sqrt{1 + \chi_{\circ/\circ}^L + \chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}}} \\ &= \sqrt{1 + \chi_{11}^L \pm i\chi_{12}^L + \chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}}} \\ &= \sqrt{1 + \chi_{11}^L} \cdot \sqrt{1 \pm \frac{i\chi_{12}^L}{1 + \chi_{11}^L} + \frac{\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}}}{1 + \chi_{11}^L}} \\ &\approx n_0 \left(1 \pm \frac{1}{2} \frac{i\chi_{12}^L}{1 + \chi_{11}^L} + \frac{1}{2} \frac{\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}}}{1 + \chi_{11}^L}\right) \\ &= n_0 \pm \frac{i\chi_{12}^L}{2n_0} + \frac{\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}}}{2n_0}.\end{aligned}$$

Setzt man in $\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}}$ die Suszeptibilität des Kerreffekts ein (2.12), erhält man

$$\begin{aligned}\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}} &= \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \frac{\omega_0^2 K}{\omega_P^6} E_0^2 \chi_{11}^L{}^4 \left(1 \pm 4 \frac{i\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L}\right) \\ &= \frac{3}{8} \left(\frac{e}{m}\right)^2 \frac{\omega_0^2 \omega_P^2 K}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^4} E_0^2 \left(1 \pm 4 \frac{i\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L}\right),\end{aligned}$$

und es folgt

$$\chi_{\circ/\circ}^{\text{NL}} = \frac{\chi^{\text{NL}}}{2} \left(1 \pm 4 \frac{i\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L}\right). \quad (2.34)$$

Wegen $n_0 = \sqrt{1 + \chi_{11}}$ erhält man für den Brechungsindex

$$n_{\circ/\circ} = n_0 \pm \frac{i\chi_{12}^L}{2n_0} + n_2 \frac{I}{2} \pm 4 \frac{i\chi_{12}^L}{n_0^2 - 1} n_2 \frac{I}{2}. \quad (2.35)$$

Die Intensität I ist die Gesamtintensität der linear polarisierten Welle und $\frac{I}{2}$ die Intensität einer der beiden zirkular polarisierten Wellen.

Die Größenordnung des zusätzlichen Drehwinkels kann man durch das Verhältnis der beiden Faraday-Brechungsindizes angeben.

$$\frac{\Delta\alpha^{\text{NL}}}{\alpha} = 4 \frac{n_0}{n_0^2 - 1} n_2 I \quad (2.36)$$

Für $I \approx 10^{11} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$, $n_2 \approx 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$ und $n_0 \approx 1.5$ beträgt der zusätzliche Drehwinkel **nur**

$$\Delta\alpha^{\text{NL}} = 5 \cdot 10^{-5} \cdot \alpha.$$

Der zu messende Effekt ist außerordentlich klein, sollte aber dennoch meßbar sein. Mit einem linearen Drehwinkel von 60° ergibt sich zum Beispiel ein zusätzlicher Drehwinkel von 11 Bogensekunden.

2.3.2 Magnetfeld als Störung

Nun soll das Magnetfeld als Störung aufgefaßt werden. Die Gleichungen in 0. und 1. Ordnung Störungsrechnung lauten also

$$\lambda = 0 : \quad \ddot{x}^{(0)} + \omega_0^2 \left[x^{(0)} - K \left(x^{(0)} \right)^3 \right] = \frac{e}{m} E_x$$

$$\begin{aligned} \ddot{y}^{(0)} + \omega_0^2 \left[y^{(0)} - K \left(y^{(0)} \right)^3 \right] &= \frac{e}{m} E_y \\ \lambda = 1 : \quad \ddot{x}^{(1)} + \omega_0^2 x^{(1)} &= \omega_C \dot{y}^{(0)} \\ \ddot{y}^{(1)} + \omega_0^2 y^{(1)} &= -\omega_C \dot{x}^{(0)}. \end{aligned}$$

In den Gleichungen 1. Ordnung wurde der Term mit $\omega_0^2 K \left(x^{(1)} \right)^3$ bzw. $\omega_0^2 K \left(y^{(1)} \right)^3$ weggelassen, da er gegen $\omega_C \dot{y}^{(0)}$ bzw. $\omega_C \dot{x}^{(0)}$ vernachlässigt werden kann. Die Lösungen $x^{(0)}$ und $y^{(0)}$ sind bereits bekannt (2.11, 2.12) – sie lauten

$$\begin{pmatrix} x^{(0)} \\ y^{(0)} \end{pmatrix} = \frac{e}{2m\omega_p^2} \left(\chi_{11}^L + \frac{1}{2}\chi_{11}^{NL} \right) \left[\begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right]. \quad (2.37)$$

Die Gleichungen 1. Ordnung kann man im Fourierraum lösen.

$$\tilde{x}^{(1)} = \frac{i\omega\omega_C}{\omega_0^2 - \omega^2} \tilde{y}^{(0)} \quad \text{bzw.} \quad \tilde{y}^{(1)} = \frac{-i\omega\omega_C}{\omega_0^2 - \omega^2} \tilde{x}^{(0)} \quad (2.38)$$

$$\begin{pmatrix} x^{(1)} \\ y^{(1)} \end{pmatrix} = \frac{e}{2m\omega_p^2} \frac{\omega_0^2 - \omega_L^2}{\omega_p^2} \left(\chi_{11}^L + \frac{1}{2}\chi_{11}^{NL} \right) \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ -1 & 0 \end{pmatrix} \left[\chi_{12}^L \begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \chi_{12}^{L*} \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right]. \quad (2.39)$$

Die Gesamtlösung für \vec{r} lautet also

$$\begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = \frac{e}{2m\omega_p^2} \left(\chi_{11}^L + \frac{1}{2}\chi_{11}^{NL} \right) \begin{pmatrix} 1 & \frac{\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L} \\ -\frac{\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L} & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \text{c.c.} \quad (2.40)$$

Für rechts- bzw. linkszirkularpolarisiertes Licht erhält man

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}\omega_p^2} \left(\frac{e}{m} \right) \left(\chi_{11}^L + \frac{1}{2}\chi_{11}^{NL} \right) \left(1 + \frac{i\chi_{12}^L}{\chi_{11}^L} \right) \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \text{c.c.} \\ \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}\omega_p^2} \left(\frac{e}{m} \right) \left(\chi_{11}^L + \frac{1}{2}\chi_{11}^{NL} \right) \left(1 - \frac{i\chi_{12}^L}{\chi_{12}^L} \right) \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \text{c.c.} \end{aligned}$$

Demnach lautet die Suszeptibilität

$$\chi_{\circ/\circ} = \chi_{11}^L + \frac{1}{2}\chi_{11}^{NL} \pm i\chi_{12}^L \pm \chi_{11}^{NL} \frac{i\chi_{12}^L}{2\chi_{11}^L}. \quad (2.41)$$

Für den Brechungsindex ergibt sich in dieser Näherung:

$$n_{\circ/\circ} = n_0 \pm \frac{i\chi_{12}^L}{2n_0} + n_2 \frac{I}{2} \pm \frac{i\chi_{12}^L}{n_0^2 - 1} n_2 \frac{I}{2}. \quad (2.42)$$

Das Ergebnis unterscheidet sich von der Lösung (2.35) im nichtlinearen Faraday-Term durch den Faktor 4. Die Größenordnung beider Näherung stimmt aber überein. Auf jeden Fall sagen beide Näherungen eine intensitätsabhängige Drehung der Polarisationssebene voraus. Den zusätzlichen Drehwinkel kann man allein aus den Konstanten der linearen Effekte bzw. des nichtlinearen Kerreffekts bestimmen.

Ein Kriterium, welche Lösung auf den im Experiment benutzten Faraday-Rotator angewandt werden muß, wird später angegeben.

2.3.3 Kriterium für eine zusätzliche Drehung

Wie kann man eine zusätzliche Drehung qualitativ und quantitativ beobachten? Im folgenden soll dazu eine Abschätzung durchgeführt werden. Dabei ist man auf mehrere Näherungen angewiesen, wie zum

Beispiel die monochromatische Näherung für den nichtlinearen Effekt. Führt man für die Wellenlänge $\lambda = \lambda_L + \Delta\lambda$ ein, kann man die Näherung für den linearen Drehwinkel wie folgt angeben.

$$\alpha^L = \underbrace{\alpha(\lambda_L)}_{\alpha_0} \left(1 - 2 \frac{\Delta\lambda}{\lambda_L}\right) \quad (2.43)$$

Der Gesamtdrehwinkel $\alpha = \alpha^L + \alpha^{\text{NL}}$ lautet demnach

$$\begin{aligned} \alpha &= \alpha^L \left(1 + 4 \frac{n}{n^2 - 1} n_2 I_0\right) \\ &\approx \alpha_0 \left(1 - 2 \frac{\Delta\lambda}{\lambda_L}\right) \left(1 + 4 \frac{n}{n^2 - 1} n_2 I_0\right) \end{aligned} \quad (2.44)$$

Der Strahl wird durch einen Analysator mit dem Winkel α_P geschickt, der eine Modulation der spektralen Intensitätsverteilung $I^*(\lambda)$ mit einem \cos^2 -Term bewirkt.

$$I(\lambda) = \cos^2(\alpha - \alpha_P) I^*(\lambda) \quad (2.45)$$

Für Winkel nahe der Auslöschung ($\alpha_P \approx \alpha_0 + \frac{\pi}{2}$) kann der \cos -Term entwickelt werden, und man erhält mit der Abkürzung $\zeta = \frac{\Delta\lambda}{\lambda_L}$:

$$\begin{aligned} I(\lambda) &\approx (\alpha - \alpha_0)^2 I^*(\lambda) \\ &= \left(2 \frac{\Delta\lambda}{\lambda_L} - 4 \frac{n}{n^2 - 1} n_2 I_0 + 8 \frac{\Delta\lambda}{\lambda_L} \frac{n}{n^2 - 1} n_2 I_0\right)^2 I^*(\lambda) \cdot \alpha_0^2 \\ &\approx \left(2\zeta - 4 \frac{n_0}{n_0^2 - 1} n_2 I_0\right)^2 I^*(\lambda) \cdot \alpha_0^2 \\ &\approx \left(4\zeta^2 - 16 \frac{n_0 \zeta}{n_0^2 - 1} n_2 I_0\right) I^*(\lambda) \cdot \alpha_0^2 \end{aligned}$$

Setzt man für die Intensitätsverteilung eine Gaußverteilung $I^*(\lambda) = I^*(\Delta\lambda) = I_{\max} e^{-\frac{\Delta\lambda^2}{a^2}}$ an, folgt für $I(\Delta\lambda)$:

$$I(\Delta\lambda) = \left(\underbrace{4 \frac{\Delta\lambda^2}{\lambda_L^2} \alpha_0^2}_{I_1} - \underbrace{16 \frac{n_0 \Delta\lambda \alpha_0^2}{\lambda_L (n_0^2 - 1)} n_2 I_0}_{I_2} \right) I_{\max} e^{-\frac{\Delta\lambda^2}{a^2}}. \quad (2.46)$$

Die Intensität besitzt 2 Terme, die Funktionen von $\Delta\lambda$ sind. Der erste Term I_1 ist quadratisch, der zweite Term I_2 linear in $\Delta\lambda$. Der lineare Term ist außerdem der Intensität proportional.

Im Spektrum bilden sich zwei Maxima aus, und zwar für $\Delta\lambda > 0$ und für $\Delta\lambda < 0$. Ist die Intensität schwach, kann man I_2 vernachlässigen und man erhält Maxima gleicher Stärke bei $\pm\delta\lambda$. Erhöht man die Intensität, bewirkt I_2 eine Asymmetrie im Spektrum – ein Maximum wird stärker, das andere schwächer. Das Beobachten einer Änderung von $\frac{I(\delta\lambda)}{I(-\delta\lambda)}$ ist also ein Zeichen für eine zusätzliche Drehung.

In diesem Kapitel wurde ein Modell für den linearen und nichtlinearen Faradayeffekt entwickelt. Ausgehend vom Drude-Modell wurden der magnetische Störterm bzw. die nichtlineare Störung behandelt. Die Größenordnung beider Näherungen stimmen überein. Sie sagen eine kleine nichtlineare Drehung der Polarisationsebene voraus. Der nichtlineare Drehwinkel kann aus den Konstanten der linearen Drehung und des Kerreffektes bestimmt werden – man benötigt keine neuen Materialkonstanten. In der spektralen Darstellung äußert sich die zusätzliche Drehung in einer Veränderung der Maxima, die man bei gekreuzten Polarisatoren messen kann.

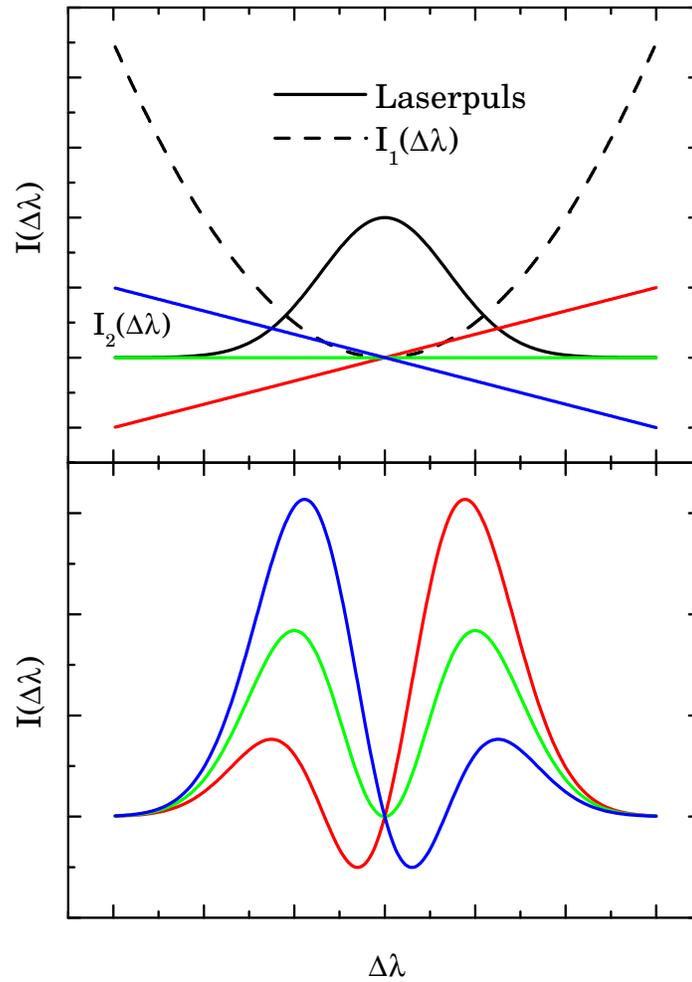


Abbildung 2.2: Die Beiträge zum Spektrum des nichtlinearen Faradayeffektes nach einem Polarisator für 3 verschiedene I_2 (positiver und negativer Anstieg und identisch Null) sind im oberen Teil abgebildet. Im unteren Teil ist das zugehörige $I(\Delta\lambda)$ aufgetragen. Für $I_2 = 0$ sind die Maxima symmetrisch. Andernfalls ändern die Maxima je nach Vorzeichen von I_2 ihre Größe. Die „negativen“ Intensitäten sind das Resultat der Näherung in der Bestimmung von $I(\lambda)$.

Kapitel 3

Optische Aktivität

3.1 Historisches

Das Phänomen der optischen Aktivität wurde bereits 1811 unabhängig von *Arago* und *Biot* an kristal-
linem Quarz entdeckt [27, 28]. *Arago* beobachtete die optische Drehung und die Rotationsdispersion.
Biot entdeckte 2 Arten von Quarz, die sich in ihrem Drehsinn unterschieden. Kurze Zeit danach wurde
auch die optische Aktivität in organischen Flüssigkeiten entdeckt. *Fresnel* erkannte, daß dieser Effekt auf
unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten von rechts- und linkszirkular polarisiertem Licht beruht [29].
Drude entwickelte um 1892 eine Theorie der optischen Aktivität, die ein Elektron benutzte, das auf eine
Helixbahn beschränkt war [30, 31]. Eine Helixbahn trägt chiralen Charakter und besitzt einen definierten
Windungssinn – sie ähnelt Licht in zirkular polarisierter Darstellung. Dieses Modell wurde viele Jahre
lang akzeptiert. *Lindman* führte 1920 „makroskopische“ Experimente zur optischen Aktivität durch [32].
Er benutzte, entsprechend dem Modell von *Drude*, Kupferdrähte, die er zu 7 mm hohen Spiralen mit 10
mm Durchmesser wickelte und mit polarisierten Mikrowellen bestrahlte. Bei diesen Versuchen bestätigte
er alle Gesetzmäßigkeiten, die auch bei der mikroskopischen optischen Aktivität beobachtet wurden:

- Die Drehrichtung ist abhängig vom Windungssinn der Kupferdrähte.
- Die Drehrichtung ändert sich, wenn die Resonanzwellenlänge der Kupferresonatoren überschritten wird.
- In Nähe der Resonanzwellenlänge wird das transmittierte Licht elliptisch polarisiert.
- Der Drehwinkel folgt dem Gesetz von *Biot* $\varphi = \frac{k_0}{\lambda^2 - \lambda_0^2}$.
- Die Drehung ist der Anzahl der Resonatoren und damit der Dicke der „aktiven“ Schicht proportional.

Man kann also die optische Aktivität als Folge der Chiralität verstehen. Wie sich später herausstellte,
war die Theorie der optischen Aktivität, wie sie *Drude* entwickelte, falsch. Es genügt nicht, die Bewegung
der Elektronen auf der Helix zu betrachten – man muß auch von der Dipol-Näherung abgehen.

1874 entdeckte *van't Hoff*, daß eine Verbindung, die aus Tetraedern mit einem Kohlenstoffatom als Zen-
tralatom und vier verschiedenen Substituenten besteht, in 2 Zuständen existieren kann. Die räumliche
Struktur der beiden Zustände ist jeweils spiegelbildlich zueinander, wie in Abbildung 3.1 dargestellt ist.
Das Original und sein Spiegelbild unterscheiden sich, da sie durch eine Translation bzw. Rotation nicht
wieder zur Deckung gebracht werden können. Der heutigen Definition entsprechend nennt man Moleküle
mit dieser Eigenschaft chiral.

Der wellenlängenabhängige Brechungsindex kann in einer Sellmeiergleichung genähert werden.

$$n^2 = 1 + \sum_k A_k \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_k^2} \quad (3.1)$$

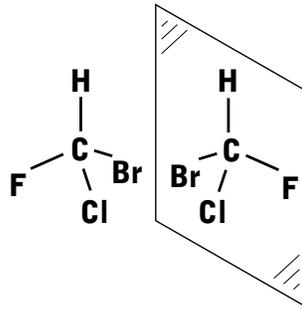


Abbildung 3.1: Das tetraedrisch aufgebautes Molekül CHFCIBr und sein Spiegelbild. Beide Darstellungen können durch Anwendung von Translations- und Rotationsoperationen nicht zur Deckung gebracht werden.

Nimmt man an, daß sich A_k für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht ein wenig voneinander unterscheidet, kann man das von *Drude* aufgestellte Gesetz für die Rotationsdispersion herleiten ([33]):

$$\begin{aligned} (n_L - n_R)(n_L + n_R) &= \sum_k (A_{Lk} - A_{Rk}) \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_k^2} \\ n_L - n_R &\approx \sum_k \frac{A_{Lk} - A_{Rk}}{2n} \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - \lambda_k^2}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Ein Beispiel für unterschiedliche A_k ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Neben dem Realteil wurde auch der Imaginärteil berechnet. Dieser führt zum zirkularen Dichroismus, also der unterschiedlichen Absorption zwischen rechts- und linkszirkular polarisiertem Licht.

3.2 Optische Aktivität im Quarz

Die bei Zimmertemperatur stabile Form von kristallinem Quarz ist α -Quarz. Daneben existiert noch das Quarz-Glas, das aber keine Gitterstruktur besitzt, also amorph ist. Im folgenden soll kurz auf den Gitteraufbau von α -Quarz eingegangen werden.

3.2.1 Gitterstruktur

Die Si-Atome sind von jeweils 4 Sauerstoffatomen umgeben, die einen Tetraeder formen. Jedes Sauerstoffatom besitzt 2 Si-Atome als Nachbarn. Das Verhältnis von Si- zu O-Atomen beträgt 1 : 2. Die Atome sind in dreizähligen Schraubenachsen angeordnet. Allein die Drehrichtung dieser Schraubenachsen unterscheidet zwischen rechts- und linksdrehendem Quarz. Die Gitterkonstanten der hexagonalen Elementarzelle sind [34]

$$\begin{aligned} a &= (4.91267 \pm 0.00009) \text{Å} \\ c &= (5.40459 \pm 0.00011) \text{Å} \end{aligned}$$

Anhand der Daten der Atomlagen wurde in Abbildung 3.3 ein Quarzkristall generiert.

Die Blickrichtung fällt mit der optischen Achse (der c -Achse) zusammen. Die großen Kugeln stellen die O-Atome, die kleinen Kugeln die Si-Atome dar. Zusätzlich sind die Verbindungen zwischen den Atomen und die Begrenzung der Elementarzelle abgebildet. Die Tiefe der Abbildung beträgt 3 Elementarzellen. Der Übersichtlichkeit halber wurde in Abbildung 3.4 nur der Ausschnitt des Kristalls dargestellt, der die Spiralstruktur enthält. Außerdem sind links- und rechtsdrehender Quarz gegenüber gestellt.

3.2.2 Das Helix-Modell beim Quarz

Wie im vorigen Kapitel dargestellt, kann man im Quarz eine Spiralstruktur identifizieren. Nach 3 Atomen wiederholt sich die Struktur. Ein Ausschnitt dieser Helixstruktur ist in Abbildung 3.5 zu sehen.

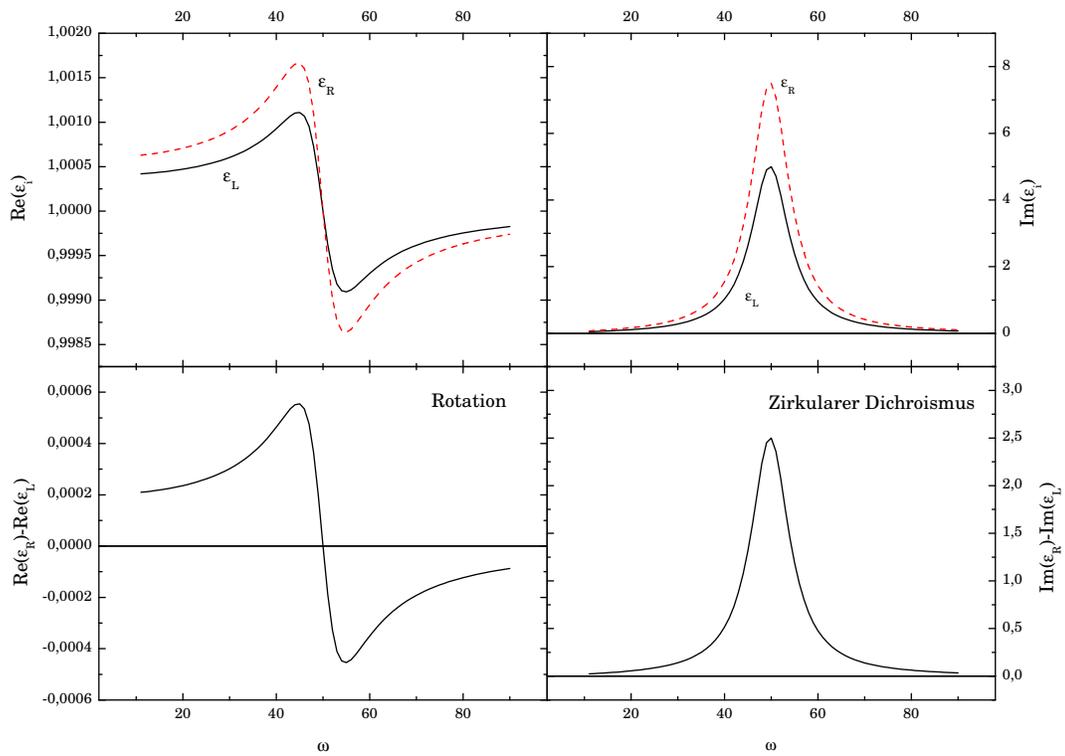


Abbildung 3.2: Verschiedene Dispersionsrelationen ($\omega_0 = 50$, $\Delta\omega = 10$) für links- ($A_L = 1$) und rechtszirkularpolarisiertes Licht ($A_R = 1, 5$) führen zur Drehung der Polarisationsebene (Differenz des realen Anteils) und zum zirkularen Dichroismus (Differenz des imaginären Anteils).

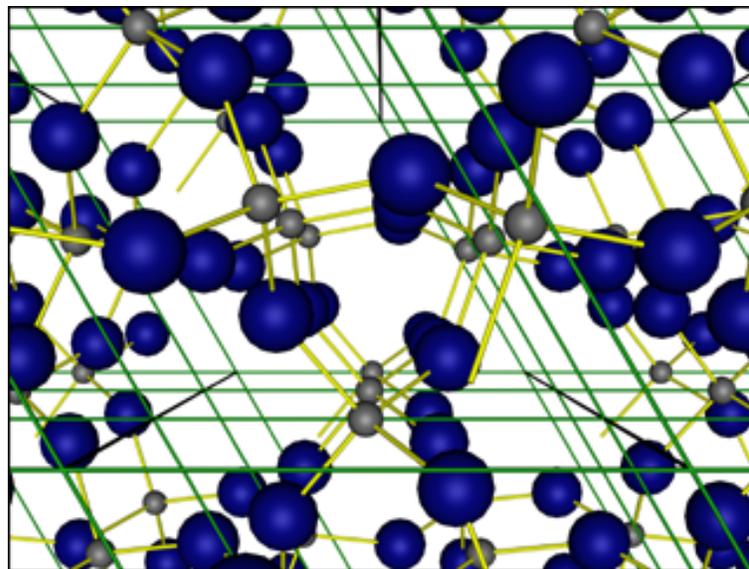


Abbildung 3.3: Blick entlang der optischen Achse in einen linksdrehenden Quarzkristall. Die blauen Kugeln repräsentieren den Sauerstoff, die grauen Kugeln die Si-Atome. Die Bindungen sind durch gelbe Balken dargestellt. Die Begrenzungen der Elementarzelle werden durch grüne Verbindungslinien repräsentiert.

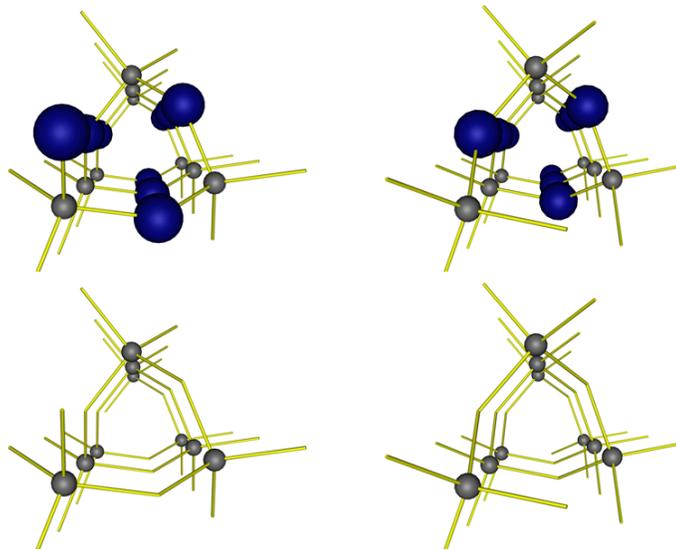


Abbildung 3.4: Chiralität bei links- und rechtshändigem Quarz. Auf der linken Seite bildet sich eine linkshändige Schraube, auf der rechten Seite eine rechtshändige Schraube heraus. Beide Formen bilden ein stabiles Kristallgitter.

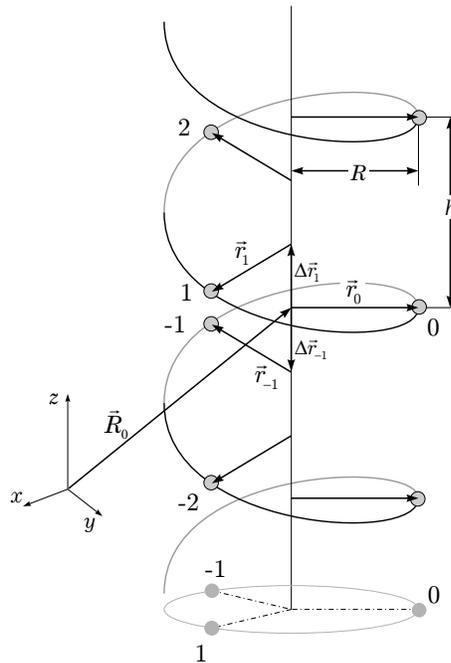


Abbildung 3.5: Schematische Zeichnung der Helix mit Elektronen in ihren Ruhelagen. Die z -Achse fällt mit der Symmetrieachse der Helix zusammen. Die Projektion der Elektronen -1 , 0 und 1 entlang der z -Achse ergibt Punkte auf einem Kreis mit dem Radius R . Der Vektor \vec{R}_0 ist der Ortsvektor des Schwerpunkts der Helix.

Die Elektronen werden durch das elektrische Feld des Lichtes nur unwesentlich ausgelenkt. Deshalb kann man annehmen, daß ihre Verschiebung aus der Ruhelage viel kleiner als die Abmessungen R und h der Helix sind, und die Schwingung um die Ruhelage linearisieren – das heißt, die Elektronen bewegen sich nicht entlang der Helix, sondern verschieben sich tangential zu ihrer Ruheposition (Abbildung 3.6).

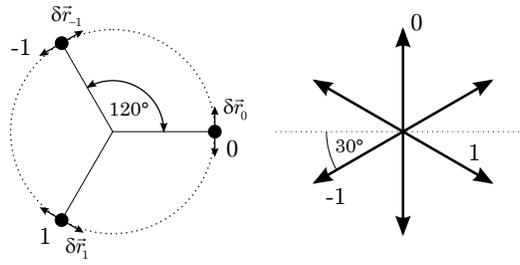


Abbildung 3.6: Die Bewegung der Elektronen um ihre Ruhelage kann linearisiert werden, da die Auslenkungen klein gegen die Helixausdehnung sind. Durch die 3-zählige Symmetrie stehen die Vektoren $\delta\vec{r}_u$ im Winkel 120° zueinander.

Der vollständige Ortsvektor des Elektrons u lautet

$$\vec{r}_u^{\text{ges}} = \vec{R}_0 + \Delta\vec{r}_u + \vec{r}_u + \delta\vec{r}_u. \quad (3.3)$$

Die drei ersten Terme sind zeitunabhängig, da sie nur die Ruheposition des Elektrons beschreiben. Der Term $\delta\vec{r}_u$ beschreibt die Bewegung um die Ruhelage. Für ihn kann man einen Normalenvektor \vec{n}_u einführen und die zeitabhängige Position in Abhängigkeit eines Parameter q_u wie folgt schreiben:

$$\delta\vec{r}_u = \vec{n}_u q_u. \quad (3.4)$$

Damit lautet der Ausdruck für den zeitabhängigen Ortsvektor des Elektrons u :

$$\vec{r}_u^{\text{ges}}(t) = \vec{R}_0 + \Delta\vec{r}_u + \vec{r}_u + \vec{n}_u q_u(t). \quad (3.5)$$

Die Normalenvektoren kann man bis auf einen Winkel φ_0 angeben. Für die linkshändige Helix (siehe Abbildung 3.5) lauten sie

u	n_{u_x}	n_{u_y}
-1	$-\sin(\varphi_0 + 120^\circ)$	$\cos(\varphi_0 + 120^\circ)$
0	$-\sin(\varphi_0)$	$\cos(\varphi_0)$
1	$-\sin(\varphi_0 - 120^\circ)$	$\cos(\varphi_0 - 120^\circ)$

Für eine rechtshändige Helix kehren sich die Vorzeichen der zusätzlichen Drehwinkel um.

u	n_{u_x}	n_{u_y}
-1	$-\sin(\varphi_0 - 120^\circ)$	$\cos(\varphi_0 - 120^\circ)$
0	$-\sin(\varphi_0)$	$\cos(\varphi_0)$
1	$-\sin(\varphi_0 + 120^\circ)$	$\cos(\varphi_0 + 120^\circ)$

3.2.3 Theorie der linearen optischen Aktivität

Das erste Modell, das zur optischen Aktivität führte, wurde von *Born* entwickelt [35]. Er benutzte das Modell eines gekoppelten Moleküls, das heißt, er berechnete eine Elektronenanordnung unter Beachtung der Wechselwirkungen zwischen den Elektronen. *Kuhn* spezialisierte diese Theorie auf eine einfache Elektronenanordnung, die in Abbildung 3.7 dargestellt ist [36].

Das Molekül besitzt 2 optisch aktive Elektronen, die sich nur auf der x - bzw. y -Achse bewegen können. Der Abstand zwischen den Ruhelagen beider Elektronen ist D . Führt man außer den beiden Federpotentialen noch ein zusätzliches Wechselwirkungspotential der Form

$$U(y_1, x_2) = k_{12} y_1 x_2 \quad (3.6)$$

ein, treten beim Lösen der Wellengleichung Kreuzterme auf, die zu einem nichtdiagonalen Dielektrizitätstensor führen. Die Herleitung kann man in [37] nachlesen. Das Ergebnis des Suszeptibilitätstensors

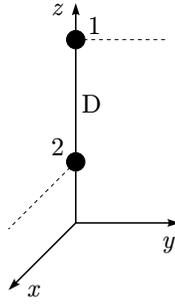


Abbildung 3.7: Das einfachste Molekül, das Anlaß zur optischen Aktivität gibt, besteht aus 2 optisch aktiven Elektronen deren Ruhelagen den Abstand D besitzen. Die Auslenkung ist auf die x - bzw. y -Achse beschränkt. Zwischen den Elektronen wirkt eine Wechselwirkungskraft.

lautet wie folgt:

$$\begin{aligned}\chi_{xx} = \chi_{yy} &= \frac{\omega_P^2(\omega_0^2 - \omega_L^2 - i\gamma\omega_L)}{(\omega_0^2 - \omega_L^2 - i\gamma\omega_L)^2 - \xi^2} \\ \chi_{xy} = \chi_{yx} &= -\frac{\omega_P^2\xi}{(\omega_0^2 - \omega_L^2 - i\gamma\omega_L)^2 - \xi^2} \\ \Gamma_{xyz} = -\Gamma_{yxz} &= -D\chi_{xy} = \frac{D\omega_P^2\xi}{(\omega_0^2 - \omega_L^2 - i\gamma\omega_L)^2 - \xi^2}.\end{aligned}$$

Ohne Beachtung der Dämpfung γ und unter Vernachlässigung des Wechselwirkungsterms ξ im Nenner erhält man

$$\chi_{xx} = \chi_{yy} = \frac{\omega_P^2}{\omega_0^2 - \omega_L^2} \quad (3.7)$$

$$\chi_{xy} = \chi_{yx} = -\frac{\omega_P^2\xi}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^2} \quad (3.8)$$

$$\Gamma_{xyz} = -\Gamma_{yxz} = -D\chi_{xy} = \frac{D\omega_P^2\xi}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^2}. \quad (3.9)$$

Die Tensorelemente von $\vec{\chi}$, die eine Drehung der Polarisationssebene bewirken, lauten also

$$\vec{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & ik\Gamma_{xyz} \\ -ik\Gamma_{xyz} & \chi_{xx} \end{pmatrix}. \quad (3.10)$$

Der Tensor besitzt die gleichen Elemente wie der des linearen Faradayeffekts (2.22). Man sollte also ein ähnliches Dispersionsverhalten erwarten. Den spezifischen Drehwinkel kann man mittels (1.50) angeben.

$$\begin{aligned}\frac{\alpha}{L} &= -\frac{\omega_L}{c_0} \frac{k\Gamma_{xyz}}{2n_0} \\ &= -\frac{2\pi^2 D\xi}{\omega_P^2} \frac{(n_0^2 - 1)^2}{n_0\lambda^2}\end{aligned} \quad (3.11)$$

Auch hier ist der Ausdruck bis auf den Vorfaktor identisch mit der Lösung des Faraday-Modells (2.26).

Um zu diesem Ergebnis zu gelangen, muß man allerdings Nichtlokalitätseffekte beachten. Das heißt, das elektrische Feld am Ort \vec{r} zum Zeitpunkt t wird nicht nur durch vorher wirkende Felder am selben Ort beeinflusst, sondern auch von Feldern, die an einem anderen Ort wirksam waren. Diese Beeinflussung ist in Abbildung 3.8 skizziert.

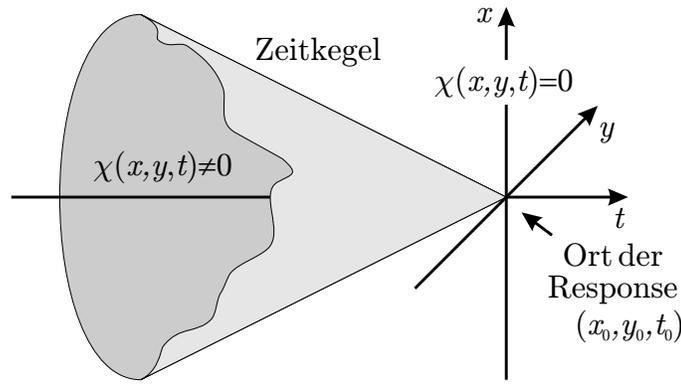


Abbildung 3.8: Die optische Response am Ort (x_0, y_0, t_0) hängt von der Vergangenheit und von der Umgebung ab. In den Bereichen außerhalb des Zeitkegels ist die Suszeptibilität identisch 0, da die Informationen von dort mit Überlichtgeschwindigkeit übermittelt werden müssten, um am Ort der Response wirksam zu werden.

Die lineare Polarisation (1.32) muß also um einen ortsabhängigen Anteil erweitert werden, so dass man

$$P_i^L(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 \int_V \int_{-\infty}^{+\infty} \chi_{ij}(\vec{r} - \vec{r}', t - t') E_j(\vec{r}', t') dt' d\vec{r}' \quad (3.12)$$

erhält. Die Polarisation im Frequenzraum kann man wiederum mit Hilfe des Faltungssatzes berechnen, und man findet

$$\vec{P}_i^L(\vec{r}, \omega) = \varepsilon_0 \int_V \chi_{ij}(\vec{r} - \vec{r}', \omega) \vec{E}_j(\vec{r}', \omega) d\vec{r}'. \quad (3.13)$$

Das elektrische Feld wird nun in eine Taylorreihe um \vec{r} entwickelt, da angenommen werden kann, daß $\chi_{ij}(\vec{r} - \vec{r}')$ für $|\vec{r} - \vec{r}'| \gg \lambda$ sehr schnell abklingt.

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}', \omega) &= \vec{E}(\vec{r}', \omega) \Big|_{\vec{r}'=\vec{r}} + \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}', \omega)}{\partial \vec{r}} \Big|_{\vec{r}'=\vec{r}} (\vec{r}' - \vec{r}) + \dots \\ &= \vec{E}(\vec{r}, \omega) + \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, \omega)}{\partial \vec{r}} (\vec{r}' - \vec{r}) + \dots \end{aligned} \quad (3.14)$$

Setzt man diese Entwicklung in die Definition der Polarisation (3.13) ein, erhält man

$$\begin{aligned} \vec{P}_i^L(\vec{r}, \omega) &= \varepsilon_0 \underbrace{\int_V \chi_{ij}(\vec{r} - \vec{r}', \omega) d\vec{r}'}_{\chi_{ij}(\omega)} \vec{E}_j(\vec{r}, \omega) + \varepsilon_0 \underbrace{\int_V \chi_{ij}(\vec{r} - \vec{r}', \omega) (r'_k - r_k) d\vec{r}'}_{\Gamma_{ijk}(\omega)} \frac{\partial \vec{E}_j(\vec{r}, \omega)}{\partial r_k} \\ &= \varepsilon_0 \left[\chi_{ij}(\omega) \vec{E}_j(\vec{r}, \omega) + \Gamma_{ijk}(\omega) \nabla_k \vec{E}_j(\vec{r}, \omega) \right]. \end{aligned} \quad (3.15)$$

Die Polarisation setzt sich also aus 2 Anteilen zusammen. Der erste Term beschreibt die bereits bekannte lokale Response. Der zweite Term beschreibt den Beitrag der Umgebung zur Response.

Der im folgenden benutzte Ansatz des 3-Elektronenmodells lehnt sich an das allgemeine Modell an, das in [37] angegeben ist.

Das Potential des Elektrons u wird mit U_u bezeichnet. Für nichtwechselwirkende Teilchen ist dieses Potential alleine von der Verschiebung des Teilchens u aus der Ruhelage abhängig: $U_u = U_u(\delta \vec{r}_u)$. Für den zu betrachteten Fall der Wechselwirkung untereinander hängt das Potential zusätzlich von den Auslenkungen aller Teilchen ab:

$$U_u = U_u(\delta \vec{r}_v) \quad (3.16)$$

Die Wechselwirkung verschiedener Teilchen wird nur im Rahmen der Nächste-Nachbar-Wechselwirkung betrachtet, das heißt

$$U_u = U_u(\delta\vec{r}_{u-1}, \delta\vec{r}_u, \delta\vec{r}_{u+1}). \quad (3.17)$$

In eine Taylorreihe entwickelt, läßt sich das Potential wie folgt schreiben:

$$U_u(\delta\vec{r}_{u-1}, \delta\vec{r}_u, \delta\vec{r}_{u+1}) = U_u^{(0)} + U_u^{(1)}(\delta\vec{r}_{u-1}, \delta\vec{r}_u, \delta\vec{r}_{u+1}) + U_u^{(2)}(\delta\vec{r}_{u-1}, \delta\vec{r}_u, \delta\vec{r}_{u+1}) + \dots \quad (3.18)$$

Im Grundzustand soll das Potential Null sein, deshalb gilt $U_u^{(0)} = 0$. Die linearen Terme werden ebenfalls Null gesetzt, da die Kraft nicht konstant sein darf. Die Taylorentwicklung 2. Ordnung einer Funktion der Form $U_u(\delta\vec{r}_{u-1}, \delta\vec{r}_u, \delta\vec{r}_{u+1})$ ist nach [38] folgendermaßen definiert:

$$U_u^{(2)}(\delta\vec{r}_{u-1}, \delta\vec{r}_u, \delta\vec{r}_{u+1}) = \frac{1}{2} \sum_{vw} \sum_{ij} \frac{\partial^2 U_u}{\partial \delta(\vec{r}_v)_i \partial \delta(\vec{r}_w)_j} \Big|_{\delta\vec{r}_{v/w}=0} \delta(\vec{r}_v)_i \delta(\vec{r}_w)_j. \quad (3.19)$$

Die Indizes v und w geben das jeweilige Elektron an und laufen von $u-1$ bis $u+1$; die Indizes i und j bezeichnen die kartesischen Koordinaten. Wegen (3.4) entfallen die Komponenten des Normalenvektors, und man erhält

$$U_u^{(2)}(\delta\vec{r}_{u-1}, \delta\vec{r}_u, \delta\vec{r}_{u+1}) = U_u^{(2)}(q_{u-1}, q_u, q_{u+1}) = \frac{1}{2} \sum_{vw} \frac{\partial^2 U_u}{\partial q_v \partial q_w} \Big|_{q_{v/w}=0} q_v q_w. \quad (3.20)$$

Für gleiche Summationsindizes ($v = w$) entspricht der Summand dem Federpotential eines einfach gebundenen Elektrons; andernfalls beschreibt er die Wechselwirkung zwischen verschiedenen Elektronen. Um die Lagrange-Gleichungen II. Art aufzustellen, benötigt man die kinetische Energie der Elektronen.

$$T = \sum_u T_u = \sum_u \frac{m}{2} \left(\frac{\partial \delta\vec{r}_u}{\partial t} \right)^2 + e \sum_u \left(\frac{\partial \delta\vec{r}_u}{\partial t} \right) \vec{A}(z_u) = \sum_u \frac{m}{2} \dot{q}_u^2 + e \sum_u \dot{q}_u \vec{A}(z_u) \vec{n}_u \quad (3.21)$$

Für die Bewegungsgleichungen erhält man daraus:

$$m\ddot{q}_u + \frac{\partial U_u^{(2)}}{\partial q_u} = e\vec{n}_u \vec{E}(z_u). \quad (3.22)$$

Entscheidend für die Kopplung ist also der Term $\frac{\partial U_u^{(2)}}{\partial q_u}$. Mit (3.20) ergibt sich

$$\frac{\partial U_u^{(2)}}{\partial q_u} = \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial q_u} \left(\sum_{vw} \frac{\partial^2 U_u}{\partial q_v \partial q_w} \Big|_{q_{v/w}=0} q_v q_w \right). \quad (3.23)$$

Die partielle Ableitung nach q_u wirkt nur auf die beiden Faktoren q_v und q_w . In der folgenden Tabelle sind die Summanden

$$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 U_u}{\partial q_v \partial q_w} \Big|_{q_{v/w}=0} \frac{\partial}{\partial q_u} (q_v q_w)$$

aufgeführt.

$v \setminus w$	$u-1$	u	$u+1$
$u-1$	0	$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 U_u^{(2)}}{\partial q_{u-1} \partial q_u} \Big _{q_{v/w}=0} q_{u-1}$	0
u	$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 U_u^{(2)}}{\partial q_u \partial q_{u-1}} \Big _{q_{v/w}=0} q_{u-1}$	$\tilde{\omega}_0^2 q_u$	$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 U_u^{(2)}}{\partial q_u \partial q_{u+1}} \Big _{q_{v/w}=0} q_{u+1}$
$u+1$	0	$\frac{1}{2} \frac{\partial^2 U_u^{(2)}}{\partial q_{u+1} \partial q_u} \Big _{q_{v/w}=0} q_{u+1}$	0

Die Wechselwirkungen zwischen den Elektronen u und $u-1$ sowie den Elektronen u und $u+1$ sind gleich stark, so daß gilt

$$\left| \frac{\partial^2 U_u^{(2)}}{\partial q_u \partial q_{u-1}} \Big|_{q_{v/w}=0} \right| = \left| \frac{\partial^2 U_u^{(2)}}{\partial q_u \partial q_{u+1}} \Big|_{q_{v/w}=0} \right| \equiv \tilde{\omega}_\xi^2. \quad (3.24)$$

Um das Vorzeichen zu bestimmen, muß Abbildung 3.5 herangezogen werden. Zunächst soll das Elektron $u=0$ in seiner Ruhelage $q_0=0$ betrachtet werden. Die Wechselwirkungskraft, die im wesentlichen durch die Coulombkraft bestimmt ist, wird größer, wenn sich die beiden benachbarten Elektronen ($u=-1$ und $u=1$) auf das Elektron 0 zubewegen, das heißt, wenn $q_{-1} < 0$ und $q_1 > 0$ gilt. Die beiden Wechselwirkungskräfte unterscheiden sich also nur um das Vorzeichen. Dieselben Betrachtungen gelten auch für das Elektron 1. Hier muß für die Auslenkung der Nachbarerlektronen $q_2 > 0$ und $q_0 < 0$ gelten. Aufgrund der 3-zähligen Symmetrie kann man die Bewegung des Elektrons 2 auch durch die Bewegung des Elektrons -1 ausdrücken. Der einzige Unterschied zwischen beiden ist ein Phasenterm, der vom ortsabhängigen Teil des elektrischen Feldes verursacht wird. Um die nachfolgenden Gleichungen nicht zu verkomplizieren, wird er nicht mitgeschrieben. Er muß aber bei der Berechnung der Polarisation wieder hinzugenommen werden. Die Bewegungsgleichungen lauten also:

$$\begin{aligned} \ddot{q}_{-1} + \omega_0^2 q_{-1} + \omega_\xi^2 q_1 - \omega_\xi^2 q_0 &= \frac{e}{m} \vec{n}_{-1} \vec{E}(z_{-1}) \\ \ddot{q}_0 + \omega_0^2 q_0 + \omega_\xi^2 q_{-1} - \omega_\xi^2 q_1 &= \frac{e}{m} \vec{n}_0 \vec{E}(z_0) \\ \ddot{q}_1 + \omega_0^2 q_1 + \omega_\xi^2 q_0 - \omega_\xi^2 q_{-1} &= \frac{e}{m} \vec{n}_1 \vec{E}(z_1). \end{aligned} \quad (3.25)$$

Die Fouriertransformierte der Bewegungsgleichungen wird in Matrixschreibweise dargestellt.

$$\underbrace{\begin{pmatrix} \omega_0^2 - \omega^2 & -\omega_\xi^2 & \omega_\xi^2 \\ \omega_\xi^2 & \omega_0^2 - \omega^2 & -\omega_\xi^2 \\ -\omega_\xi^2 & \omega_\xi^2 & \omega_0^2 - \omega^2 \end{pmatrix}}_{\zeta} \begin{pmatrix} \tilde{q}_{-1} \\ \tilde{q}_0 \\ \tilde{q}_1 \end{pmatrix} = -\frac{e}{m} \begin{pmatrix} \vec{n}_{-1} \vec{E}(z_{-1}) \\ \vec{n}_0 \vec{E}(z_0) \\ \vec{n}_1 \vec{E}(z_1) \end{pmatrix} \quad (3.26)$$

Zur Lösung der Bewegungsgleichungen muß die inverse Matrix ζ^{-1} bestimmt werden.

$$\zeta^{-1} = \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2)((\omega_0^2 - \omega^2)^2 + 3\omega_\xi^2)} \begin{pmatrix} (\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega_\xi^4 & -\omega_\xi^2(-\omega_\xi^2 - \omega_0^2 + \omega^2) & \omega_\xi^2(\omega_\xi^2 - \omega_0^2 + \omega^2) \\ \omega_\xi^2(\omega_\xi^2 - \omega_0^2 + \omega^2) & (\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega_\xi^4 & -\omega_\xi^2(-\omega_\xi^2 - \omega_0^2 + \omega^2) \\ -\omega_\xi^2(-\omega_\xi^2 - \omega_0^2 + \omega^2) & \omega_\xi^2(\omega_\xi^2 - \omega_0^2 + \omega^2) & (\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega_\xi^4 \end{pmatrix} \quad (3.27)$$

Die Polarisation erhält man, wenn man die Stromdichte der bewegten Ladungen betrachtet. Der induzierte Strom ist das Volumenintegral der Stromdichte über das betrachtete Gebiet [37].

$$\begin{aligned} \vec{J}(\vec{r}, t) &= \frac{1}{\delta V} \int_{\delta V} (-e) \sum_u \vec{n}_u \frac{dq_u(\vec{r}_0, t)}{dt} \delta(\vec{r} - \vec{r}_0 - \vec{r}_u^{\text{ges}}) d\vec{r}_0 \\ &= \frac{-eN}{3} \sum_u \vec{n}_u \frac{dq_u(\vec{r}_0, t)}{dt} \Big|_{\vec{r}_0 = \vec{r} - \vec{r}_u^{\text{ges}}} \end{aligned} \quad (3.28)$$

Die Zeitableitung wirkt nur auf das elektrische Feld und führt zu einem Faktor ($i\omega$). Die zeitliche Ableitung der induzierten Polarisation \vec{P} ist der Polarisationsstrom \vec{J} , das heißt, der Faktor ($i\omega$) fällt wieder heraus und man erhält für die induzierte Polarisation:

$$\vec{P} = \frac{eN}{3} \sum_u \vec{n}_u q_u(t) = \frac{e^2 N}{3m} \sum_{uv} \vec{n}_u \zeta_{uv}^{-1} (\vec{n}_v \vec{E}(z_v)). \quad (3.29)$$

Das elektrische Feld wird nun in eine Taylorreihe bezüglich z ($e^{\pm ikz} \approx 1 \pm ikz \pm \dots$) entwickelt. Außerdem muß die induzierte Polarisation auf die Form (1.34) gebracht werden.

$$P_i = \sum_j \frac{\epsilon_0}{3} \omega_P^2 \sum_{uv} \zeta_{uv}^{-1} (\vec{n}_u)_i (\vec{n}_v)_j (\vec{E}(z_u))_j [1 - ik(z_v - z_u)] \quad (3.30)$$

Für den lokalen Teil des Suszeptibilitätstensor $\vec{\chi}$ erhält man also

$$\chi_{ij} = \frac{\omega_{\text{P}}^2}{3} \sum_{uv} \varsigma_{uv}^{-1} (\vec{n}_u)_i (\vec{n}_v)_j. \quad (3.31)$$

Bei der Berechnung des nichtlokalen Anteils Γ_{ijk} muß man noch den Phasenterm der Elektronen 2 und -2 beachten.

$$\Gamma_{ijk} = \frac{\omega_{\text{P}}^2}{3} \sum_{uv} \varsigma_{uv}^{-1} (\vec{n}_u)_i (\vec{n}_v)_j (z_u - z_v) \quad (3.32)$$

Mit den Normalenvektoren für die linkshändige Helix erhält man damit

$$\begin{aligned} \chi_{xx} = \chi_{yy} &= \frac{1}{2} \frac{\omega_{\text{P}}^2 (\omega_0^2 - \omega_{\text{L}}^2)}{(\omega_0^2 - \omega_{\text{L}}^2)^2 + 3\omega_{\xi}^4} \\ \chi_{yx} = -\chi_{xy} &= \frac{1}{2} \frac{\omega_{\text{P}}^2 \omega_{\xi}^2 \sqrt{3}}{(\omega_0^2 - \omega_{\text{L}}^2)^2 + 3\omega_{\xi}^4} \\ \Gamma_{xyz} = -\Gamma_{yxz} &= \frac{1}{2} \frac{-\omega_{\text{P}}^2 \omega_{\xi}^4 \sqrt{3} \frac{h}{3}}{(\omega_{\text{L}}^2 - \omega_0^2) ((\omega_{\text{L}}^2 - \omega_0^2)^2 + 3\omega_{\xi}^4)}. \end{aligned}$$

Vernachlässigt man im Nenner den Wechselwirkungsterm gegen die anderen Terme, erhält man

$$\chi_{xx} = \frac{1}{2} \frac{\omega_{\text{P}}^2}{\omega_0^2 - \omega_{\text{L}}^2} \quad (3.33)$$

$$\chi_{xy} = \frac{1}{2} \frac{\omega_{\text{P}}^2 \omega_{\xi}^2 \sqrt{3}}{(\omega_0^2 - \omega_{\text{L}}^2)^2} \quad (3.34)$$

$$\Gamma_{xyz} = \frac{1}{2} \frac{\omega_{\text{P}}^2 \omega_{\xi}^4 \sqrt{3} \frac{h}{3}}{(\omega_0^2 - \omega_{\text{L}}^2)^3}. \quad (3.35)$$

Der für die Drehung entscheidende Suszeptibilitätstensor hat also die Form

$$\vec{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & ik\Gamma_{xyz} \\ -ik\Gamma_{xyz} & \chi_{xx} \end{pmatrix} \quad (3.36)$$

Der Unterschied zur Lösung nach dem *Kuhn-Modell* ist der Faktor $(\omega_0^2 - \omega_{\text{L}}^2)$ im Nenner der Nichtdiagonalelemente. Den spezifischen Drehwinkel kann man somit in der Form

$$\frac{\alpha}{L} = \frac{2\pi^2}{\lambda^2} \frac{-\Gamma_{yxz}}{n_0} = - \underbrace{\frac{8\pi^2 \omega_{\xi}^4 \sqrt{3} h}{3\omega_{\text{P}}^4}}_{\kappa} \frac{(n_0^2 - 1)^3}{\lambda^2 n_0} \quad (3.37)$$

angeben. Er unterscheidet sich um den Faktor $n_0^2 - 1$ gegenüber dem 2-Elektronen Modell bzw. dem Faradaymodell. Ein weiterer Unterschied sind die lokalen Nichtdiagonalelemente χ_{xy} und χ_{yx} . Beim 2-Elektronenmodell stimmen die Vorzeichen dieser beiden Elemente überein. Beim Quarz-Modell besitzen beide Komponenten ein unterschiedliches Vorzeichen. Würde man eine Wechselwirkung finden, die eine imaginäre Kopplung der Form $i\omega_{\text{L}}\omega_{\xi}^*$ liefert, kann man die optische Aktivität auch für den lokalen Fall (Dipolnäherung) herleiten. Eine solche Kopplung könnte zum Beispiel ein konstantes Magnetfeld, analog dem Faradayeffekt, beinhalten. Denkbar wäre aber jede Wechselwirkung, deren Kraft proportional zur Geschwindigkeit des Elektrons ist. Die geschwindigkeitsabhängige Kraft ergibt nach Fouriertransformation den gewünschten rein imaginären Term. Das 2-Elektronen Modell läßt sich nur auf wenige Spezialfälle anwenden. Eine Elektronenanordnung auf einer Helix muß aus mindestens 3 Elektronen bestehen, um optische Aktivität zu zeigen. Das Kuhnsche Modell läßt sich also nicht auf schraubenförmige Elektronenanordnungen anwenden.

Über die Art der Wechselwirkungskraft wurde bei der Herleitung keinerlei Aussage getroffen. Man kann

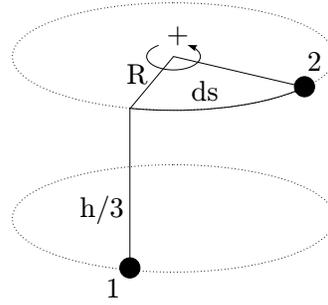


Abbildung 3.9: Zwei benachbarte Elektronen auf der Helix.

eine Abschätzung durchführen und zeigen, daß sich die Wechselwirkungskraft durch die Coulombkraft zwischen den Elektronen darstellen läßt. Es sollen zwei direkt benachbarte Elektronen betrachtet werden (Abbildung 3.9).

Aus den Daten über die Atomlagen in der Elementarzelle, erhält man für die Parameter der Helix $h = 5,4 \text{ \AA}$ und $R \approx 1,4 \text{ \AA}$. Den Abstand der Elektronen kann man mittels $|r| = \sqrt{\frac{h^2}{3^2} + (s_0 + q_2 - q_1)^2}$ berechnen. Die gemischten zweifachen Ableitungen des Potentials ergeben $\frac{\partial^2 \varphi}{\partial q_1 \partial q_2} \approx -0,42 \cdot 10^{20} \text{ Vm}^{-2}$. Für die Kopplungskonstante ω_ξ^2 folgt deshalb $\omega_\xi^2 = 7,39 \cdot 10^{30} \text{ Hz}^2$. Damit folgt für $\omega_\xi = 2,7 \cdot 10^{15} \text{ Hz}$. Nach Bestimmung der Materialkonstanten, kann man auf ω_ξ zurückrechnen und das Ergebnis vergleichen.

3.3 Nichtlineare optische Aktivität

Um das Modell der linearen optischen Aktivität auf nichtlineare Effekte zu erweitern, geht man in die Bewegungsgleichungen (3.26) ein und erweitert die Auslenkung um einen kubischen Term. Die folgende Bewegungsgleichung gilt für das Elektron u . Der Index v bezeichnet die benachbarten Elektronen, die Konstante $\rho(v)$ gibt das Vorzeichen der jeweiligen Wechselwirkung an.

$$m\ddot{q}_u + \omega_0^2 (q_u - Kq_u^3) + \sum_v \omega_\xi^2 \rho(v) q_v = e\vec{n}_u \vec{E}(z_u) \quad (3.38)$$

Die Lösung erfolgt mittels Störungsrechnung nach dem nichtlinearen Term. Die Gleichungen nullter und erster Ordnung Störungsrechnung lauten

$$\begin{aligned} \lambda = 0 : \quad & m\ddot{q}_u^{(0)} + \omega_0^2 q_u^{(0)} + \sum_v \omega_\xi^2 \rho(v) q_v^{(0)} = e\vec{n}_u \vec{E}(z_u) \\ \lambda = 1 : \quad & m\ddot{q}_u^{(1)} + \omega_0^2 q_u^{(1)} + \sum_v \omega_\xi^2 \rho(v) q_v^{(1)} = \omega_0^2 K (q_u^{(0)})^3. \end{aligned}$$

Die Lösung von $q_u^{(0)}$ ist aus dem vorigen Abschnitt bereits bekannt.

$$q_u^{(0)} = \frac{e}{m} \sum_v \zeta_{uv}^{-1} (\vec{n}_v \vec{E}(z_v)) \quad (3.39)$$

Zunächst muß also $(q_u^{(0)})^3$ berechnet werden. Mit der Definition des elektrischen Feldes (1.8) kann man diesen Term wie folgt schreiben:

$$\left(q_u^{(0)} \right)^3 = \left[\underbrace{-\frac{e}{m} \sum_w \zeta_{uw}^{-1} \left(\vec{n}_w \frac{\vec{E}_0}{2} \right) e^{ik(z_u - z_w)} e^{i(\omega_L t - kz_u)}}_{F_u} + \text{c.c.} \right]^3$$

$$\begin{aligned}
 &= \left[F_u e^{i(\omega_L t - k z_u)} + F_u^* e^{-i(\omega_L t - k z_u)} \right]^3 \\
 &= 3F_u |F_u|^2 e^{i(\omega_L t - k z_u)} + \text{c.c.}
 \end{aligned} \tag{3.40}$$

Beim letzten Schritt wurden die Terme mit $3\omega_L$ wieder weggelassen. Zur Lösung von $q_u^{(1)}$ muß man erneut die inverse Matrix bilden (3.27). Der nichtlineare lokale bzw. nichtlokale Suszeptibilitätstensor lautet also

$$\chi_{ij}^{\text{NL}} = \frac{\omega_P^2}{3} \sum_{uv} \varsigma_{uv}^{-1} (\vec{n}_u)_i \frac{3}{4} \omega_0^2 K |E_0|^2 \left(\frac{e}{m} \right)^2 \left(\sum_w \varsigma_{vw}^{-1} (\vec{n}_w)_j \right)^3 \tag{3.41}$$

$$\Gamma_{ijk}^{\text{NL}} = \frac{\omega_P^2}{3} \sum_{uv} \varsigma_{uv}^{-1} (\vec{n}_u)_i \frac{3}{4} \omega_0^2 K |E_0|^2 \left(\frac{e}{m} \right)^2 \left(\sum_w \varsigma_{vw}^{-1} (\vec{n}_w)_j \right)^3 (z_u - z_v). \tag{3.42}$$

Für die Helix erhält man

$$\begin{aligned}
 \chi_{xx}^{\text{NL}} = \chi_{yy}^{\text{NL}} &= \frac{9}{8} \left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{\frac{3}{4} \omega_P^2 \omega_0^2 K |E_0|^2}{((\omega_0^2 - \omega_L^2)^2 + 3\omega_\xi^4)} \\
 \chi_{yx}^{\text{NL}} = -\chi_{xy}^{\text{NL}} &= \frac{9}{8} \left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{\frac{3}{4} \omega_P^2 \omega_0^2 K |E_0|^2 \omega_\xi^2 \sqrt{3}}{((\omega_0^2 - \omega_L^2)^2 + 3\omega_\xi^4)(\omega_0^2 - \omega_L^2)} \\
 \Gamma_{xyz}^{\text{NL}} = -\Gamma_{yxz}^{\text{NL}} &= \frac{9}{4} \left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{-\frac{3}{4} \omega_P^2 \omega_0^2 K |E_0|^2 \omega_\xi^4 \sqrt{3} \frac{h}{3}}{((\omega_0^2 - \omega_L^2)^2 + 3\omega_\xi^4)^3}.
 \end{aligned}$$

Vernachlässigt man die Wechselwirkungsterme im Nenner, ergibt sich

$$\chi_{xx}^{\text{NL}} = \chi_{yy}^{\text{NL}} = \frac{9}{8} \left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{\frac{3}{4} \omega_P^2 \omega_0^2 K |E_0|^2}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^4} \tag{3.43}$$

$$\chi_{yx}^{\text{NL}} = -\chi_{xy}^{\text{NL}} = \frac{9}{8} \left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{\frac{3}{4} \omega_P^2 \omega_0^2 K |E_0|^2 \omega_\xi^2 \sqrt{3}}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^6} \tag{3.44}$$

$$\Gamma_{xyz}^{\text{NL}} = -\Gamma_{yxz}^{\text{NL}} = \frac{-9}{4} \left(\frac{e}{m} \right)^2 \frac{\frac{3}{4} \omega_P^2 \omega_0^2 K |E_0|^2 \omega_\xi^4 \sqrt{3} \frac{h}{3}}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^6}. \tag{3.45}$$

Der Brechungsindex für links- und rechtszirkular polarisiertes Licht kann man mittels (1.48) folgendermaßen aufschreiben.

$$n_{\circlearrowleft/\circlearrowright} = \sqrt{1 + \chi_{xx} \mp k\Gamma_{xyz} + \chi_{xx}^{\text{NL}} \mp k\Gamma_{xyz}^{\text{NL}}} \tag{3.46}$$

Γ_{yxz}^{NL} kann auch durch den nichtlinearen Brechungsindex $n_2 I = \frac{\chi_{xx}^{\text{NL}}}{2n_0}$ und Γ_{xyz} ausgedrückt werden.

$$\begin{aligned}
 \Gamma_{xyz}^{\text{NL}} &= -2 \frac{\omega_\xi^4 \sqrt{3} \frac{h}{3}}{(\omega_0^2 - \omega_L^2)^2} \chi_{xx}^{\text{NL}} \\
 &= -4 \frac{\omega_0^2 - \omega_L^2}{\omega_P^2} \chi_{xx}^{\text{NL}} \Gamma_{xyz} \\
 &= -2 \frac{2n_0 \Gamma_{xyz}}{(n_0^2 - 1)} n_2 I
 \end{aligned}$$

Damit folgt für den Gesamtbrechungsindex:

$$n_{\circlearrowleft/\circlearrowright} \approx n_0 \mp \frac{k\Gamma_{xyz}}{2n_0} + n_2 \frac{I}{2} \pm 2 \frac{k\Gamma_{xyz}}{(n_0^2 - 1)} n_2 \frac{I}{2}. \tag{3.47}$$

Der nichtlineare Drehwinkel besitzt ein anderes Vorzeichen als der lineare Drehwinkel, er wirkt dem linearen Effekt also entgegen. Dieses Ergebnis wurde auch in [37] für das *Kuhn-Modell* hergeleitet. Der

Betrag stimmt bis auf den Faktor $\frac{1}{2}$ mit dem Ergebnis des nichtlinearen Faradayeffekts überein. Analog zu (2.36) kann man die Größenordnung des nichtlinearen Drehwinkels angeben.

$$\frac{\Delta\alpha^{\text{NL}}}{\alpha} = -2 \frac{n_0}{n_0^2 - 1} n_2 I \quad (3.48)$$

Für die Parameter der Abschätzung beim nichtlinearen Faradayeffekt (2.36) erhält man den halben Wert der Faraday-Abschätzung.

$$\Delta\alpha^{\text{NL}} = 2,5 \cdot 10^{-5} \cdot \alpha.$$

Ausgehend von der Kristallstruktur wurde ein Modell für die lineare und nichtlineare optische Aktivität von Quarz entwickelt. Das Ergebnis unterscheidet sich qualitativ von den Resultaten des 2-Elektronenmodell, das *Kuhn* entwickelte. Die nichtlineare Drehung ist der linearen Drehung entgegengerichtet, daß heißt der Drehwinkel würde sich mit steigenden Intensitäten reduzieren. Auch hier konnte der nichtlineare Drehwinkel aus bereits bekannten Materialkonstanten bestimmt werden.

Kapitel 4

Experimente

4.1 Lasersystem

Die experimentellen Arbeiten wurden an einem Ti-Sa-System durchgeführt, das in Abbildung 4.1 abgebildet ist.

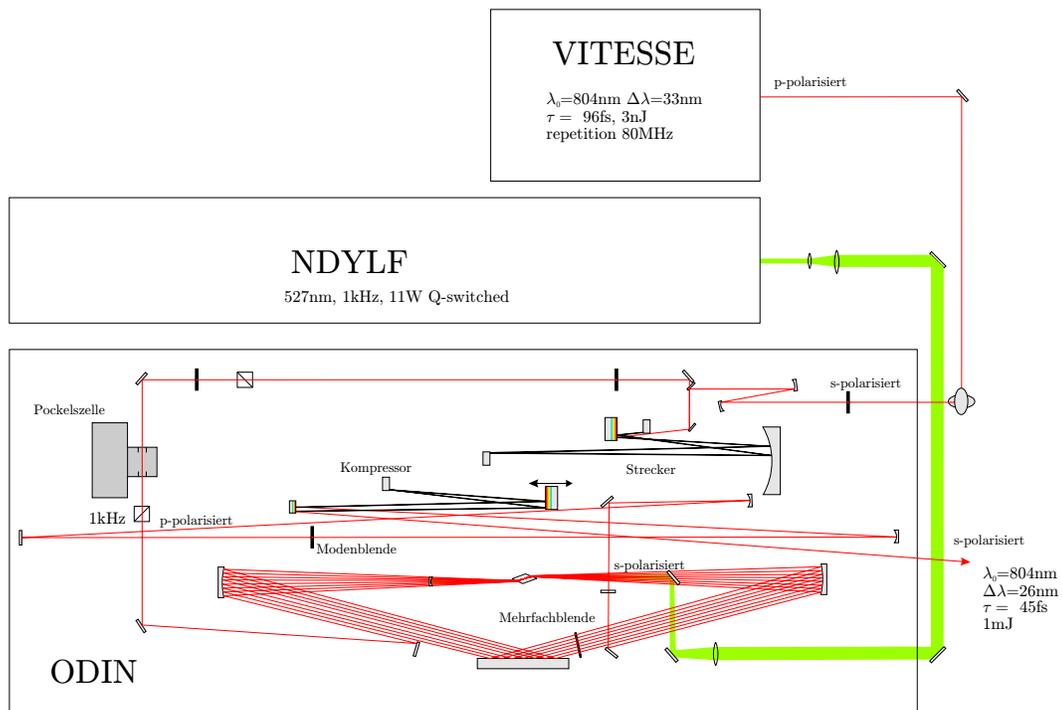


Abbildung 4.1: Das kHz-System erzeugt 45 fs kurze Pulse mit einer Energie von 1 mJ und einer Repetitionsrate von 1 kHz.

Zunächst werden in dem Vitesse-Oszillator durch Modenkopplung gechirpte Pulse mit einer zeitlichen Halbwertsbreite $\tau = 96 \text{ fs}$, einer spektralen Halbwertsbreite $\Delta\lambda = 32 \text{ nm}$ und einer Energie von 3 nJ erzeugt. Die Repetitionsrate des Oszillators beträgt 80 MHz . Dieser Pulszug wird in einem Multi-passverstärker (ODIN) zeitlich gestreckt. Eine Pockelszelle mit einer Repetitionsrate von 1 kHz schneidet jeden 80.000 Puls heraus. Dann durchläuft dieser Strahl einen Ti-Sa-Kristall, der von einem gütegeschalteten Nd-YLF-Laser bei einer Wellenlänge von 527 nm gepumpt wird. Nach 8 Durchgängen durch den Kristall wird der Puls wieder komprimiert, und man erhält Pulse mit einer zeitlichen Halbwertsbreite

von $\tau = 45$ fs, einer spektralen Halbwertsbreite $\Delta\lambda = 26$ nm und einer Pulsenergie von 1 mJ bei einer Zentralwellenlänge von 804 nm.

4.2 Rotationsdispersion

Für die Experimente standen 3 Quarz-Kristalle der Firma KORTH mit folgenden Daten zur Verfügung.

Bezeichnung	α bei 800 nm	Dicke
+90Q	+90 deg	7,847 mm
-60Q	-60 deg	5,323 mm
+15Q	+15 deg	1,308 mm

Zusätzlich wurde mit einem Faraday-Rotator der Firma Altechna experimentiert. Der Permanentmagnet konnte stufenlos über den Faradaykristall (TGG: Terbium Gallium Garnet) geschoben werden, so daß das effektive Magnetfeld und damit der Drehwinkel geändert werden konnte. Die Länge des Faraday-Kristalls betrug 17,05 mm. Die Kalibration der Abhängigkeit des Drehwinkels von der Stellung des Permanentmagneten erfolgte mit dem Oszillator des kHz-Systems bei 804 nm. Abbildung 4.2 zeigt die zugehörigen Messungen.

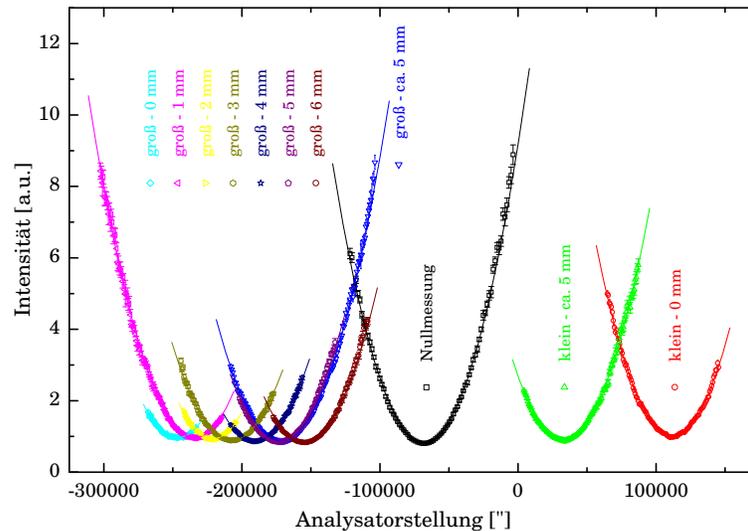


Abbildung 4.2: Messung des absoluten Drehwinkels in Abhängigkeit von der Verschiebung des Permanentmagneten. Die Bezeichnung *klein* bzw. *groß* bezieht sich auf die Transmissionsrichtung durch den Faradayrotator. Die Messung erfolgte mit dem Oszillator des kHz-Systems. Die Intensität wurde mit einer Photodiode gemessen.

Der absolute Drehwinkel in Abhängigkeit der Verschiebung des Permanentmagneten ist in Abbildung 4.3 dargestellt.

Durch die Meßwerte wurde ein Polynomfit zweiten Grades gelegt.

$$\alpha = -49,53 \text{ deg} + 3,136 \frac{\text{deg}}{\text{mm}} \cdot d + 0,183 \frac{\text{deg}}{\text{mm}^2} \cdot d^2 \quad (4.1)$$

Die Rotationsdispersion wurde mit einem UV/VIS-Spektralphotometer – Typ Specord M 400 der Firma Carl Zeiss Jena bestimmt. Dazu wurde der Polarisator, die Probe und der drehbare Analysator in den Strahlengang des Specords gestellt und bei verschiedenen Analysatorstellungen und Wellenlängen die transmittierte Intensität bestimmt. Der Aufbau im Specord ist in Abbildung 4.4 skizziert.

Die Ergebnisse für die -60-Quarz und die +90-Quarz-Probe, sowie für den Faraday-Rotator sind in den Abbildungen 4.5, 4.6 und 4.7 zu sehen.

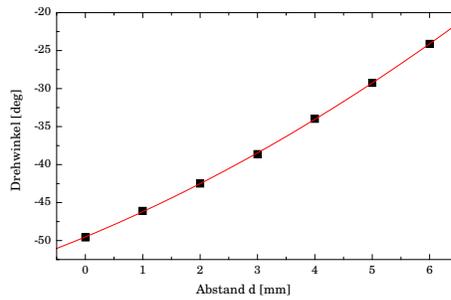


Abbildung 4.3: Abhängigkeit des Drehwinkels des Faraday-Rotators von der Stellung des Permanentmagneten.

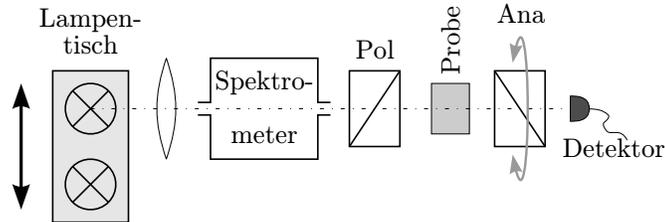


Abbildung 4.4: Die Probe wurde zwischen Polarisator und Analysator in den Strahlengang des Specord eingebracht. Es kann zwischen verschiedenen Lampen gewählt werden, um im UV bzw. VIS zu messen. Der Polarisator wird mit monochromatischem Licht bestrahlt und erzeugt linear polarisiertes Licht. Der Analysator ist drehbar gelagert. Die Messung der Intensität erfolgt in Abhängigkeit der Wellenlänge und des Analysatorwinkels.

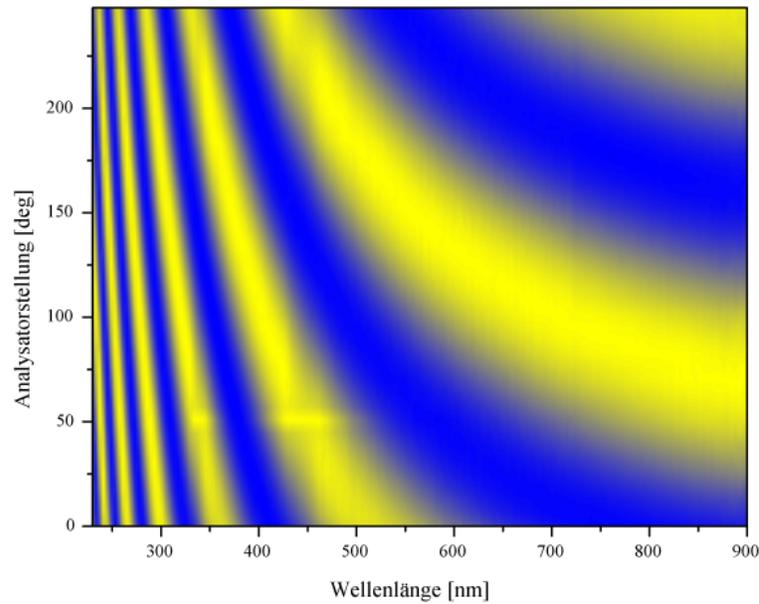


Abbildung 4.5: Specord-Messung der Rotationsdispersion des -60-Quarz. Auf der Ordinate ist die Analysatorstellung, auf der Abzisse die Wellenlänge aufgetragen. Schneidet man entlang der Analysator-Achse, sieht man die \cos^2 -Funktion des Analysators. Blickt man entlang der Wellenlängen-Achse, sieht man die wellenlängenabhängige Phasendifferenz zwischen links- und rechtszirkular polarisiertem Licht – die Rotationsdispersion.

Anschließend wurde ein Fit der Form

$$I = y_{\max} \sin^2(f \cdot x - \varphi) \tag{4.2}$$

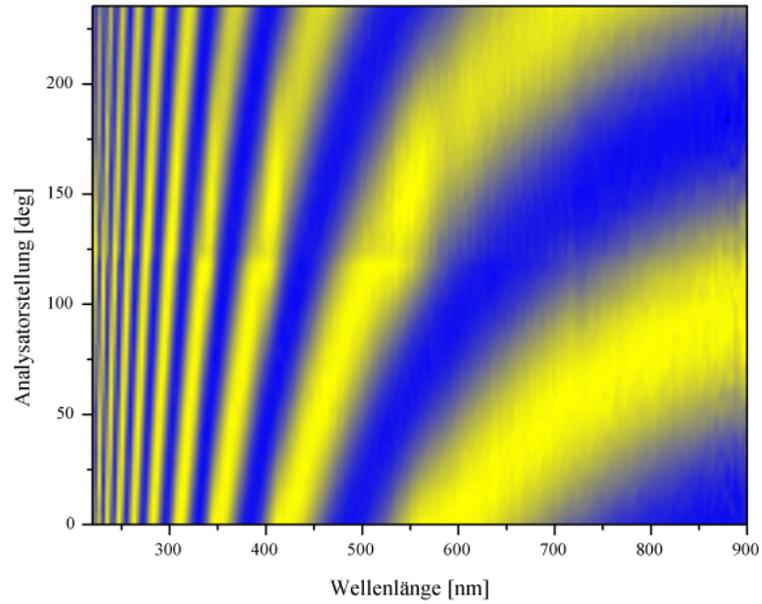


Abbildung 4.6: Specord-Messung der Rotationsdispersion des +90-Quarz

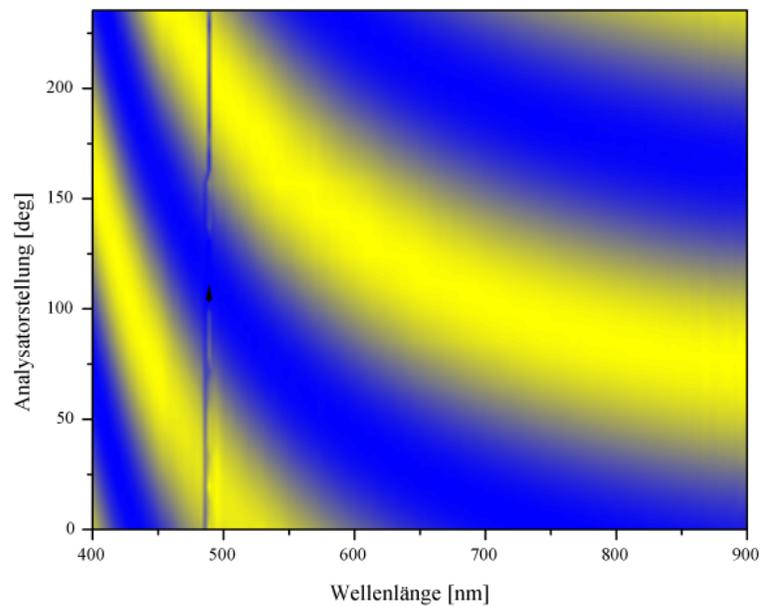


Abbildung 4.7: Specord-Messung der Rotationsdispersion des Faraday-Rotator bei maximalen Magnetfeld (Stellung: 0 mm)

bei konstanten Wellenlängen durchgeführt. Die Frequenz f kann man zur Kalibrierung des Motors nutzen. Die Phase φ ist der wellenlängenabhängige Drehwinkel. Der ermittelte Wert ist allerdings relativ, da die absolute Stellung des Analysators nur schwer zu messen war. Deshalb wurde eine Absolutmessung bei 804 nm mit dem Oszillator des Ti-Sa-Systems durchgeführt. Die ermittelten spezifischen Drehwerte und die Literaturwerte aus [39] sind in Abbildung 4.8 dargestellt. Die Ergebnisse stimmen hervorragend mit den Literaturwerten überein.

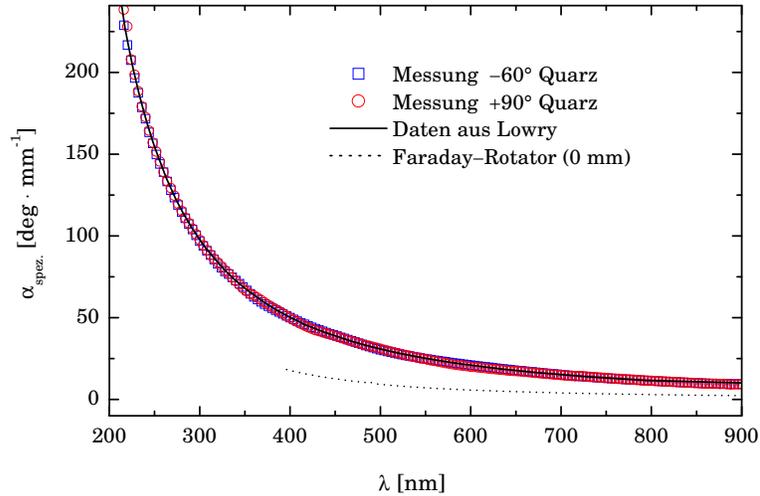


Abbildung 4.8: Absolutwert der spezifischen Drehung bei den untersuchten Quarz-Kristallen und dem Faraday-Rotator. Die Literaturwerte zum Quarz stammen aus dem Buch von Lowry [39].

Die Richtung der Drehung kann man aus den Messungen der Absolutwerte gewinnen (Abbildung 4.9). Alle Angaben beziehen sich auf die Drehrichtung des Analysators. Blickt man in Strahlrichtung, ist eine Drehung im Uhrzeigersinn positiv, entgegen dem Uhrzeigersinn, negativ. Die Drehrichtung des Faraday-Rotators ändert das Vorzeichen, wenn man den Faraday-Rotator in der entgegengesetzten Richtung benutzt. Zur Festlegung der Lage des Faraday-Rotators wurden die Bezeichnungen der Frontseite „klein“ bzw. „groß“ benutzt.

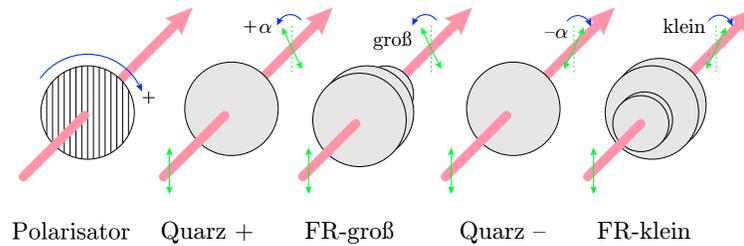


Abbildung 4.9: Drehrichtung der Quarz-Kristalle und des Faraday-Rotators. Alle Drehrichtungen sind in Bezug auf den Analysator angegeben. Eine positive Drehrichtung bedeutet eine Drehung im Uhrzeigersinn mit Blick in Strahlrichtung. Die +15-Quarz- und +90-Quarz-Kristalle sowie der Faraday-Rotator-groß drehen in negative Richtung, der -60-Quarz und der Faraday-Rotator-klein in positive Richtung.

Mit dem theoretischen Modell für den Faraday-Rotator (2.26) wurde ein Fit durchgeführt und die Konstante κ bestimmt (Abbildung 4.11). Die experimentellen Daten des Quarz wurden sowohl mit dem Kuhn-Modell (3.37) als auch mit dem 3-Elektronen-Modell (2.26) gefittet. Die zugehörigen Kurven sind in Abbildung 4.10 dargestellt.

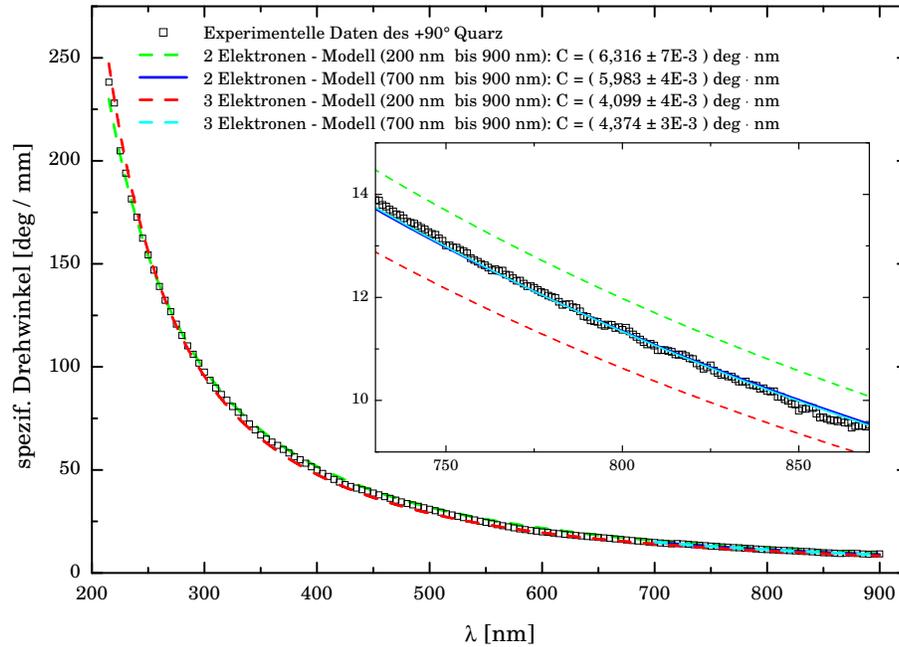


Abbildung 4.10: Bestimmung der Konstanten κ für den Quarz-Kristall. Sowohl das *Kuhn*sche 2-Elektronen-Modell, als auch das 3-Elektronen-Modell wurde an die Daten gefittet. Beide Modelle reproduzieren die experimentellen Daten. Eine Verbesserung der Parameter erreicht man, wenn man den Fit auf den Wellenlängenbereich 700–900 nm eingrenzt, denn beide Modelle wurden für den nichtresonanten Wellenlängenbereich hergeleitet.

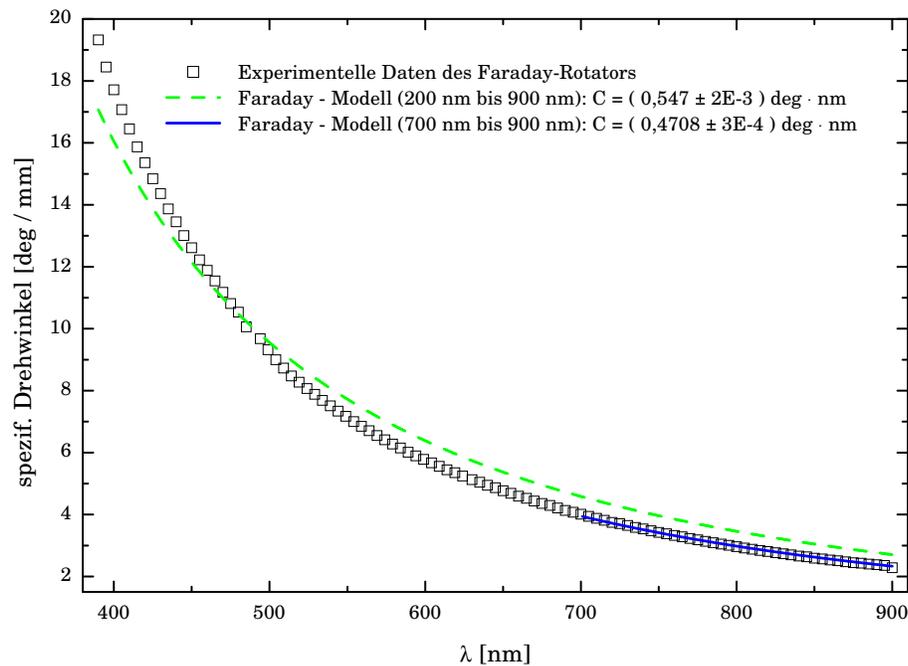


Abbildung 4.11: Bestimmung der Konstanten κ für den Faraday-Rotator. Auch hier erreicht man eine deutliche Verbesserung des Fits, wenn man den Wellenlängenbereich auf 700–900 nm eingrenzt.

Die Brechungsindizes wurden aus den entsprechenden Sellmeiergleichungen gewonnen. Die Daten zum kristallinen Quarz stammen aus [40] und die Daten zum Faraday-Kristall (TGG) aus [41].

$$n_{\text{Quarz-o}}^2 - 1 = \frac{0,663044\lambda^2}{\lambda^2 - (0,06\ \mu\text{m})^2} + \frac{0,517852\lambda^2}{\lambda^2 - (0,106\ \mu\text{m})^2} + \frac{0,175912\lambda^2}{\lambda^2 - (0,119\ \mu\text{m})^2} + \frac{0,56538\lambda^2}{\lambda^2 - (8,844\ \mu\text{m})^2} + \frac{1,675299\lambda^2}{\lambda^2 - (20,742\ \mu\text{m})^2} \quad (4.3)$$

$$n_{\text{TGG}}^2 - 1 = \frac{25,208\ \text{eV} \cdot 9,223\ \text{eV}}{(9,223\ \text{eV})^2 - \left(\frac{hc}{\lambda}\right)^2} \quad (4.4)$$

Grenzt man den Fit-Bereich auf 700 bis 900 nm ein, erhält man ein besseres Ergebnis als für den ganzen Meßbereich. Dies ist darauf zurückzuführen, daß beide Modelle für nichtresonante Anregungen hergeleitet wurden und deshalb für große Wellenlängen bessere Ergebnisse liefern.

Die Ergebnisse der beiden Modelle, die beim Quarz-Kristall genutzt wurden, liefern beide einen gute Anpassung an die Rotationsdispersion. Die Anpassung mit dem 3-Elektronen-Modell ist unwesentlich besser. Dieses Modell wird im weiteren Verlauf für die Rotationsdispersion von Quarz genutzt. Die Ergebnisse für κ lauten

Faraday-Rotator (bei 0 mm)	$\kappa = (0,4708 \pm 3 \cdot 10^{-4}) \text{ deg} \cdot \text{nm}$
Quarz	$\kappa = (4,374 \pm 3 \cdot 10^{-3}) \text{ deg} \cdot \text{nm}$

Mit (3.37) kann man die Wechselwirkungskonstante ω_ξ bestimmen. In die Plasmafrequenz $\omega_P^2 = \frac{N\epsilon^2}{m\epsilon_0}$ geht die Elektronendichte ein. Diese kann man anhand der Helixabmessungen näherungsweise angeben. In einem Zylinder der Höhe h und des Radius R sind 3 optisch aktive Elektronen. Die Elektronendichte ist also annähernd $N \approx \frac{3}{\pi R^2 h}$. Für die Plasmafrequenz erhält man somit $\omega_P = 50,4 \cdot 10^{15} \text{ Hz}$. Setzt man den κ -Wert des Fits ein und stellt nach ω_ξ um, folgt

$$\omega_\xi = 1,2 \cdot 10^{16} \text{ Hz} \quad (4.5)$$

Das Ergebnis ist um den Faktor 5 größer, als die Berechnung der Kopplungskonstante aus der Coulombwechselwirkung. Das Helixmodell ist natürlich nur idealisiert und es wurden mehrere Näherungen gemacht. Die Wechselwirkung über den Coulombkraft scheint plausibel.

4.3 Aufbau des Experiments

Ein Experiment zur Bestimmung des Polarisationszustandes nutzt in der Regel einen Polarisator, einen Analysator und einen Detektor, z. B. eine Photodiode. Die detektierte Intensität enthält die Faltung des Polarisationszustandes mit dem Winkel des Analysators α_P und die Faltung der Detektorempfindlichkeit $T(\lambda)$ mit dem Meßsignal über der Wellenlänge.

$$E(\alpha_P) = \iint \cos(\alpha - \alpha_P) E(\alpha, \lambda) \cdot T(\lambda) \, d\alpha \, d\lambda \quad (4.6)$$

Die Faltung über die Wellenlänge kann man eliminieren, wenn man statt der Photodiode ein Spektrometer benutzt. Dies ist vor allem bei ultrakurzen Pulsen von Bedeutung, da sie eine große spektrale Pulsbreite besitzen. Der experimentelle Aufbau des Experiments ist in Abbildung 4.12 dargestellt.

Zunächst wurde der Strahl des kHz-Systems linear polarisiert (P). Danach wurde das Strahlprofil mit einer Iris-Blende auf 3,5 bis 4 mm Strahldurchmesser verringert. Dies ist ein Kompromiß zwischen gleichmäßiger Intensitätsverteilung und möglichst wenig Beugungseffekten an der Lochblende. Nach Durchgang durch die Lochblende passiert der Strahl den Quarz-Kristall bzw. den Faraday-Rotator. Um nachfolgende nicht-lineare Effekte (z. B. in (A)) zu vermeiden, wird der Glasplattenreflex des Laserstrahls untersucht. Der Analysator (A) ist drehbar gelagert und wird mit einem Schrittmotor gesteuert. Die Positionierungsgenauigkeit des Motors liegt bei 0,04 Bogensekunden und damit unterhalb der geforderten Genauigkeit. Der transmittierte Strahl gelangt über 2 Umlenkspiegel zu einem Czerny-Turner Gitterspektrometer, das

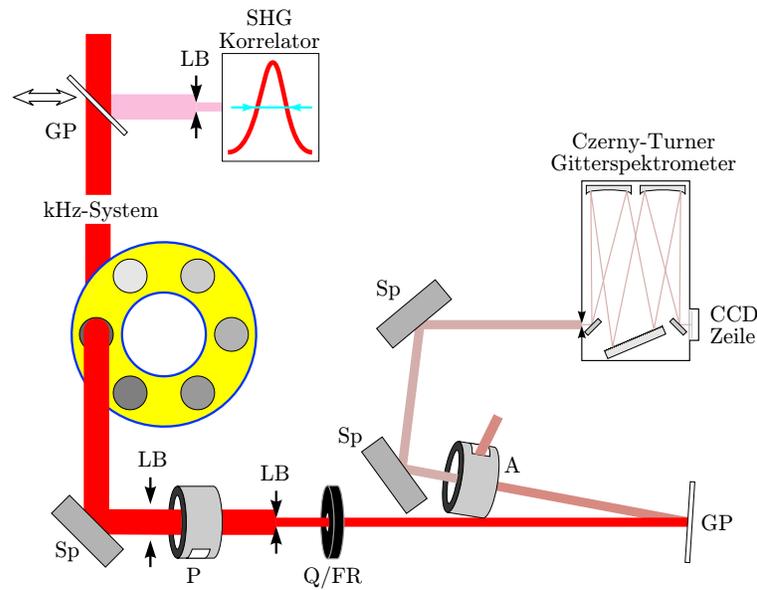


Abbildung 4.12: Skizze des experimentellen Aufbaus (Sp=HR-45°-Spiegel, LB=Lochblende, P=Polarisator, Q/FR=Quarz bzw. Faraday-Rotator, GP=Glasplatte, A=Analysator)

das Spektrum auf eine CCD-Zeile abbildet, die mit einem Computer ausgelesen wird. Die Intensität des Strahls kann mit einem Graufiltersatz abgeschwächt werden, der auf einem Filtrerrad montiert ist.

Bei Transmission durch den Polarisator erfährt der Puls eine lineare Phasenmodulation. Diese führt dazu, daß der Puls zeitlich gestreckt wird. Um sie zu kompensieren, muß der Puls vorgechirpt werden. Dazu kann man den Kompressor des Multipass-Systems nutzen. In Abbildung 4.13 sind die Halbwertsbreiten der Autokorrelationsfunktionen und der entsprechenden Gaußpulse in Abhängigkeit von der Kompressorstellung aufgetragen.

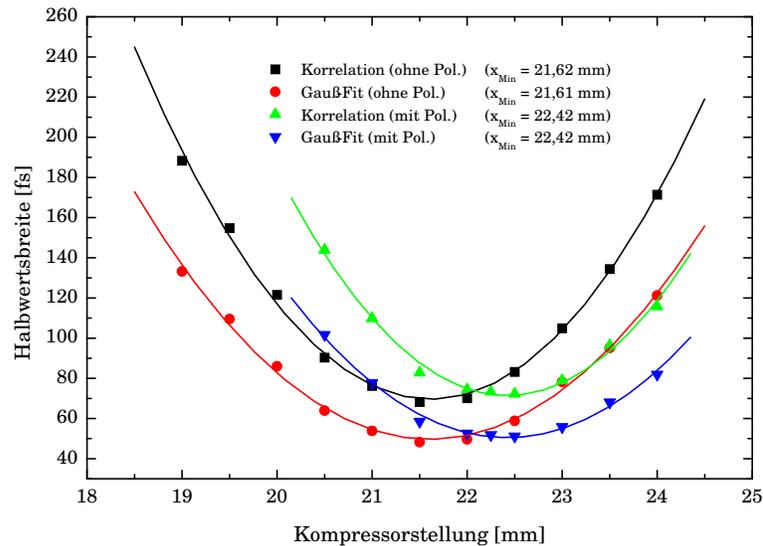


Abbildung 4.13: Halbwertsbreiten der Korrelationsfunktion und des entsprechenden Gaußpulses bei verschiedenen Kompressorstellungen. Die Messwerte wurden mit einem Polynom 2. Grades angefitet.

Zunächst wurde die kürzeste Pulsbreite ohne Polarisator bestimmt – sie beträgt 48 fs. Anschließend wurde das gleiche Experiment mit dem Polarisator vor dem Autokorrelator wiederholt – die kürzeste Pulsbreite wurde bei einer 0,8 cm größeren Kompressorstellung gefunden. Die gemessene Pulsbreite beträgt 50 fs. Die lineare Dispersion im Polarisator kann also durch den Kompressor der Verstärkereinheit kompensiert werden. Zusätzlich treten aber im Experiment auch nichtlineare Effekte im Polarisator auf, die zu einer Modulation des Spektrums und zu einer zusätzlichen Pulsverbreiterung führen und mit dem Kompressor nicht kompensiert werden können. Eine Messung des Spektrums nach dem Polarisator bei maximaler Strahlintensität ist in Abbildung 4.14 gezeigt. Auf diese Effekte wird im Kapitel Simulationen genauer eingegangen.

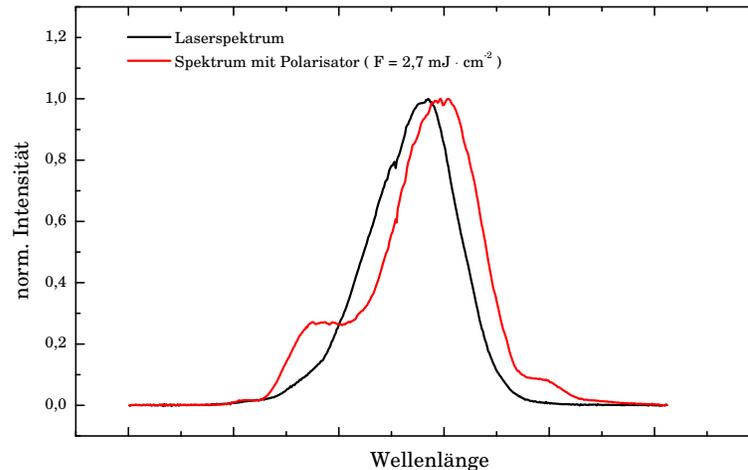


Abbildung 4.14: Durch nichtlineare Propagationseffekte im Polarisator entsteht eine spektrale Modulation des Laserpulses. Diese Messung wurde bei einer Fluenz von $2,7 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ durchgeführt.

Zur quantitativen Bestimmung der Fluenz wurde das Strahlprofil mit einer Irisblende und einem Photometer gemessen. Die Blende wurde zentrisch in den Strahl gestellt und die transmittierte Leistung bei variablen Öffnungen gemessen. In Annahme einer räumlichen Gaußverteilung sind die Fluenzen in Abhängigkeit des Radius in Abbildung 4.15 dargestellt.

4.4 Darstellung der Spektren

Ein wichtiger Punkt ist die Darstellung der Spektren und deren Interpretation. Als Meßparameter gehen der Drehwinkel des Analysators α_P , die Wellenlänge und die Intensität bzw. die Fluenz der eingestrahlten elektromagnetischen Welle ein. Die Meßgröße ist die Intensität auf dem Spektrometer. Ein guter Kompromiß ist die Darstellung in einem *Intensity-Plot*. Bei der Darstellung der Ergebnisse wird der Analysatorwinkel auf der Abszisse und die Wellenlänge auf der Ordinate abgetragen. Die gemessene Intensität auf dem Spektrometer wird mittels einer Falschfarbendarstellung aufgetragen. Die Zuordnung der einzelnen Farben zur Intensität ist im Anhang angegeben. Sowohl der Faraday-Rotator, als auch der Quarz-Kristall besitzen eine Rotationsdispersion die proportional zu $\pm \frac{1}{\lambda^2}$ ist, je nachdem welches Vorzeichen die Richtung der linearen Drehung hat. In Abbildung 4.16 sind die zu erwartenden Meßkurven dargestellt.

Bei diesen Überlegungen wurde angenommen, daß der Quarz-Kristall bzw. Faraday-Rotator und Analysator in einer Reihe standen. Im Experiment wurde eine Glasplatte benutzt, um die Fluenz des Strahls zu schwächen und so zusätzliche nichtlineare Effekte im Analysator zu vermeiden. Diese Glasplatte muß aber in die Betrachtungen mit einbezogen werden, da sie die „effektive“ Drehrichtung beeinflusst. Die im Experiment mit Glasplatte gültige Zuordnung zu zusätzlichen bzw. reduzierten Drehwinkeln ist in Abbildung 4.17 dargestellt.

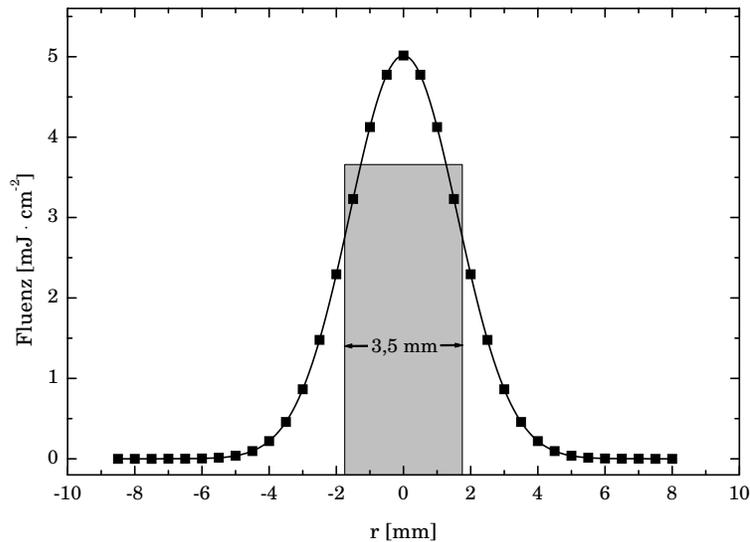


Abbildung 4.15: Das räumliche Strahlprofil in Annahme einer Gaußverteilung und einer Energie von $785 \mu\text{J}$ pro Puls. Die Halbwertsbreite wird bei ca. $3,5 \text{ mm}$ Blendendurchmesser erreicht.

4.5 Ergebnisse – Faraday-Rotator

Die Abbildungen 4.18–4.27 zeigen die Ergebnisse der Messungen am Faraday-Rotator. Die Intensität wurde durch neutrale Graufilter variiert. Die höchste Fluenz beträgt $1,34 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$, da der Kristall oberhalb dieser Fluenz Weißlicht erzeugt. Die Messung erfolgte bei Auslöschung, das heißt, der Analysator war senkrecht zur Polarisationsrichtung orientiert. Zusätzlich wurde die Analysatorstellung, bei der die Maxima links und rechts der Zentralwellenlänge gleich groß sind, durch eine weiße Linie gekennzeichnet. Dieser Winkel ist eine charakteristische Größe für eine zusätzliche Drehung. Es zeigt sich, daß diese Linie abhängig von der Fluenz des eingestrahlichten Laserfeldes ist. Der Faraday-Rotator wurde in 2 Konfigurationen gemessen, da die Richtung der linearen Drehung abhängig von der Richtung des Durchgangs durch den Faraday-Rotator ist.

In Abbildung 4.28 ist der zusätzliche Drehwinkel in Abhängigkeit der Fluenz für die gemessenen Konfigurationen dargestellt. Der zusätzliche Drehwinkel ist abhängig vom Vorzeichen und der Stärke der linearen Drehung. Besonders deutlich wird das Ergebnis für die „große“ Seite. Der zusätzliche Drehwinkel für maximales Magnetfeld (Magnetstellung 0 mm) bei $F = 1 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ beträgt $\Delta\alpha = 0,3 \text{ deg}$. Der Konvention von Abbildung 4.9 entsprechend, sind die nichtlinearen Drehwinkel zusätzliche Drehwinkel. Die spezifischen zusätzlichen Drehwerte, das heißt $\frac{\Delta\alpha}{\alpha_0}$ sind in Abbildung in Abhängigkeit von der Intensität 4.29 dargestellt. Das Ergebnis kann als Konstante α^* in der Gleichung

$$\Delta\alpha = \alpha^* \alpha_0 I \quad (4.7)$$

angegeben werden. Man erhält mit einem linearen Fit über alle Ergebnissen einen Wert von

$$\alpha^* = (2,8 \pm 0,3) 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{GW}^{-1}. \quad (4.8)$$

Die Streuung der Meßergebnisse bei der Ermittlung des Anstiegs ist groß. Besonders die Meßreihe der „kleinen“ Seite bei 0 mm Magnetstellung weicht erheblich vom erwarteten Wert ab.

4.6 Ergebnisse – Quarz-Kristalle

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Quarz-Experimente vorgestellt. Der Quarz-Kristall konnte deutlich höher belastet werden, als der Faraday-Kristall. Die höchste Fluenz betrug $2,53 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$.

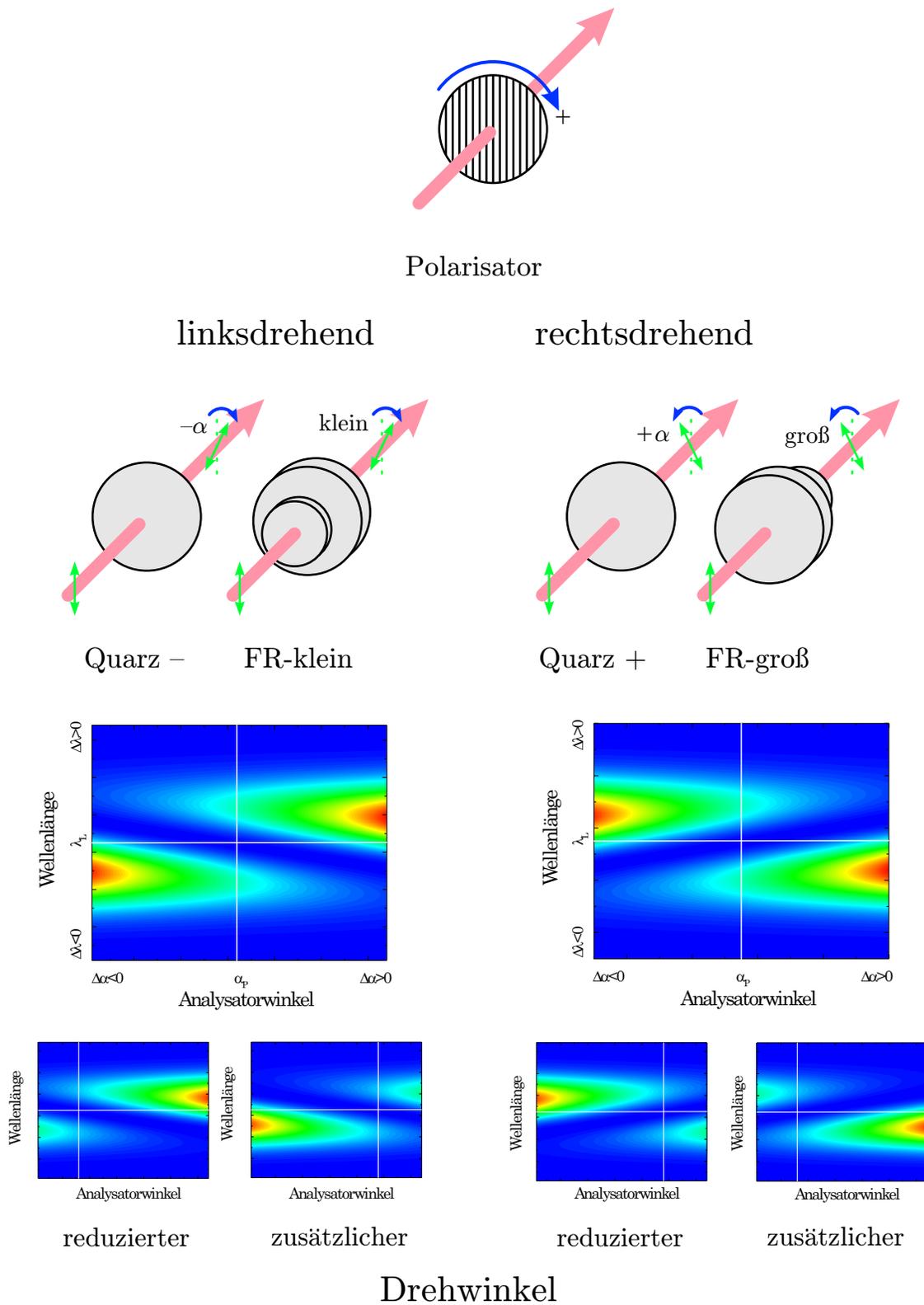


Abbildung 4.16: Der Verlauf der Meßkurve ist abhängig von der Rotationsdispersion und damit von der Richtung der linearen Drehung. Die Messung erfolgt bei Auslöschung, es bilden sich, entsprechend Abbildung 2.2, 2 Maxima aus. Die Analysatorstellung, bei der beide Maxima gleiche Intensität besitzen ist durch eine vertikale Linie gekennzeichnet. Dieser Winkel entspricht dem Drehwinkel. Das Spektrum zu einem bestimmten Winkel erhält man, wenn man entlang der Abszisse einen Schnitt legt. In den unteren Diagrammen wirkt ein zusätzlicher bzw. ein reduzierter Drehwinkel.

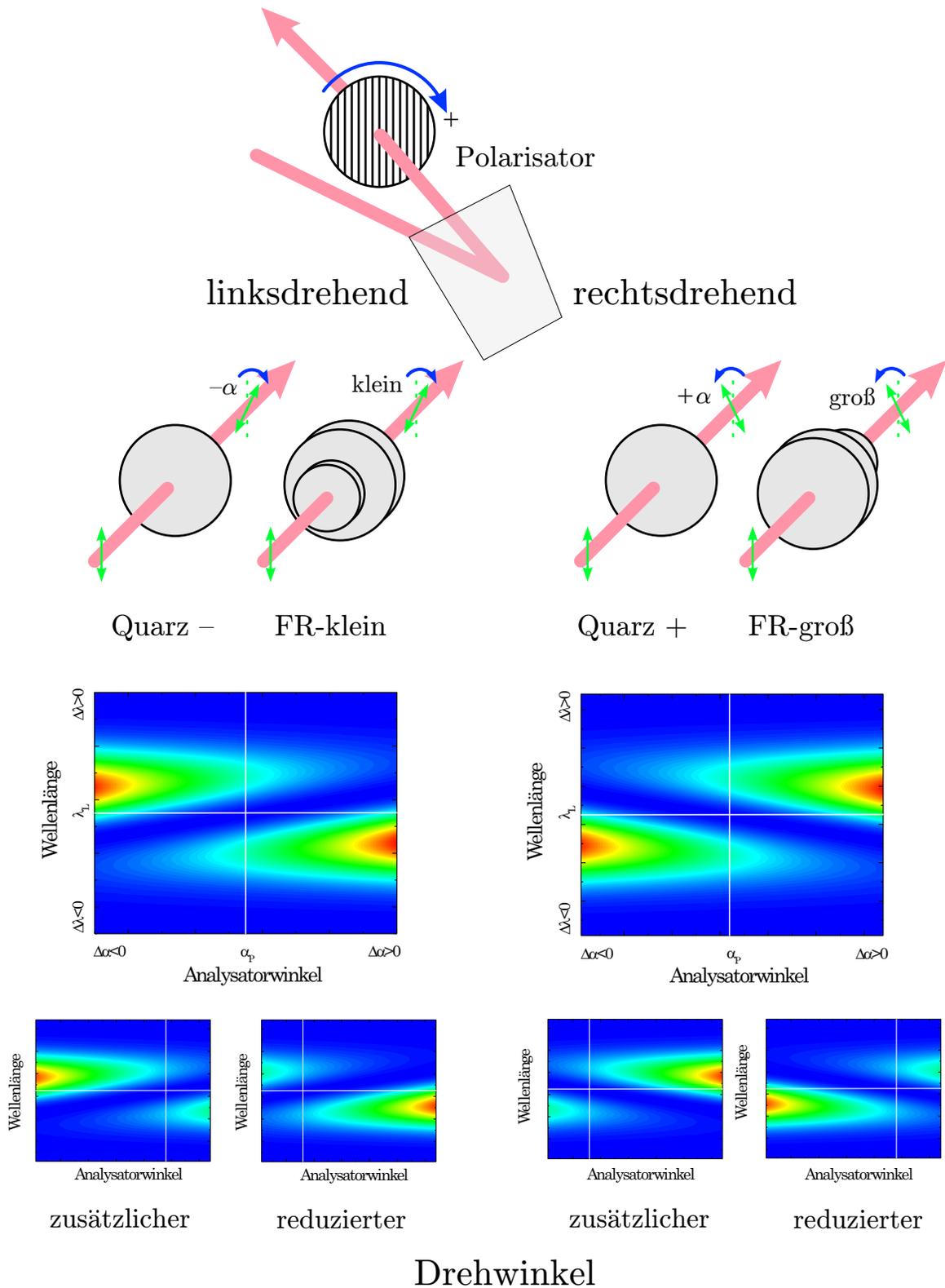


Abbildung 4.17: Bei der Reflexion am Spiegel bzw. der Glasplatte ändert sich die absolute und relative Drehrichtung. Die hier angegebene Zuordnung wurde experimentell überprüft, indem ein Referenzexperiment mit Quarz und Analysator ohne Glasplatte bei niedrigen Intensitäten durchgeführt wurde.

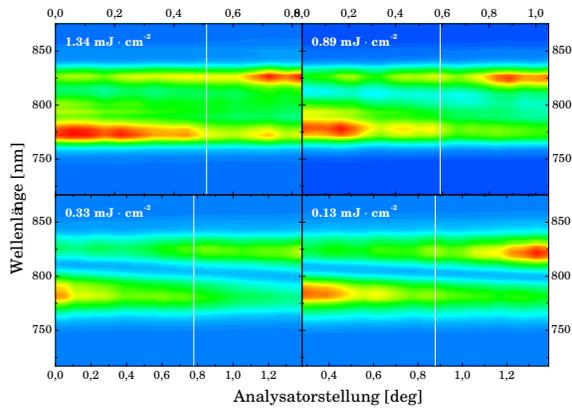


Abbildung 4.18: Faraday-Rotator (groß, 0 mm)

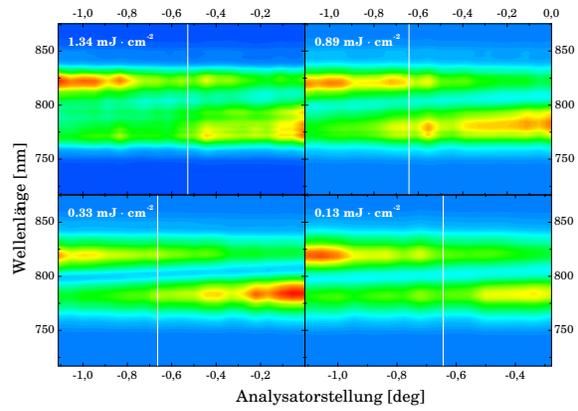


Abbildung 4.19: Faraday-Rotator (klein, 0 mm)

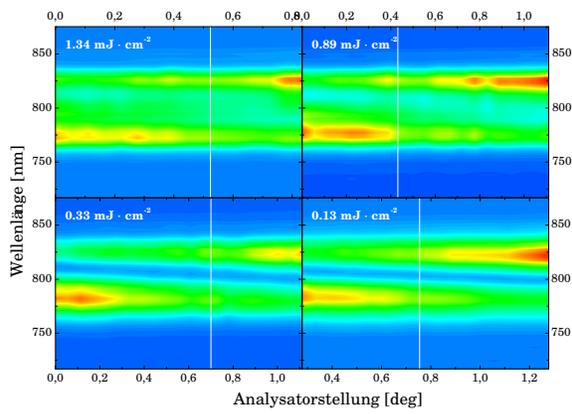


Abbildung 4.20: Faraday-Rotator (groß, 1 mm)

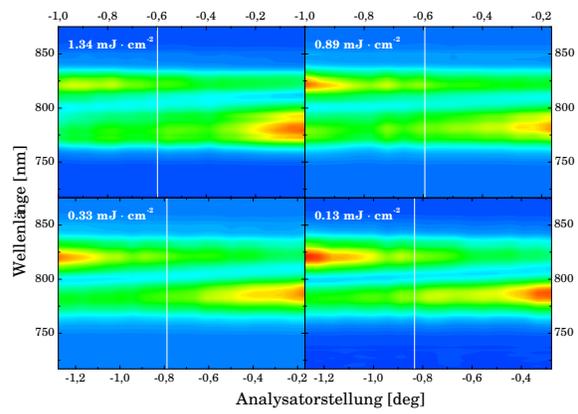


Abbildung 4.21: Faraday-Rotator (klein, 1 mm)

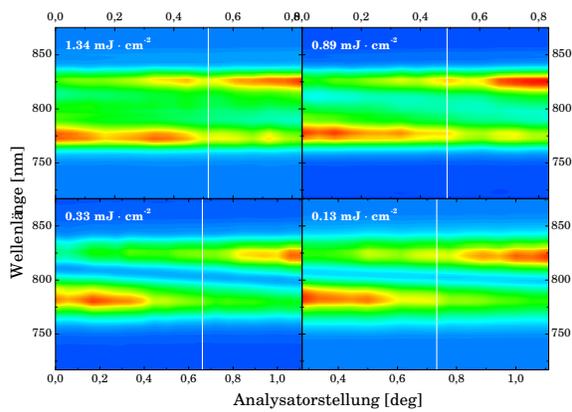


Abbildung 4.22: Faraday-Rotator (groß, 2 mm)

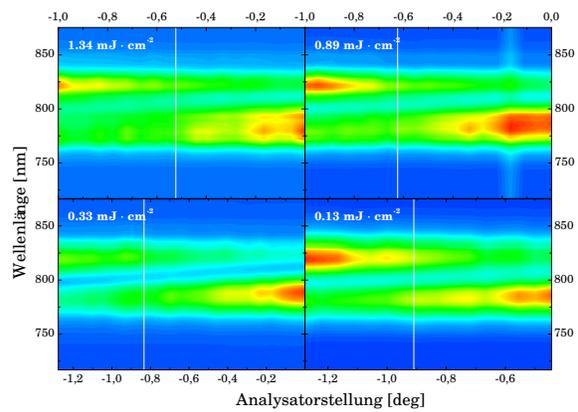


Abbildung 4.23: Faraday-Rotator (klein, 2 mm)

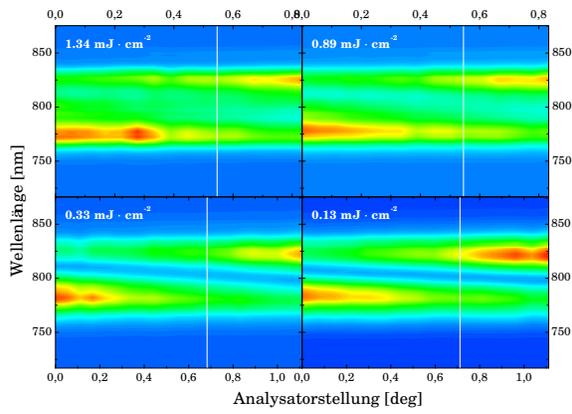


Abbildung 4.24: Faraday-Rotator (groß, 3 mm)

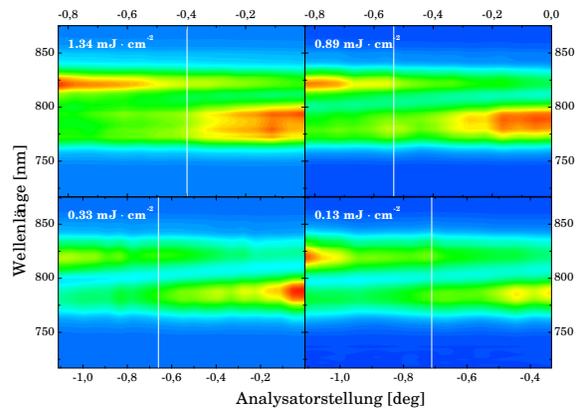


Abbildung 4.25: Faraday-Rotator (klein, 3 mm)

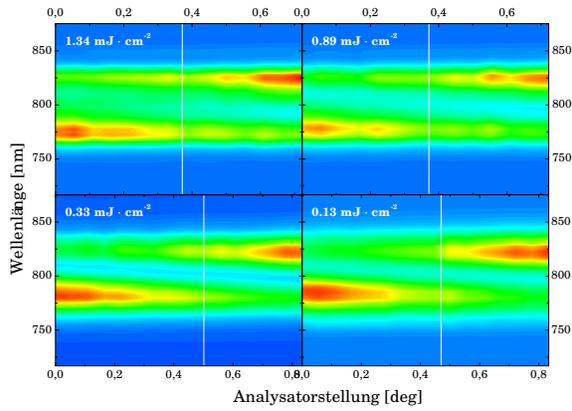


Abbildung 4.26: Faraday-Rotator (groß, 4 mm)

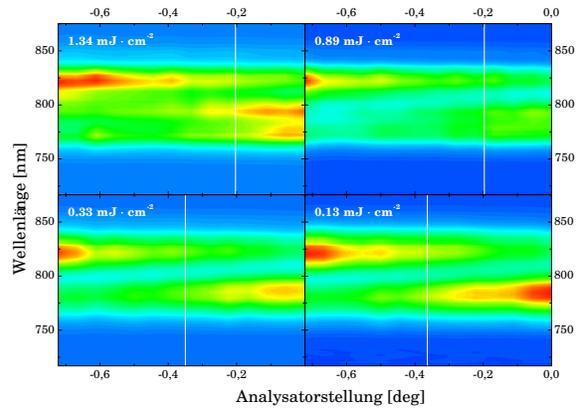


Abbildung 4.27: Faraday-Rotator (klein, 4 mm)

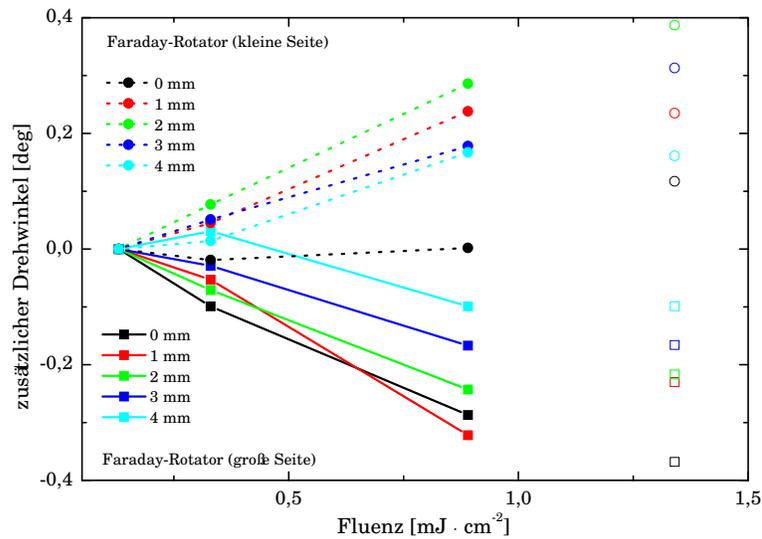


Abbildung 4.28: Der zusätzliche Drehwinkel in Abhängigkeit der Fluenz für verschiedene Faradaykonfigurationen – Zusammenfassung der Ergebnisse. Da bei hohen Fluenzen verstärkt SPM-Effekte auftreten, die das Spektrum merklich verändern wurden die Ergebnisse bei höchster Fluenz nur als Meßpunkte dargestellt.

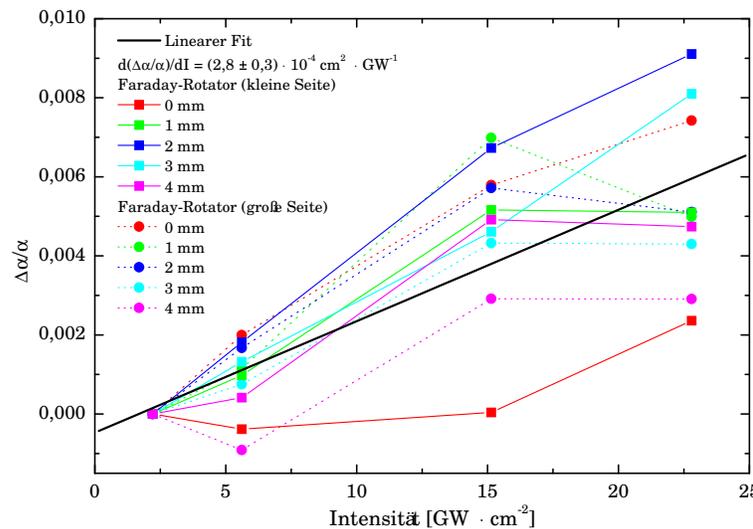


Abbildung 4.29: Der Betrag des spezifischen zusätzlichen Drehwinkels in Abhängigkeit der Intensität für die gemessenen Faraday Konfigurationen. Mit allen Meßwerten wurde eine lineare Regression durchgeführt, um α^* zu bestimmen.

Auffällig ist der starke Einfluß von SPM-Effekten auf das Spektrum, insbesondere die Erzeugung von neuen Frequenzkomponenten – bei hohen Intensitäten treten Nebenmaxima auf. Diese können die Maxima, die durch den Polarisator auftreten, beeinflussen oder sogar verschieben.

Die Zusammenfassung der Messungen ist in Abbildung 4.33 dargestellt. Man erkennt, daß die nichtlineare Drehung einen, im Gegensatz zum Faraday-Rotator, reduzierten Drehwinkel zur Folge hat. Bei einer Fluenz $F = 1 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ beträgt der reduzierte Drehwinkel für den +90-Quarz $\Delta\alpha = 0,6 \text{ deg}$. In Abbildung 4.34 sind die Beträge der spezifischen nichtlinearen Drehwinkel gegen die Intensität aufgetragen.

Außerdem wurde ein linearer Fit mit allen Meßwerten durchgeführt. Man erhält als Ergebnis für den

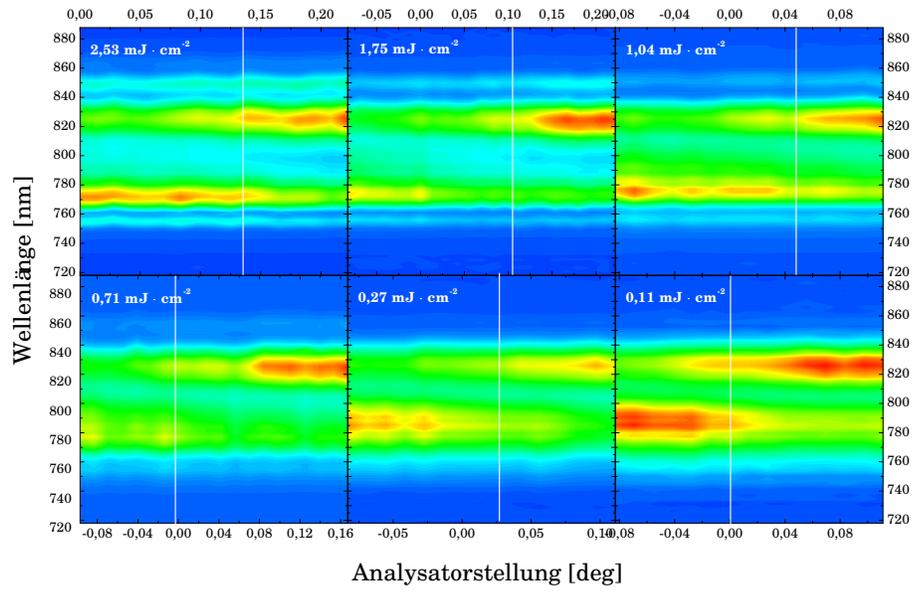


Abbildung 4.30: Messung des 15°-Quarz-Kristall

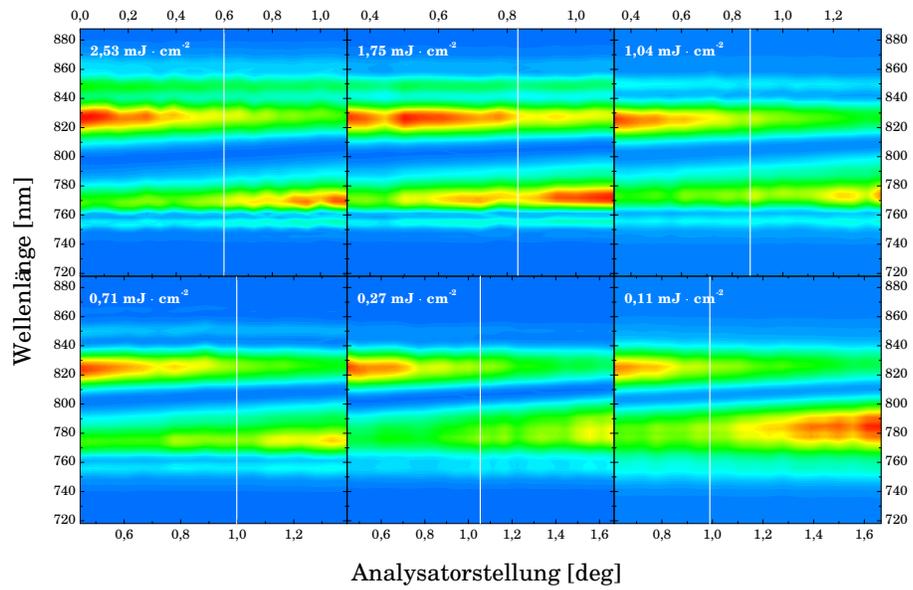


Abbildung 4.31: Messung des -60°-Quarz-Kristall

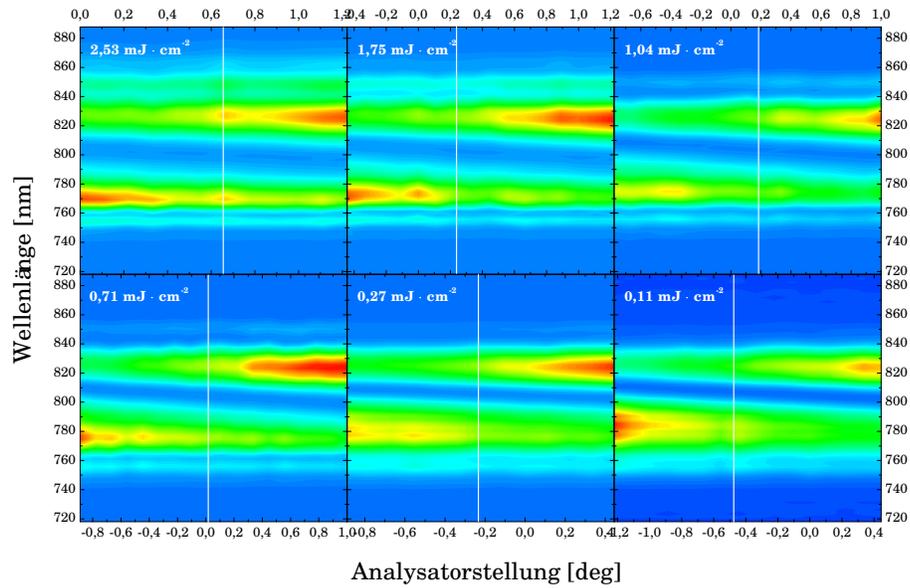


Abbildung 4.32: Messung des 90°-Quarz-Kristall

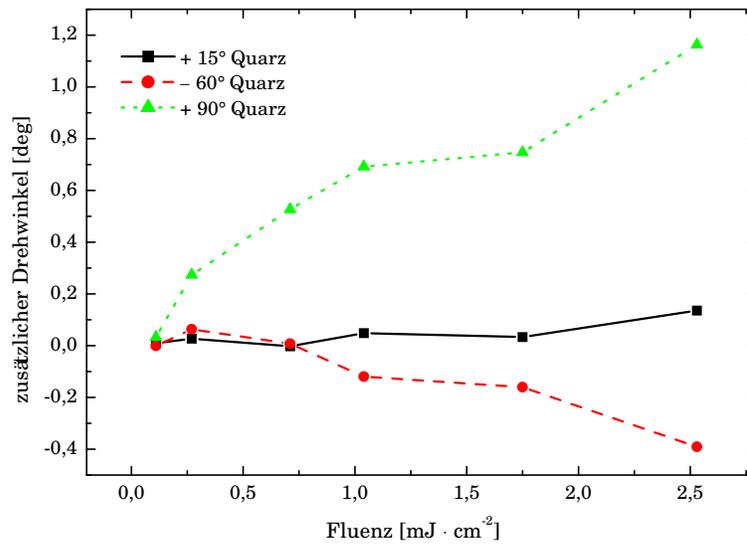


Abbildung 4.33: Zusammenfassung der Ergebnisse der Messungen an den Quarzkristallen. Der zusätzliche Drehwinkel ist gegen die Fluenz aufgetragen. Die Stärke der nichtlinearen Drehung ist proportional zur Stärke der linearen Drehung.

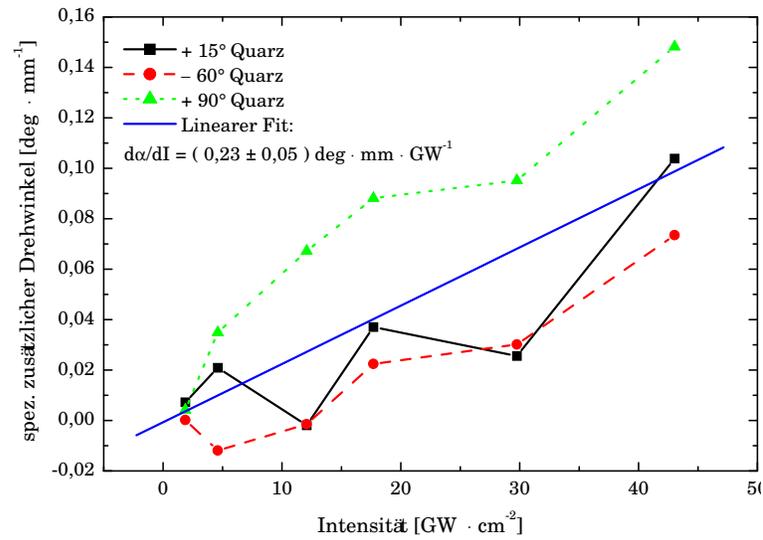


Abbildung 4.34: Ergebnisse der Messungen an den Quarzkristallen. Darstellung des spezifischen nichtlinearen Drehwinkels in Abhängigkeit der Intensität des eingestrahlteten Laserfeldes.

spezifischen zusätzlichen Drehwinkel α^*

$$\alpha^* = -(2,3 \pm 0,5) \cdot 10^{-11} \text{ deg} \cdot \text{cm} \cdot \text{W}^{-1}. \quad (4.9)$$

Das Ergebnis ist um fast 3 Größenordnungen kleiner als der Wert $\alpha^*(\text{Quarz}) = (1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-8} \text{ deg} \cdot \text{cm} \cdot \text{W}^{-1}$ von [14]. Setzt man in dieses Ergebnis eine Intensität von $I = 10^{10} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ und die Länge des +90-Quarz von $L = 7,847 \text{ mm}$ ein, würde man einen zusätzlichen Drehwinkel von über 100 Grad erhalten. Dieser Literaturwert scheint ebenfalls thermischen Ursprungs zu sein.

Kapitel 5

Diskussion

5.1 Vergleich mit theoretischen Voraussagen

In Kapitel 2 wurden zwei Störungsansätze für den nichtlinearen Faradayeffekt gerechnet. Mit den zur Verfügung stehenden Materialkonstanten ist es möglich, die Gültigkeit der jeweiligen Abschätzung zu überprüfen. Dazu wird ein Parameter η eingeführt, der über die Terme der Bewegungsgleichung (2.27) definiert wird und eine Aussage über den Einfluß der magnetischen Kraft relativ zur nichtlinearen Kraft liefert.

$$\eta = \frac{|\omega_C \dot{x}|}{|\omega_0^2 K x^3|} \quad (5.1)$$

Mit Gleichung (2.12) und $\dot{x} = i\omega_L x$ erhält man

$$\eta = \frac{|\omega_C \omega_L|}{|\omega_0^2 K x^2|}$$

Setzt man für x die Lösung der linearen Bewegungsgleichung ein und nutzt zusätzlich (1.12), folgt

$$\begin{aligned} \eta &= \frac{3\omega_C \omega_L \omega_P^2}{4(\omega_0^2 - \omega_L^2)^2 n_2 I} \\ &= \frac{\kappa \omega_L}{2\pi^2 c_o} \frac{3(n_0^2 - 1)^2}{4 n_2 I} \\ &= \frac{3}{4} \frac{\kappa}{\pi \lambda} \frac{(n_0^2 - 1)^2}{n_2 I}. \end{aligned}$$

Für den Faraday-Rotator ergibt sich mit $n_2 I \approx 2 \cdot 10^{-6}$

$$\eta_{\text{FR}} \approx 11. \quad (5.2)$$

Damit ist die Herleitung mit der Nichtlinearität als Störung für den Faraday-Rotator anzuwenden.

Über den nichtlinearen Brechungsindex von TGG sind in der Literatur keine Werte bekannt. In [41] wurden die Ergebnisse der Dispersionsmessungen mit Literaturwerten verglichen. Dabei fand man eine gute Übereinstimmung mit den Daten von $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$. Der nichtlineare Brechungsindex dieses Materials ist bekannt [42]. Deshalb wird dieser Wert für folgende Betrachtungen als n_2 von TGG verwendet:

$$n_2(\text{TGG}) \approx n_2(\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}) = 1,25 \cdot 10^{-15} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}. \quad (5.3)$$

Vergleicht man die Ergebnisse für den zusätzlichen nichtlinearen Drehwinkel der Theorie (2.36) und des Experiments, stellt man eine erhebliche Abweichung fest.

$$\frac{\left(\frac{\Delta\alpha}{\alpha}\right)_{\text{exp.}}}{\left(\frac{\Delta\alpha}{\alpha}\right)_{\text{th.}}} = \frac{6,7 \cdot 10^{-3}}{10,6 \cdot 10^{-5}} = 63 \quad (5.4)$$

Der experimentell bestimmte Wert liegt also um den Faktor 63 höher als der Wert, den das Modell voraussagt.

Auch bei der nichtlinearen optischen Aktivität stellt man eine erhebliche Abweichung zwischen experimentellem und theoretischem Wert fest. Mit dem nichtlinearen Brechungsindex aus [42]

$$n_2(\text{Quarz-o}) = 3,06 \cdot 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}} \quad (5.5)$$

kann man den experimentellen und theoretischen Wert vergleichen.

$$\frac{\left(\frac{\Delta\alpha}{\alpha}\right)_{\text{exp.}}}{\left(\frac{\Delta\alpha}{\alpha}\right)_{\text{th.}}} = \frac{6,7 \cdot 10^{-3}}{2,2 \cdot 10^{-5}} = 305 \quad (5.6)$$

Auch hier sind die Voraussagen des Modells zu klein.

Die vorgestellten Modelle für den nichtlinearen Faradayeffekt und die nichtlineare optische Aktivität benötigen keine zusätzlichen Konstanten oder Parameter. Im Rahmen der Gültigkeit des Modells sollten sich die nichtlinearen Drehungen der Polarisationssebene vorhersagen lassen. Die signifikante Abweichung zwischen Experiment und Theorie deutet auf Konkurrenzeffekte hin. Das Ziel ist es, den Einfluß anderer Effekte auf den beobachteten nichtlinearen Drehwinkel abzuschätzen.

5.2 Konkurrenzeffekte

5.2.1 Thermische Effekte

Wie in der Einleitung bereits erwähnt, können thermische Effekte eine große Rolle spielen und die nichtlinearen elektronischen Prozesse um Größenordnungen übersteigen. Im folgenden soll eine Abschätzung der thermischen Effekte durchgeführt werden.

Ein Laserpuls deponiert eine bestimmte Energie im Kristall, die sich in einer Temperaturerhöhung bemerkbar macht. Eine obere Grenze dieser Energie kann man angeben, wenn man das Verhältnis von transmittierter Energie $E_{\text{trans.}}$ zu eingestrahelter Energie E_{in} kennt. Im Experiment war dieses Verhältnis stets größer als 99%. Außerdem betrug die maximal eingestrahelte Energie pro Puls 0,3 mJ. Die deponierte Energie $E_{\text{depon.}}$ ist somit

$$E_{\text{depon.}} \leq 3 \cdot 10^{-6} \text{ J.} \quad (5.7)$$

Die damit verbundene Temperaturerhöhung kann man berechnen, wenn man mit der spezifischen Wärmekapazität $c = 0,74 \frac{\text{kJ}}{\text{kg K}}$ rechnet [43]. Für die Abmessungen des -60° Quarz-Kristalls erhält man eine Temperaturerhöhung pro Laserpuls von

$$\Delta T \leq 1,6 \cdot 10^{-5} \text{ K.} \quad (5.8)$$

In einer Minute würde sich der Kristall bei Vernachlässigung von Abstrahlverlusten um 0,72 K erwärmt haben. Geht man von dieser Vernachlässigung ab, kann man eine Gleichgewichtstemperatur abschätzen. Die Wärmeleistung, die ein heißer Körper an die Umgebung abgibt, ist wie folgt definiert:

$$P_{\text{ab}} = \alpha A \Delta T. \quad (5.9)$$

α ist eine Konstante und hat für die meisten Materialien den Wert $\alpha = 6 \frac{\text{W}}{\text{m}^2 \text{K}}$ [44]. Der Parameter A bezeichnet die Oberfläche des Körpers. Beim Quarz-Kristall ergibt sich eine Oberfläche $A \approx 2 \text{ cm}^2$. Die Temperaturdifferenz ist der Unterschied zwischen Raumtemperatur und Materialtemperatur. Im thermischen Gleichgewicht ist die eingestrahelte Wärmeleistung P_{in} gleich der abgestrahlten Wärmeleistung P_{ab} . Mittelt man die eingestrahelte Leistung, erhält man

$$P_{\text{in}} \leq 3 \cdot 10^{-3} \text{ W.} \quad (5.10)$$

Setzt man die Wärmeleistungen gleich und löst nach ΔT auf, folgt

$$\Delta T \leq 2,5 \text{ K.} \quad (5.11)$$

Der Kristall erwärmt sich um maximal 2,5 K. Eine Temperaturerhöhung verursacht eine Vergrößerung des Kristalls. Diese Längenänderung wiederum wirkt sich auf den absoluten Drehwinkel aus. Das Verhältnis der Drehwinkel kann man angeben.

$$\frac{\varphi_{\text{therm.}}}{\varphi_0} = \frac{\varphi^* \alpha_T \Delta T L}{\varphi^* L} = \alpha_T \Delta T \quad (5.12)$$

In [43] werden Werte für $\frac{\alpha_T}{\alpha_{0^\circ\text{C}}}$ angegeben. Bei Raumtemperatur hätte eine Temperaturerhöhung von 2,5 K eine relative Winkeländerung von

$$\Delta \left(\frac{\alpha_{\Delta\vartheta}}{\alpha_{25^\circ\text{C}}} \right) = 1,42 \cdot 10^{-4} \quad 2,5 \approx 3,6 \cdot 10^{-4} \quad (5.13)$$

zur Folge. Die thermischen Effekte liegen eine Größenordnung über den Voraussagen des Modell, aber immer noch eine Größenordnung unter den experimentellen Befunden. Thermische Einflüsse auf das Meßergebnis können also ausgeschlossen werden.

5.2.2 Anisotropie

Eine mögliche Ursache der Abweichung von den theoretischen Voraussagen, könnte eine Anisotropie im Quarz-Kristall sein, die entsteht, wenn der Kristall nicht exakt senkrecht zur optische Achse geschnitten wurde. Man kann diesen Einfluß auf das Meßergebnis überprüfen, indem man das Experiment in 3 Konfigurationen durchführt.

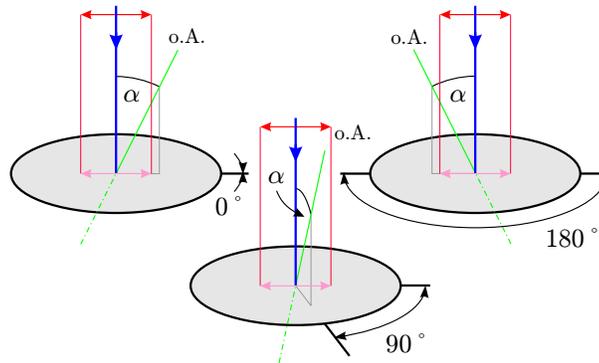


Abbildung 5.1: Zur Geometrie bei einem Kristallschnitt, der nicht senkrecht zur optischen Achse verläuft. Die Polarisationsrichtung der einfallenden elektromagnetischen Welle bleibt fest. Beim Drehen des Kristalls um die angegebenen Winkel sieht die linear polarisierte Welle eine Variation des Brechungsindex, der anisotrop ist.

Nach einer Drehung um 180° wiederholt sich der Effekt. Man muß also mindestens in 3 verschiedenen Winkelstellungen messen. Um einen möglichst großen Dynamikbereich zu überdecken, empfiehlt es sich mit 0° , 45° und 90° zu messen. Diese Messungen wurden mit dem -60 -Quarz durchgeführt. Es wurde innerhalb der Meßgenauigkeit keine Abweichung der Messungen untereinander beobachtet.

5.2.3 Kreuzphasenmodulation (XPM)

Sowohl der Faraday-Rotator als auch der Quarz-Kristall erzeugen beim Durchgang eines linear polarisierten, spektral breiten Laserpulses eine Verteilung der Polarisationswinkel, da der Drehwinkel wellenlängenabhängig ist. Es stellt sich die Frage, ob diese unterschiedlichen Polarisationsrichtungen nach dem Prinzip des optischen Kerr-Schalters miteinander wechselwirken können und damit eine selbstinduzierte Änderung der Polarisationssebene bewirken.

Angenommen, der Laserpuls erfährt eine lineare Rotationsdispersion, dann besitzen verschiedene Frequenzkomponenten verschiedene Polarisationswinkel. Da nichtlineare Effekte im Zeitbereich wirken, muß das Feld fouriertransformiert werden. In das elektrische Feld zu einem bestimmten Zeitpunkt t gehen

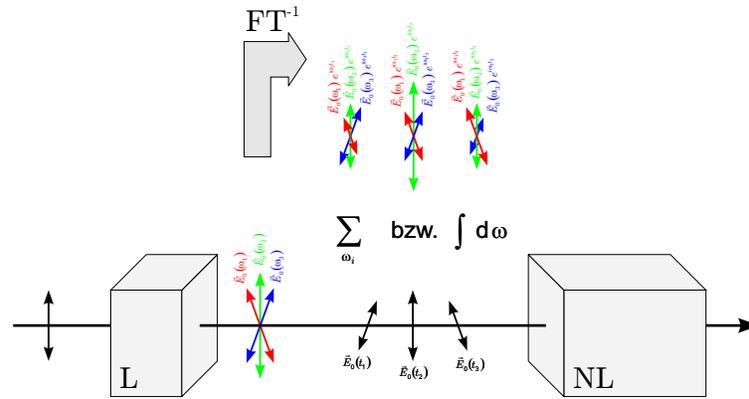


Abbildung 5.2: Zur Berechnung der Propagation zwischen einem linearen und einem nichtlinearen Faraday-Element benötigt man die Fouriertransformation.

alle Frequenzkomponenten und damit alle Polarisationsrichtungen ein. Eine Wechselwirkung, wie beim Kerr-Schalter, ist aber dennoch nicht möglich, da alle Komponenten kollinear propagieren. Beim Kerr-Schalter schließen Pump- und Probestrahler einen kleinen Winkel ein. Damit besitzen beide Wellen einen unterschiedlichen Wellenvektor. Wenn man beide Wellen kollinear überlagert, interferieren beide Wellen, und sie sind physikalisch nicht mehr unterscheidbar – vorausgesetzt, sie haben dieselbe Mittenfrequenz. Eine zwingende Voraussetzung für den Kerr-Schalter sind also nichtkollinear propagierende Wellen. Bei der Drehung im Faraday-Rotator bzw. im Quarz, propagieren die unterschiedlichen Komponenten kollinear, das heißt, eine Wechselwirkung über dem XPM-Prozess ist nicht möglich. Dieses Ergebnis erhält man auch bei genauerer Betrachtung der diskreten Fouriertransformation. Die Wellenvektoren kann man aus der Fouriertransformation herausziehen, da sie für jede Komponente in die gleiche Richtung zeigen. Da die diskrete Fouriertransformation das Produkt aus elektrischem Feld und Phasenterm aufsummiert, erhält man zum Zeitpunkt t eine Feldkomponente mit eindeutig definiertem Polarisationszustand.

5.2.4 Induzierte Anisotropie

Maker und Terhune behandelten in ihrer Arbeit Effekte, die durch den Suszeptibilitätstensor 3. Ordnung verursacht werden [4]. Die Behandlung der nichtlinearen Propagation mit besonderer Beachtung der Polarisation ist in [45] dargestellt. Es wird gezeigt, daß nur linear und zirkular polarisiertes Licht bei Propagation durch ein isotropes Medium ihren Polarisationszustand beibehalten. Elliptisch polarisiertes Licht dagegen ändert seinen Polarisationszustand – die Richtung der Polarisationsellipse dreht sich. In unserem Fall ist das einfallende Licht linear polarisiert, sollte sich also nicht drehen. Eine Drehung der Polarisations Ebene ist, wie am Beispiel der optischen Aktivität in Abbildung 3.2 gezeigt wurde, immer von zirkularem Dichroismus begleitet. Durch die unterschiedliche Absorption von links- und rechtszirkular polarisiertem Licht, entsteht aus ursprünglich linear polarisiertem, elliptisch polarisiertes Licht. Der Drehwinkel ist durch

$$\theta = \frac{1}{2} \Delta n \frac{\omega}{c} z \tag{5.14}$$

gegeben. Die Differenz des Brechungsindex zwischen rechts- und linkszirkular polarisiertem Licht ist durch die folgende Gleichung gegeben.

$$\Delta n \equiv n_{\circlearrowright} - n_{\circlearrowleft} = \frac{12\pi\chi_{1221}}{n_0} (|E_{\circlearrowright}|^2 - |E_{\circlearrowleft}|^2) \tag{5.15}$$

Wie kann man diesen Effekt messen bzw. wie kann man ihn von den anderen nichtlinearen Effekte trennen?!

Der Unterschied im Brechungsindex Δn ist nach (5.15) proportional zur Differenz der Intensitäten von links- und rechtszirkularpolarisiertem Licht und damit proportional zur Elliptizität ϵ . Bei einer Propagation in z -Richtung lautet Δn in allgemeiner Schreibweise

$$\Delta n_{\text{ges.}}(z) = \int_0^z \Delta\theta(z') dz'. \quad (5.16)$$

Beim Faraday-Rotator kann elliptisch polarisiertes Licht durch den zirkularen Dichroismus erzeugt werden.

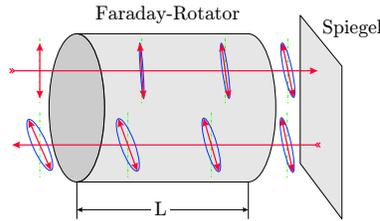


Abbildung 5.3: Durch den zirkularen Dichroismus kommt zu der Drehung der Polarisationsbene noch die Erzeugung von elliptisch-polarisiertem Licht dazu.

Man kann annehmen, daß die dadurch erzeugte Elliptizität proportional zur Propagationslänge ist ($\epsilon \propto z$). Es folgt für den zusätzlichen Drehwinkel

$$\Delta n_{\text{ges.}}(z) \propto \int_0^z z' dz' = \frac{1}{2} z^2. \quad (5.17)$$

Der zusätzliche Drehwinkel skaliert also kubisch mit der Länge.

Passiert man den Faraday-Rotator zweimal (Abbildung 5.3), wird die Polarisationsene weitergedreht – im Gegensatz zum Quarz, wo sie wieder aufgehoben wird. Tritt der eben beschriebene Effekt auf, müßte der zusätzliche Drehwinkel beim doppelten Durchgang mindestens dem 8-fachen Wert des Drehwinkel bei einfachem Durchgang entsprechen.

Die Ergebnisse dieses Experimentes sind in Abbildung 5.4 dargestellt.

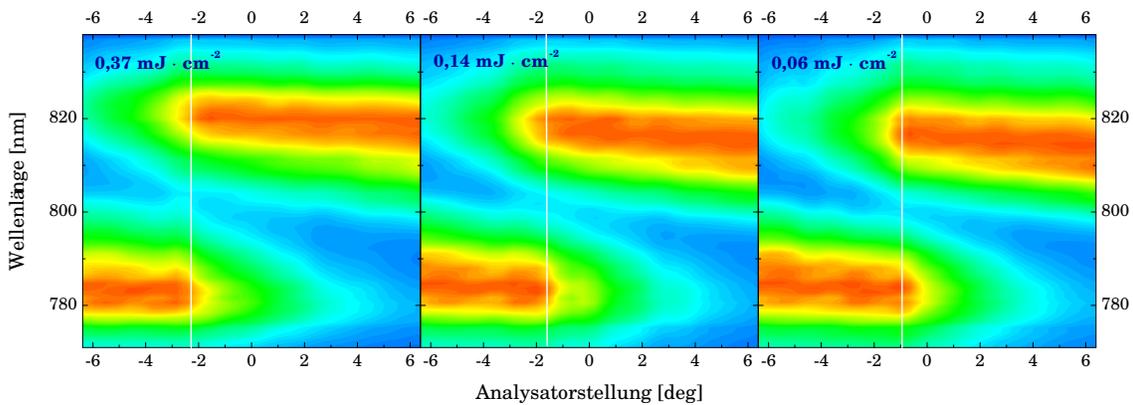


Abbildung 5.4: Messung des nichtlinearen Drehwinkels bei doppeltem Durchgang durch den Faraday-Rotator.

Der zusätzliche Drehwinkel in Abhängigkeit der Fluenz ist in Abbildung 5.5 zu sehen.

Er ist ca. 10 mal größer als der Wert bei einfachem Durchgang und hängt also auf jeden Fall nichtlinear von der Propagationslänge ab.

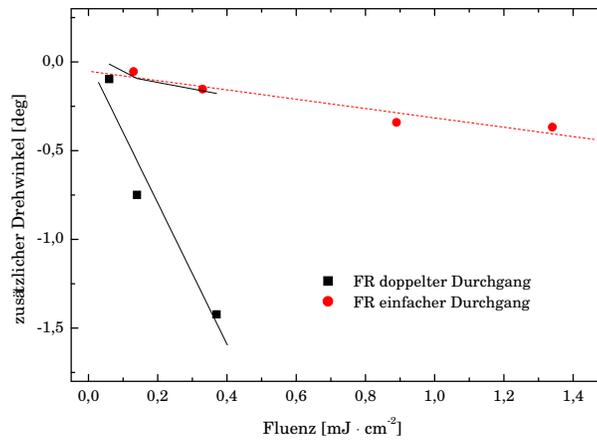


Abbildung 5.5: Ergebnis der Messungen bei doppeltem Durchgang und Vergleich mit früheren Ergebnissen. Der zusätzliche Drehwinkel verdoppelt sich nicht, wie vom Faraday-Modell vorhergesagt, sondern ist ca. 10 mal so groß. Das ist ein Hinweis auf eine eventuell vorhandene induzierte Anisotropie.

5.2.5 Zusätzliche nichtlineare Effekte

Bei allen bisherigen quantitativen Betrachtungen wurde davon ausgegangen, daß sich lineare und nichtlineare Effekte separat behandeln lassen. Diese Näherung gilt aber nur für monochromatische Wellen. Bei kurzen Pulsen kann man diese Näherung nicht mehr anwenden, da der Laserpuls eine merkliche spektrale Breite besitzt. Die quantitative Behandlung der Pulspropagation erfordert numerische Methoden, um die komplizierte Wellengleichung zu lösen. Deshalb wurden die theoretischen Ergebnisse verwendet, um eine Simulation durchzuführen. Auf die Einzelheiten dieser Simulation wird im nächsten Kapitel eingegangen.

Kapitel 6

Simulationen

Die Simulation wurde in das Programmpaket LAB II integriert [46]. Dazu wurden Routinen eingefügt, die auch Polarisisationseffekte beachten. Das Blockdiagramm der Simulation ist in Abbildung 6.1 dargestellt.

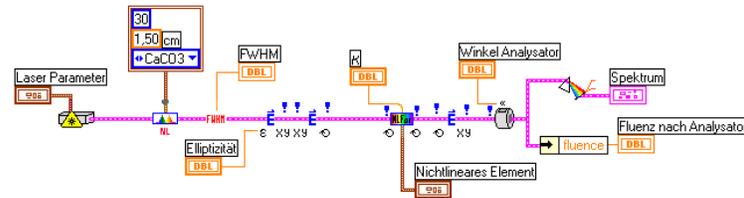


Abbildung 6.1: Blockdiagramm der Simulation in der Programmierumgebung LabView

6.1 Darstellung des elektrischen Feldes

Beim Erzeugen des Laserpulses wird angenommen, daß es sich um einen gaußförmigen Puls der spektralen FWHM-Breite $\Delta\omega$ handelt, der um die Zentralfrequenz ω_L zentriert ist. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, dem Puls einen Chirp aufzuzwingen, der durch den Parameter A beschrieben wird. Das elektrische Feld im Frequenzraum hat die Gestalt

$$\tilde{E}(\omega) = e^{-\left(\frac{\sqrt{2 \ln 2}(\omega - \omega_L)}{\Delta\omega}\right)^2 (1+iA)}. \quad (6.1)$$

Eine polarisierte elektromagnetische Welle kann man stets in 2 Komponenten zerlegen. In kartesischen Koordinaten und bei linear polarisierten Wellen eignet sich die Zerlegung in x und y Komponenten.

$$\vec{E}(t) = \frac{1}{2} \left[\vec{E}_0 e^{i\omega_L t} + \vec{E}_0^* e^{-i\omega_L t} \right] = \frac{1}{2} \left[\begin{pmatrix} E_{x0} \\ E_{y0} \end{pmatrix} e^{i\omega_L t} + \begin{pmatrix} E_{x0}^* \\ E_{y0}^* \end{pmatrix} e^{-i\omega_L t} \right] = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} \quad (6.2)$$

Die zirkulare Darstellung eignet sich dagegen bei der Darstellung von zirkular polarisierten Wellen. Der Übergang zwischen beiden Darstellungen lautet in Matrixschreibweise wie folgt:

$$\begin{pmatrix} E_\odot \\ E_\ominus \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & i \\ 1 & -i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -i & i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_\odot \\ E_\ominus \end{pmatrix}. \quad (6.4)$$

$$(6.5)$$

In der Simulation wird der Puls nach der Propagation durch das 1,5 cm lange Calcit-Material, das die Polarisatoreffekte simulieren soll, zunächst linear polarisiert (x - y -Darstellung). Der Polarisationsvektor liegt in Richtung der x -Achse. Die Propagation im Faraday-Medium kann man am einfachsten in der zirkularen Darstellung berechnen. Deshalb wandelt eine Routine den Puls von der kartesischen in die zirkulare Darstellung um. Nach der Propagation durch das Faraday-Medium wird der Puls wieder in die x - y -Darstellung überführt, da dort die Behandlung des Polarisators am einfachsten ist. Die Wirkung des Polarisators kann man am einfachsten mit dem Jones-Matrix Formalismus beschreiben. Das transmittierte elektrische Feld \vec{E}' hat die Form

$$\begin{pmatrix} E'_x \\ E'_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos^2 \Theta & \sin \Theta \cos \Theta \\ \sin \Theta \cos \Theta & \sin^2 \Theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}. \quad (6.6)$$

Dabei ist Θ der Winkel des Analysators zur x -Achse. Das transmittierte Feld ist wieder linear polarisiert – es kann also an andere LAB II-Routinen weitergegeben werden. Das Spektrum kann man sich mit der `Spectrometer`-Routine darstellen lassen.

6.2 Die Split-Step-Methode

Die analytische Berechnung der linearen Pulspropagation kann man relativ einfach im Spektralbereich beschreiben (1.41). Treten nichtlineare Effekte auf, erschwert sich die Berechnung erheblich und nur wenige Spezialfälle können exakt gelöst werden. Um die Pulspropagation dennoch beschreiben zu können, bedient man sich numerischer Methoden. Die Split-Step Methode ist geeignet, um die nichtlinearen Propagationsgleichungen numerisch zu lösen. Sie findet vor allem bei der Lösung der nichtlinearen Schrödingergleichung Anwendung. Im folgenden wird das Prinzip dieser Methode in der Operatorschreibweise erläutert.

Das Feld \vec{A} breitet sich in z -Richtung aus. Auf \vec{A} wirken der lineare Propagationsoperator \hat{L} und der nichtlineare Propagationsoperator \hat{N} in der folgenden Weise.

$$\partial_z \vec{A} = (\hat{L} + \hat{N}) \vec{A} \quad (6.7)$$

Die formale Lösung dieser Differentialgleichung ist von der Form

$$\begin{aligned} \vec{A}(z+h) &= e^{(\hat{L}+\hat{N})h} \vec{A}(z) \\ &\approx e^{\hat{L}h} e^{\hat{N}h} \vec{A}(z). \end{aligned} \quad (6.8)$$

Zuerst wird der nichtlineare Propagationsschritt im Zeitbereich durchgeführt – anschließend der lineare Schritt im Frequenzbereich. Den Fehler der Näherung (6.8) kann man mit dem Baker-Hausdorff Theorem abschätzen [47].

$$e^{\hat{L}h} e^{\hat{N}h} = e^{h(\hat{L}+\hat{N}) + \frac{h^2}{2}[\hat{L}, \hat{N}] + \dots} \quad (6.9)$$

Demnach hat diese Näherung einen Fehler der Ordnung h^2 . Die Genauigkeit kann man verbessern, wenn man eine symmetrische Schreibweise wählt.

$$\vec{A}(z+h) \approx e^{\frac{h}{2}\hat{L}} e^{h\hat{N}} e^{\frac{h}{2}\hat{L}} \vec{A}(z) \quad (6.10)$$

Die Anwendung des Baker-Hausdorff Theorem auf (6.10) ergibt

$$e^{\frac{h}{2}\hat{L}} e^{h\hat{N}} e^{\frac{h}{2}\hat{L}} = e^{\frac{h}{2}(\hat{L}+2\hat{N}+\hat{L}) + \frac{h^3}{8}[\hat{L}, [2\hat{N}, \hat{L}]] + \dots} \quad (6.11)$$

Diese Näherung hat nur noch einen Fehler der Ordnung h^3 . Um die restlichen Näherungsfehler klein zu halten, muß die Schrittweite h möglichst klein gewählt werden.

Der Algorithmus unterteilt das Medium der Länge L in N Schichten gleicher Dicke. Diese Schichten werden in der Mitte erneut aufgespalten. Im ersten Teil (A) wird der lineare Phasenterm an das elektrische Feld multipliziert. Dieser ist durch (1.41) gegeben. Die Phase $\phi(\omega)$ läßt sich in Abhängigkeit des Brechungsindex $n(\omega)$ wie folgt darstellen:

$$\phi_{\odot/\odot}(\omega) = \frac{n_{\odot/\odot}(\omega)L}{N\lambda} 2\pi = \frac{\omega n(\omega)}{c_0} \frac{L}{N}. \quad (6.12)$$

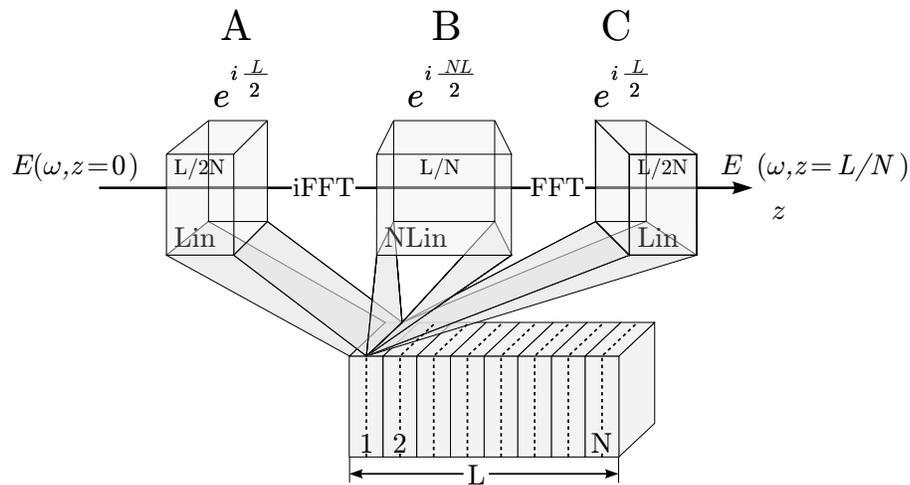


Abbildung 6.2: Bei der Split-Step Methode wird das nichtlineare Medium der Länge L in N Schichten unterteilt.

Danach erfolgt der Übergang in den Zeitbereich durch die inverse Fouriertransformation und die Multiplikation mit der nichtlinearen Phase (B). Diese ist durch (1.40) gegeben. Anschließend wird das Feld mittels Fouriertransformation wieder in die spektrale Darstellung überführt und mit der restlichen linearen Phase multipliziert (C). Diese Berechnungen werden insgesamt N -mal durchgeführt. In der folgenden Tabelle sind die Parameter aufgelistet, die in den Simulationen benutzt wurden.

Laser (Gauß-Puls)	
Stützstellen	2^{11}
λ_L	804 nm
$\Delta\lambda$	20 nm
Spectral Window	30
Elliptizität	(linear pol.)
Polarisator (Calcit)	
Dicke	1,50 cm
Iterationen	30
Prechirp (A)	-0,7
Faraday-Rotator/Quarz	
Iterationen	30

6.3 Nichtlinearer Faradayeffekt

Zunächst wurde folgendes Experiment simuliert. Der Laserstrahl wurde linear polarisiert. Das nichtlineare Element, welches den Polarisator simuliert, wurde herausgenommen. Der Laserpuls hatte keinen Chirp und war demnach beim Eintritt in den nichtlinearen Faraday-Kristall bandbreitenbegrenzt. Die Fluenz wurde in 9 Schritten bis $16 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$ erhöht. Die Ergebnisse dieser Simulation sind in Abbildung 6.3 dargestellt.

Man sieht deutlich, daß ein größerer zusätzlicher Drehwinkel auftritt, als er mit (2.36) abgeschätzt wurde. Der zusätzliche Drehwinkel könnte also durch den Term des Kerreffektes $n_2 I$ verursacht worden sein. Um dies zu bestätigen, wurde der nichtlineare Faradayterm per Definition auf Null gesetzt. Danach wurde die Simulation erneut durchgeführt (Abbildung 6.4).

Diese Simulation lieferte dasselbe Ergebnis, das heißt, auch der Kerreffekt selbst verursacht eine zusätzliche Drehung. Eine Erklärung soll Abbildung 6.5 liefern.

In der linken Hälfte wird der bandbreitenbegrenzte Laserpuls durch ein lineares Faradaymedium propagiert. Im rechten Teil der Abbildung erfährt der Ausgangspuls eine Selbstphasenmodulation durch den

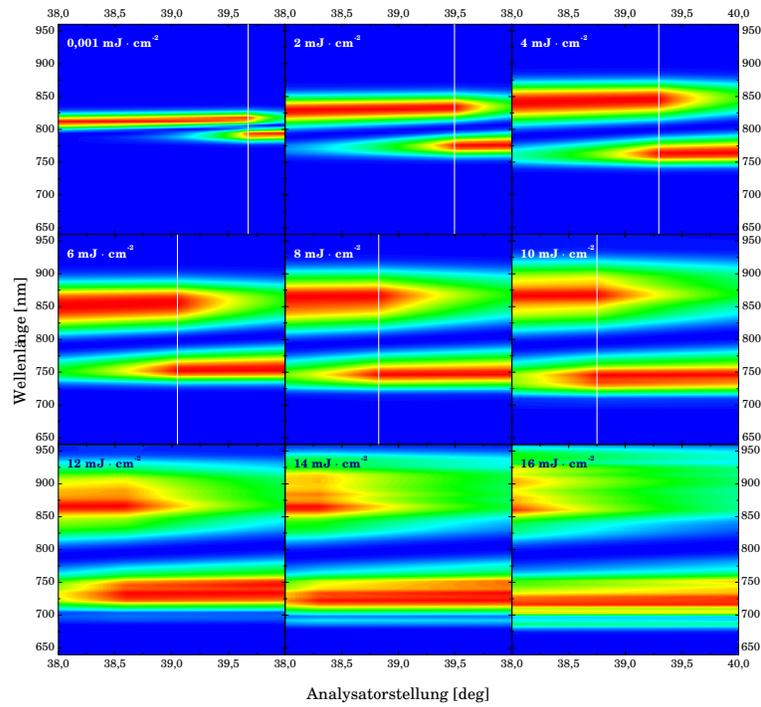


Abbildung 6.3: *Intensity-Plots* der Simulation des Nichtlinearen Faradayeffektes ohne den Einfluß des Polarisators. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

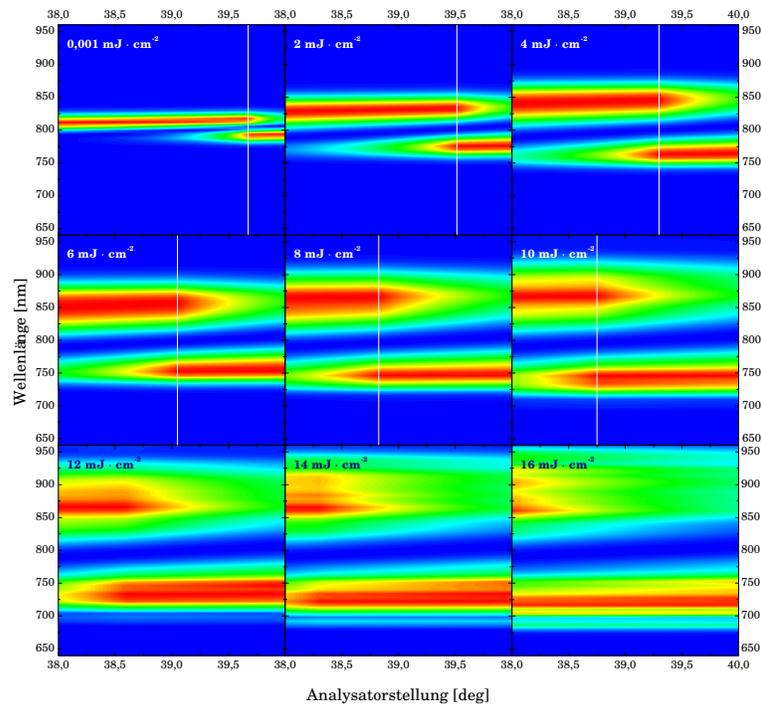


Abbildung 6.4: Simulation der Ergebnisse ohne den Einfluß des Polarisators und unter Vernachlässigung des nichtlinearen Faradayterms. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

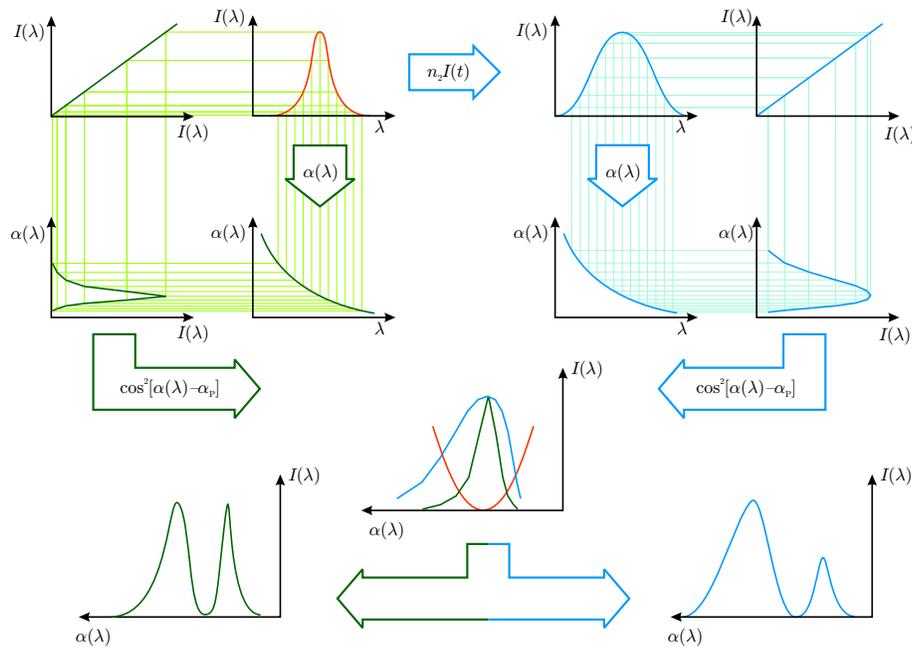


Abbildung 6.5: Erklärung für nichtlineare Drehungen durch den Kerreffekt. Durch die spektrale Verbreiterung des Laserpulses, ergibt sich für den Polarisationswinkel eine breitere Verteilung. Durch den nichtlinearen Verlauf der Rotationsdispersion $\propto \frac{1}{\lambda^2}$ werden mehr Komponenten mit zusätzlichem Polarisationswinkel erzeugt – der Puls besitzt einen zusätzlichen Drehwinkel.

Kerreffekt und verbreitert sich im Spektralbereich. Die Rotationsdispersion überträgt diese Verbreiterung und „erzeugt“ eine breitere Winkelverteilung als der linear propagierende Puls. Der nichtlineare Kurvenverlauf bewirkt zusätzlich, daß die Winkelverteilung stark asymmetrisch wird. Beim Durchgang durch den Polarisator wird die Asymmetrie in der Winkelverteilung in eine Asymmetrie im Spektralbereich umgesetzt – der Laserpuls erfährt eine nichtlineare Drehung. Da die Rotationsdispersion der untersuchten Materialien stets proportional zu $\pm \frac{1}{\lambda^2}$ ist, hat der nichtlineare Drehwinkel stets zusätzlichen Charakter. Er kann also einen Beitrag zur Erklärung des Faraday-Rotators liefern, der eine zusätzliche Drehung zeigt.

Im Experiment müssen Selbstphasenmodulationseffekte im Polarisator beachtet werden. Der Polarisator besteht aus 2 Calcit-Kristallen und hat entlang des Strahlenganges eine Länge von 1,5 cm. In der Simulation wurde dieser Kristall als nichtlineares Element nach der Erzeugung des Laserpulses eingefügt. Die lineare Dispersion in diesem Element wurde durch Einstellen des Chirpparameters A kompensiert. Mit $A = -0,7$ war der Puls nach Durchgang durch den Polarisator wieder bandbreitenbegrenzt. Die Simulation wurde mit den gleichen Parametern wiederholt, wobei der nichtlineare Faradayterm hier wieder Null gesetzt wurde. (Abbildung 6.6 und 6.7).

Auch in diesem Fall liegt der zusätzliche Drehwinkel über den Werten der Abschätzung. Die Simulation des Polarisators bewirkt eine zusätzliche Vergrößerung des Drehwinkels für hohe Fluenzen. Dieser Effekt kann die Messungen aber nicht erklären, da die Fluenz zu niedrig war. Er spielt erst bei höheren Fluenzen eine Rolle. Um den Einfluß des Kerreffekts auf das Experiment mit doppeltem Durchgang zu bestimmen wurde die Länge des Faraday-Kristalls verdoppelt und die Ergebnisse aus Abbildung 6.8 bestimmt.

Die Ergebnisse für alle Simulationen sind in Abbildung 6.9 dargestellt.

Man stellt fest, daß sich in der Simulation, die nur den Einfluß des Kerreffekts beachtet, bei Verdoppelung der Propagationsstrecke auch der zusätzliche Drehwinkel verdoppelt – beide Größen sind also linear zueinander. Nimmt man an, daß die im vorigen Kapitel beschriebene induzierte Polarisationsdrehung zusätzlich wirkt, müßte die Doppel-Messung den 16-fachen Wert im Vergleich zur einfachen Messung zeigen. Dies ist, wie in Abbildung 6.10 dargestellt, für niedrige Fluenzen annähernd erfüllt. Die nichtlineare Drehung setzt sich also aus 2 Anteilen zusammen. Auf der einen Seite bewirkt der Kerreffekt zusam-

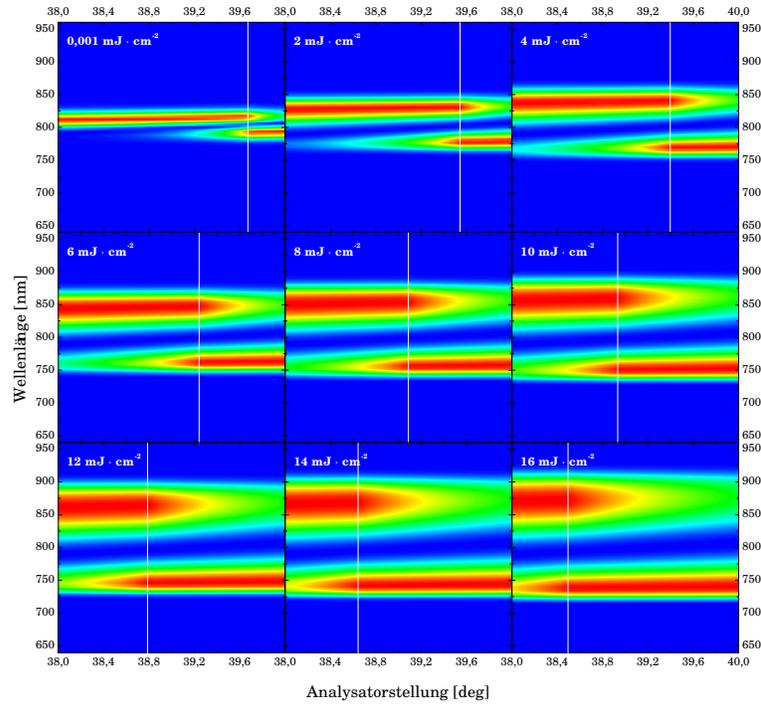


Abbildung 6.6: Simulation des Nichtlinearen Faradayeffektes mit Einfluß des Polarisators. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

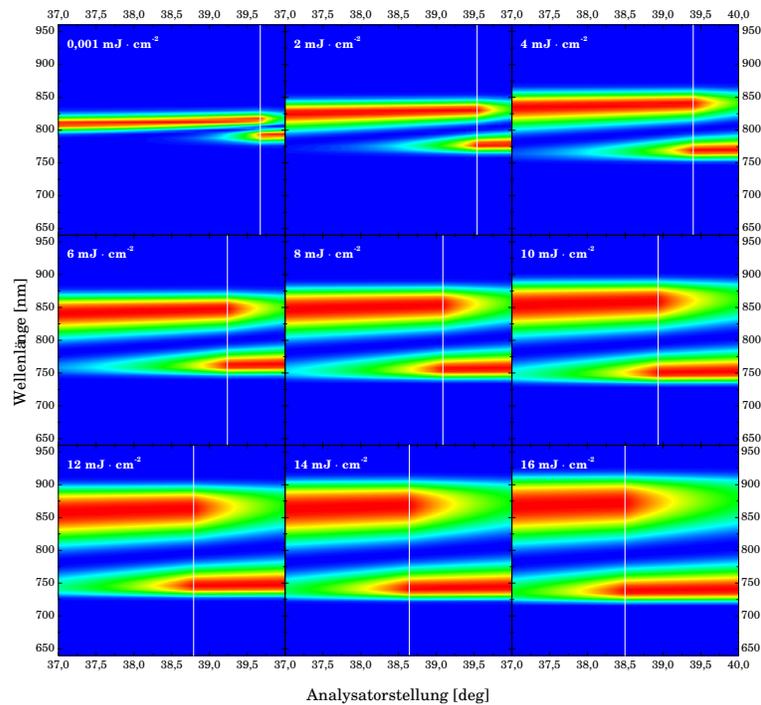


Abbildung 6.7: Simulation der Ergebnisse mit Einfluß des Polarisators und unter Vernachlässigung des nichtlinearen Faradayterms. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

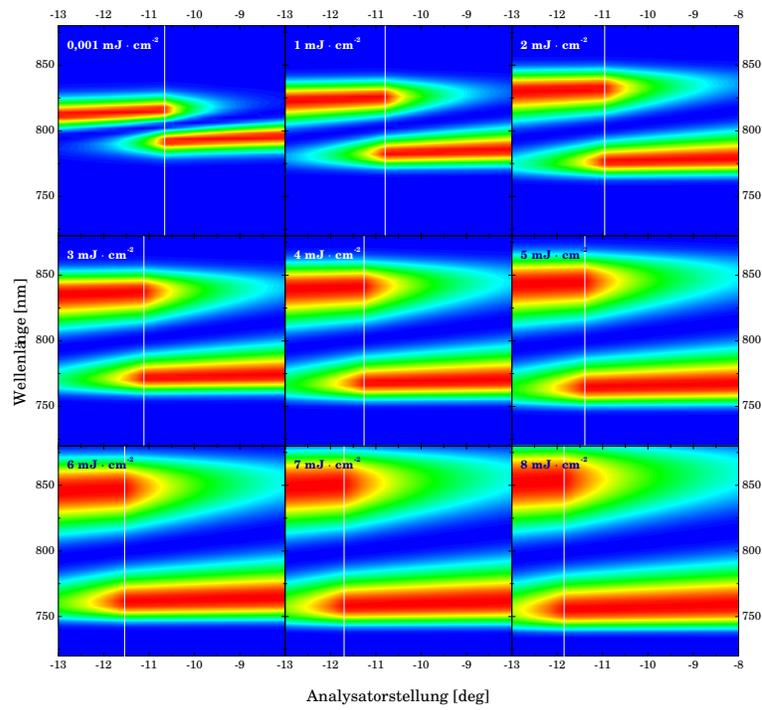


Abbildung 6.8: Simulation des Nichtlinearen Faradayeffektes mit Einfluß des Polarisators bei doppeltem Durchgang durch das Faraday-Medium. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

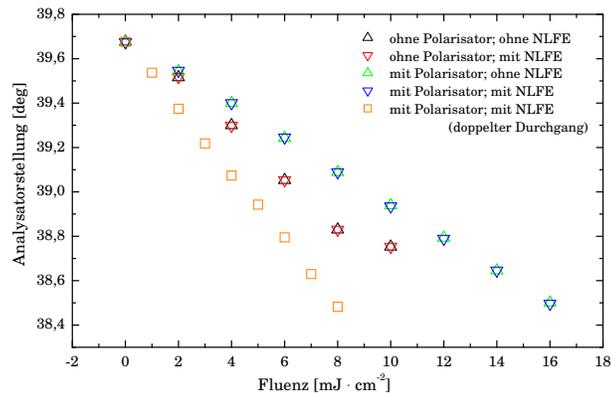


Abbildung 6.9: Zusammenfassung der Ergebnisse der Simulationen für den Faraday-Kristall. Es wurden Simulationen mit und ohne Polarisator, sowie mit und ohne Faraday-Nichtlinearität durchgeführt. Außerdem wurde eine Simulation des Faraday-Rotators für doppelten Durchgang durchgeführt.

men mit der Rotationsdispersion eine intensitätsabhängige Drehung – auf der anderen Seite erzeugt der zirkulare Dichroismus elliptisch polarisiertes Licht, das ebenfalls einen intensitätsabhängigen Drehwinkel zeigt.

6.4 Nichtlineare optische Aktivität

Für die Quarz-Kristalle wurden ähnliche Experimente simuliert. Für den +90-Quarz wurden die Simulationen mit und ohne Polarisator, sowie mit und ohne nichtlinearen optisch aktiven Term durchgeführt. Der

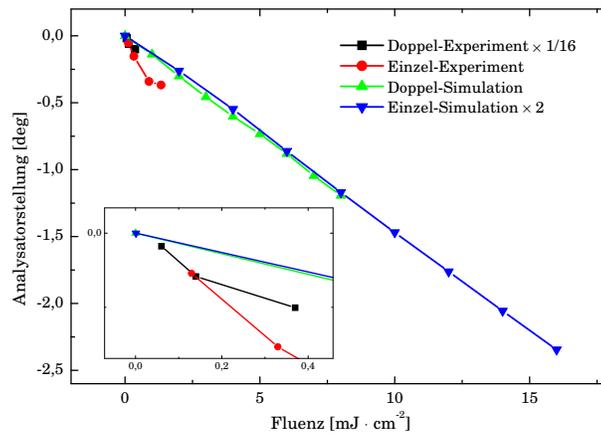


Abbildung 6.10: Vergleich der Simulationen und der Experimente für den einfachen bzw. doppelten Durchgang untereinander. Die Simulationsergebnisse des doppelten Durchgangs wurden mit dem Faktor $\frac{1}{2}$ multipliziert, da der Kerreffekt linear mit der Propagationsstrecke zusammenhängt. Die experimentellen Daten des doppelten Durchgangs wurden mit dem Faktor $\frac{1}{16}$ multipliziert. Darin gehen der kubische Anteil der Drehung durch den zirkularen Dichroismus ($\frac{1}{8}$) und der Anteil der Kerr-Drehung ($\frac{1}{2}$) ein.

nichtlineare optisch-aktive Term des Brechungsindex liefert wiederum keinen Beitrag zur beobachteten nichtlinearen Drehung (siehe Abbildungen 6.11 und 6.12).

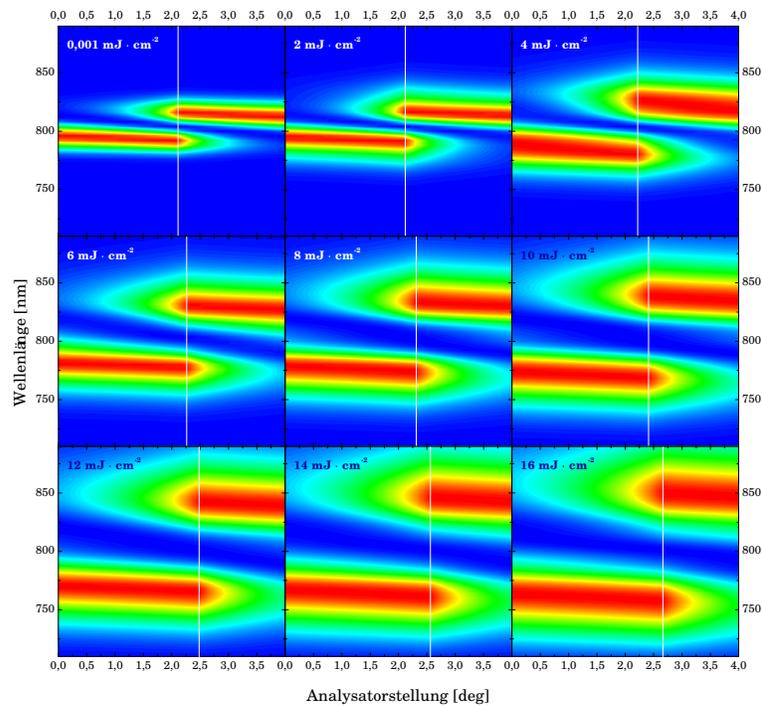


Abbildung 6.11: Simulation der Nichtlinearen optischen Aktivität ohne den Einfluß des Polarisators für den +90-Quarz. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

Wie zu erwarten war, reproduzieren die Simulationen die experimentellen Ergebnisse nicht. Der Vollständigkeit halber wurden die Simulationen mit Polarisator auch für den -60-Quarz und den +15-Quarz durchgeführt.

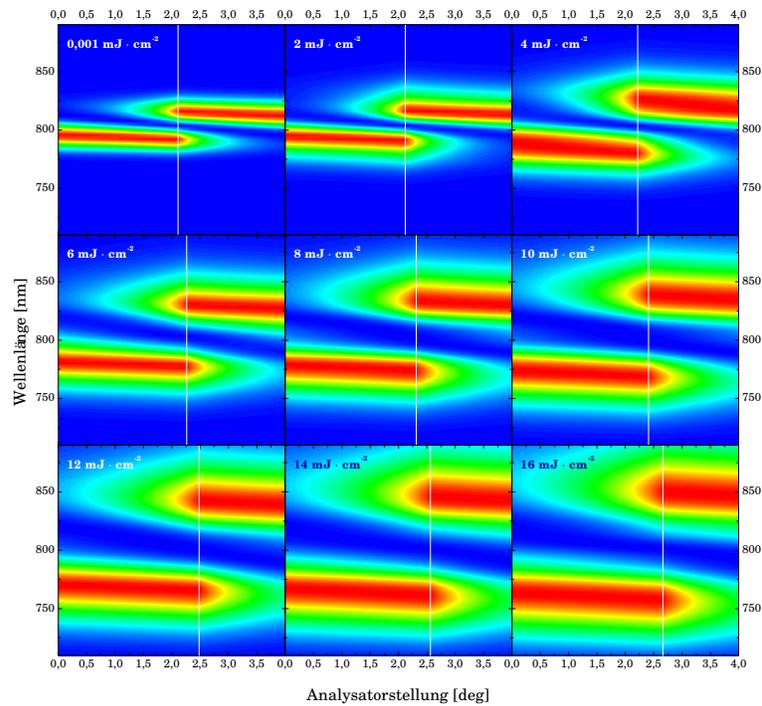


Abbildung 6.12: Simulation der Nichtlinearen optischen Aktivität ohne den Einfluß des Polarisators und unter Vernachlässigung des nichtlinearen optisch aktiven Terms für den +90-Quarz. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

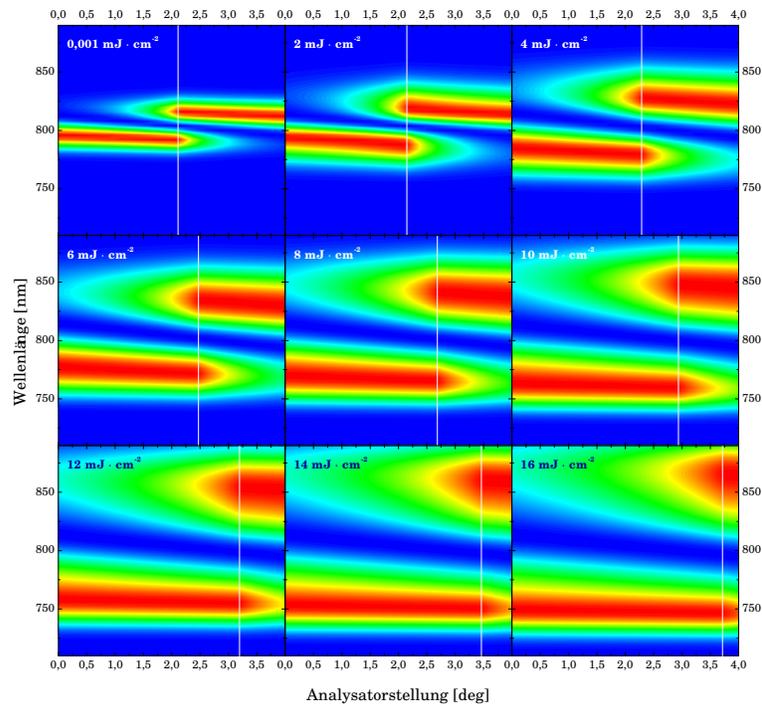


Abbildung 6.13: Simulation der Nichtlinearen optischen Aktivität mit Einfluß des Polarisators für den +90-Quarz. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

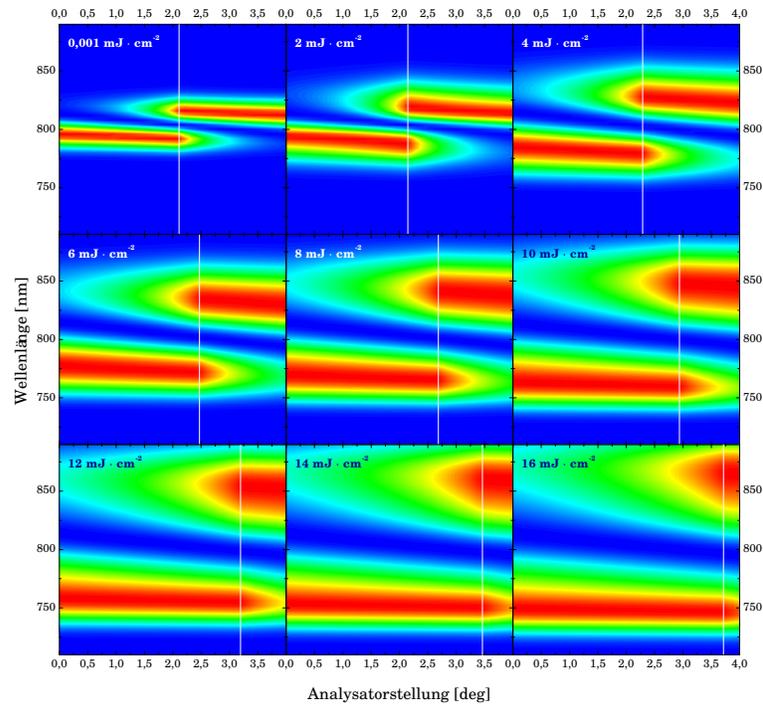


Abbildung 6.14: Simulation der Nichtlinearen optischen Aktivität mit Einfluß des Polarisators und unter Vernachlässigung des nichtlinearen optisch aktiven Terms für den +90-Quarz. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

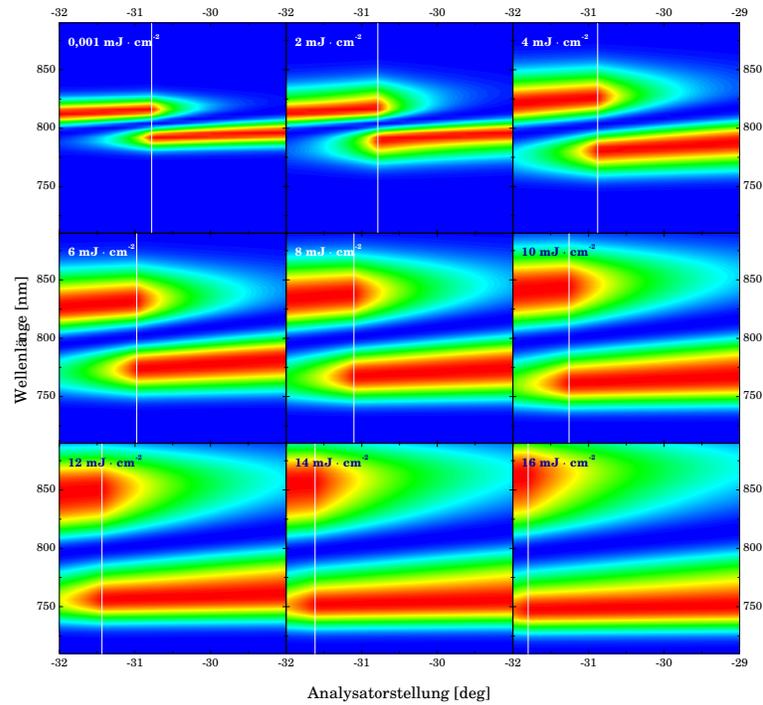


Abbildung 6.15: Simulation der Nichtlinearen optischen Aktivität mit Einfluß des Polarisators für den -60-Quarz. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

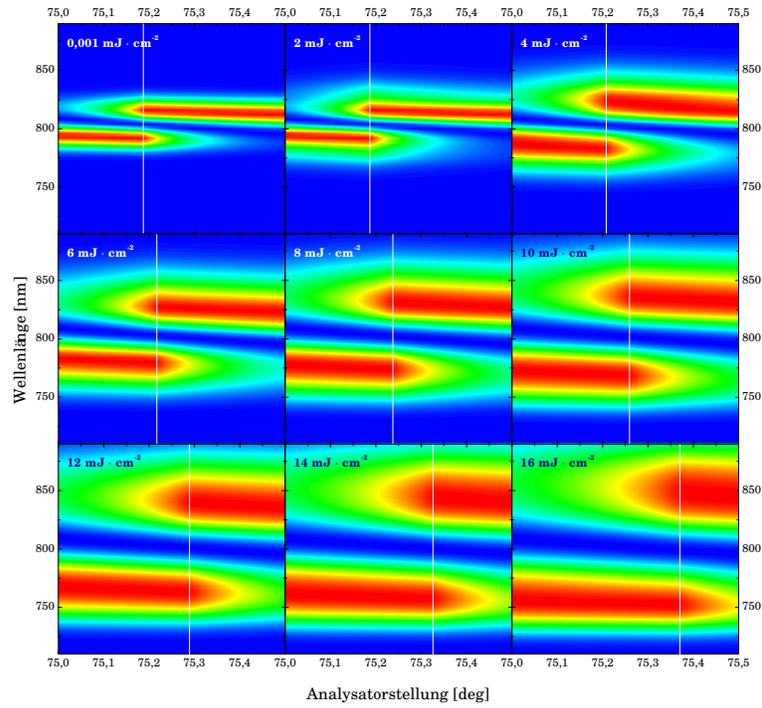


Abbildung 6.16: Simulation der Nichtlinearen optischen Aktivität mit Einfluß des Polarisators für den +15-Quarz. (Zur Erläuterung der Plots, siehe Abbildung 4.16)

Die Ergebnisse und der Vergleich mit den experimentellen Werten sind in Abbildung 6.17 dargestellt.

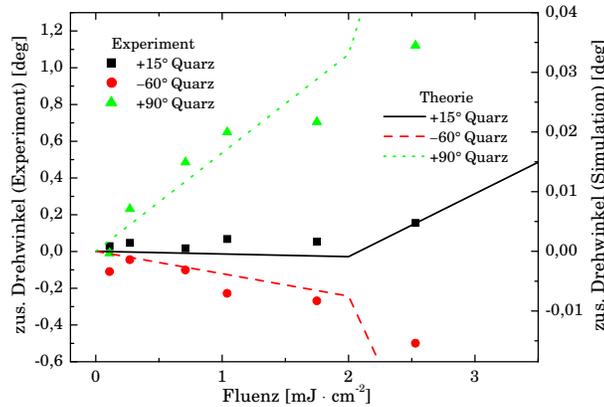


Abbildung 6.17: Ergebnisse der Simulation für die Quarz-Kristalle und experimentelle Ergebnisse. Die Skala der Simulationsergebnisse wurde gestreckt.

Die Erklärung einer zusätzlichen Drehung mittels Kerreffekt liefert hier keine Lösung. Die Richtung der Kerr-Drehung hängt nur vom Verlauf der Rotationsdispersion ab, die für den Faraday-Rotator und den Quarz-Kristall ähnlich verlaufen. Demzufolge würde der Kerr-Effekt auch beim Quarz einen zusätzlichen Drehwinkel bewirken. Im Experiment aber, beobachtet man einen verminderten Drehwinkel. Eine Erklärungsmöglichkeit unter Zuhilfenahme des zirkularen Dichroismus besteht aber dennoch. Das Material, in diesem Fall Quarz, muß bei gleichem Verlauf der Rotationsdispersion einen im Gegensatz zum Faraday-Rotator, zirkularen Dichroismus mit entgegengesetztem Vorzeichen zeigen, denn in den Drehwinkel dieses Effekts geht die Differenz aus den Intensitäten der beiden Wellen ein (5.15). Kehrt sich der

zirkularen Dichroismus um, ändert auch der zusätzliche Drehwinkel sein Vorzeichen. Berechnet man den Verlauf der Rotationsdispersion und des zirkularen Dichroismus unter Beachtung einer Resonanzstelle, kann man keine Kombination finden, die den gewünschten Effekt liefert – die Krümmung hat stets dasselbe Vorzeichen wie der zirkuläre Dichroismus. Zieht man allerdings zwei Resonanzstellen in Betracht, kann man eine Kombination finden, die einen zirkulären Dichroismus mit entgegengesetztem Vorzeichen liefert. Abbildung 6.18 zeigt einen solchen Verlauf.

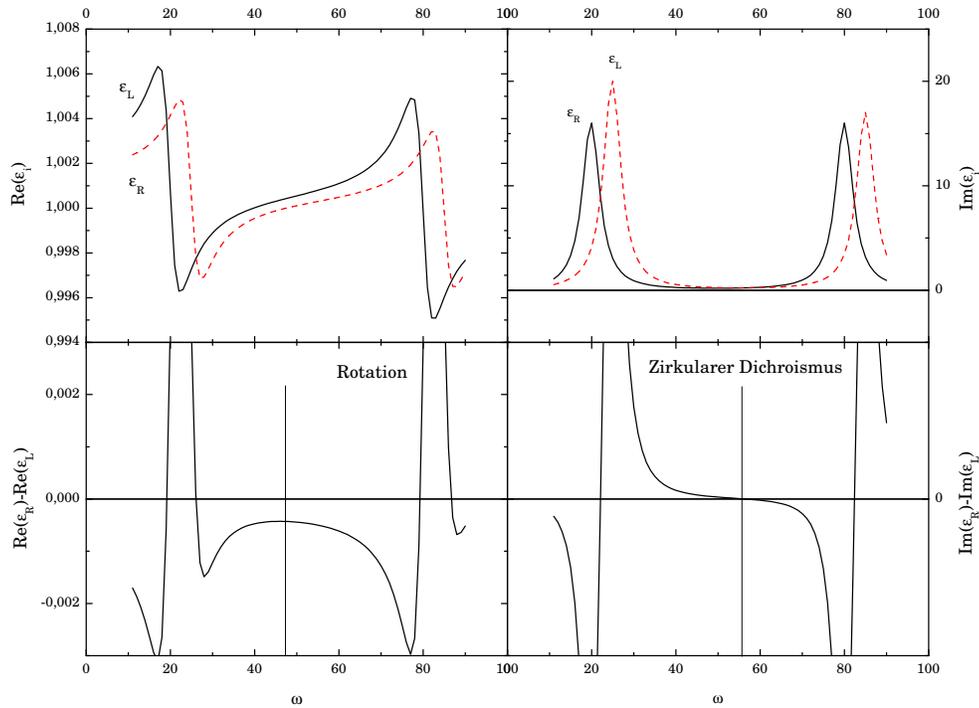


Abbildung 6.18: Eine Dispersionsrelation mit zwei Resonanzstellen, liefert eine zirkulären Dichroismus mit unterschiedlichem Vorzeichen. innerhalb eines kleinen Bereiches ist die Krümmung der Rotationsdispersion negativ und der zirkuläre Dichroismus positiv.

Kurz nachdem die Rotationsdispersion bei $\omega \approx 48$ eine Extremstelle besitzt, kehrt sich das Vorzeichen des zirkulären Dichroismus um ($\omega \approx 57$). Zwischen diesen beiden Frequenzen, kann sich eine reduzierte intensitätsabhängige Drehung bemerkbar machen. Man könnte dies leicht überprüfen, wenn man experimentelle Daten zum zirkulären Dichroismus beim Quarz zur Verfügung hat. Ein Experiment mit doppeltem Durchgang, in Analogie zum Faraday-Rotator, ist nicht möglich, da der Quarz-Kristall die Polarisationsebene wieder zurückdreht.

Kapitel 7

Ausblick

Es wäre interessant, nichtlineare Drehungen der Polarisationssebene auch an anderen optisch aktiven Stoffen nachzuweisen. Von besonderem Interesse sind dabei organische Moleküle, wie zum Beispiel Glucose. Wenn man den Prozess dieser nichtlinearen Wechselwirkung versteht, kann man versuchen, mit hohen Laserfeldern chiral-selektive Experimente durchzuführen.

Der spezifische Drehwert für optisch aktive Lösungen ist sehr klein. Allein eine gesättigte Rohrzuckerlösung dreht die Polarisationssebene des Lichts der Na-D-Linie nur um ca. 2 Grad je cm. Um einen meßbaren nichtlinearen Effekt messen zu können, muß der lineare Drehwinkel mindestens 5 Grad betragen. Andererseits sollte die Wechselwirkungslänge des Materials möglichst klein gehalten werden. Diese beiden Randbedingungen fordern eine Substanz mit einem hohen spezifischen Drehwinkel und einer hohen Konzentration der optisch aktiven Komponenten. In Zusammenarbeit mit Dr. Stadermann vom Institut für organische Chemie wurde versucht, das optisch aktive (–)-Menthol Molekül zu nutzen.

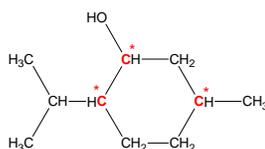


Abbildung 7.1: Das (–)-Menthol Molekül liefert die optisch aktiven Kohlenstoffatome, die durch einen * gekennzeichnet sind.

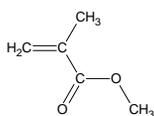


Abbildung 7.2: Das Methylmethacrylat (MMA) Molekül bildet bei der Polymerisation Ketten.

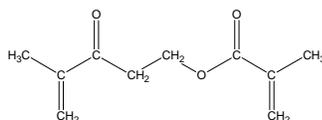


Abbildung 7.3: Das Ethylenglycoldimethacrylat (EGDMA) Molekül ist für den Zusammenhalt der MMA-Stränge verantwortlich.

Zunächst wurde das (–)-Menthol mit MMA (Methylmethacrylat) und EGDMA (Ethylenglycoldimethacrylat) umgesetzt und polymerisiert. Die entstehende Substanz besteht aus einem Netzwerk von MMA-Strängen, die sich an den Kreuzungspunkten über das EGDMA-Molekül verbinden.

Das optische aktive (–)-Menthol geht jedoch keine chemische Bindung mit dem Netzwerk ein, sondern wird „nur“ eingelagert. Dementsprechend niedrig ist die Konzentration und der Drehwinkel. Eine deutliche Erhöhung der Konzentration erreicht man aber, wenn man das (–)-Menthol mit Methacryloylchlorid verestert. Wird diese Form mit EGDMA polymerisiert, entstehen (–)-Menthylmethacrylat-Ketten, die in jedem Kettenglied einen optisch aktiven Rest besitzen.

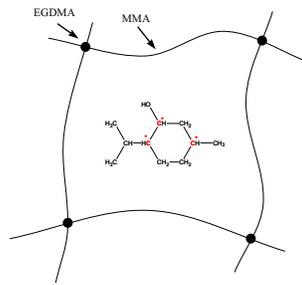


Abbildung 7.4: Die MMA- und EGDMA-Moleküle bilden ein Netzwerk, in den sich das (-)-Menthol einlagert.

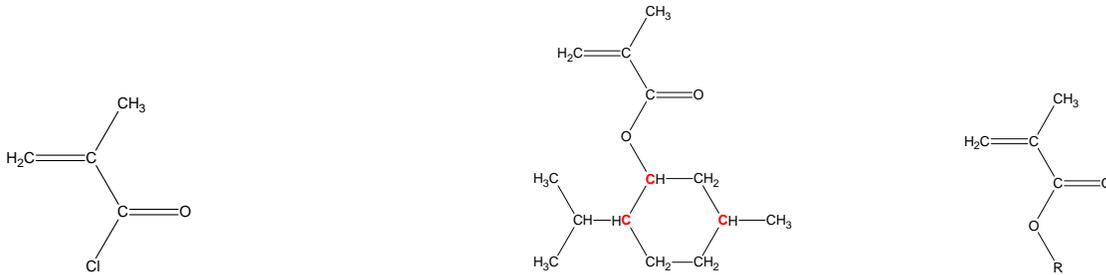


Abbildung 7.5: Das Methacryloylchlorid-Molekül wird zur Veresterung genutzt.

Abbildung 7.6: Aus der Veresterung mit (-)-Menthol entsteht (-)-Menthylmethacrylat. Der Rest R ist im wesentlichen das (-)-Menthol.

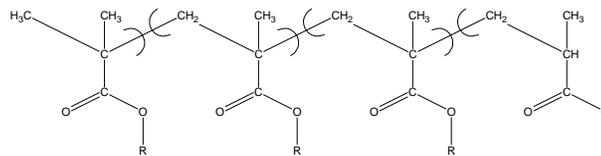


Abbildung 7.7: Jedes Kettenglied enthält einen optisch aktiven Rest.

Diese Struktur führt dazu, daß die Konzentration der optisch aktiven Zentren und damit der Drehwert der Substanz größer wird. Das Ziel ist es, die Konzentration von (-)-Menthylmethacrylat bei der Polymerisation möglichst hoch zu halten, und gleichzeitig die Polymerisation nicht zu übersättigen.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde sowohl der nichtlineare Faradayeffekt als auch die nichtlineare optische Aktivität im nichtresonanten Bereich untersucht. Zum ersten Mal wurden beide Effekte parallel behandelt und miteinander verglichen. Dabei kam ein fs-Lasersystem zum Einsatz, das Laserpulse mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda = 804$ nm und einer Pulsbreite von $\tau = 48$ fs erzeugt. Sowohl zum nichtlinearen Faradayeffekt als auch zur optischen Aktivität wurden Modelle vorgestellt. Die Modelle sagen nichtlineare Drehwinkel in der Größenordnung von wenigen Bogensekunden voraus. Die experimentellen Ergebnisse lagen um 2 Größenordnungen höher als die theoretischen Werte. Der spezifische nichtlineare Drehwinkel von Quarz wurde mit

$$\alpha^*(\text{Quarz}) = -(2,3 \pm 0,5) \cdot 10^{-11} \text{ deg} \cdot \text{cm} \cdot \text{W}^{-1}$$

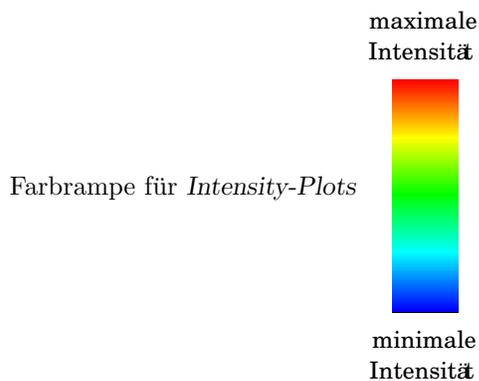
bestimmt. Der spezifische nichtlineare Drehwinkel des Faraday-Rotators betrug

$$\alpha^*(\text{FR-TGG 0mm}) = (2,8 \pm 0,3) \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{GW}^{-1}.$$

Mehrere Konkurrenzeffekte wurden diskutiert. Dabei können die Messungen am Faraday-Rotator durch den Effekt der induzierten Polarisationsdrehung durch elliptisch polarisiertes Licht sowie der Wirkung des optischen Kerreffekts erklärt werden. Von diesen beiden Effekten ist nur die induzierte Polarisationsdrehung eine „echte“ zusätzliche Drehung, da sie das gesamte Spektrum um einen zusätzlichen Winkel dreht. Der Kerreffekt bewirkt eine Verbreiterung des Spektrums. Durch den gekrümmten Verlauf der Rotationsdispersion wird eine Hälfte des Spektrums weiter gedreht als die andere. Der Schwerpunkt des Polarisationswinkels verschiebt sich – man sieht eine nichtlineare Drehung. Der Kerreffekt würde beim Quarz-Kristall eine andere Drehrichtung voraussagen, als sie gemessen wurde. Die Erklärung durch induzierten Polarisationsdrehung kann man unter bestimmten Annahmen auch hier anwenden. Eine genauere Kenntnis der Materialeigenschaften bezüglich des zirkularen Dichroismus könnte hier genauere Hinweise liefern. Qualitativ bessere Meßergebnisse kann man durch eine Optimierung des experimentellen Aufbaus erzielen. Dabei bietet sich der Einsatz eines Teleskops zwischen Polarisator und Probe an. Der Einsatz des Teleskops hätte außerdem den Vorteil, daß räumliche Effekte durch Beugung an der Apertur des Quarz-Kristalls oder des Faraday-Rotators, mit Sicherheit ausgeschlossen werden können. Mit dem TOPAS-System besteht die Möglichkeit, wellenlängenabhängige Experimente durchzuführen, die genaueren Aufschluss über die beteiligten Prozesse liefern können. Die vorgestellten Modelle bedürfen einer Erweiterung, um den zirkularen Dichroismus oder die induzierte Drehung durch elliptisches Licht einzuschließen. Die Theorie der optischen Aktivität für eine symmetrische Anordnung aus 3 Elektronen kann im Rahmen der Bornschen Theorie behandelt werden. Eine genauere Betrachtung der Wechselwirkungskräfte und deren Ursache könnte zu einem besseren Verständnis der optischen Aktivität führen. Nichtzuletzt stellt sich die Frage, ob Experimente mit intensiven Laserfeldern bei der selektiven Reaktion von chiralen Stoffen eingesetzt werden können.

Verwendete Symbole und Abkürzungen

\vec{E}	elektrische Feldstärke
\tilde{E}	Elektrisches Feld im Fourierraum
ϵ_0	Dielektrizitätskonstante des Vakuums
μ_0	Permeabilitätskonstante des Vakuums
c	Lichtgeschwindigkeit in Materie
c_0	Vakuumlichtgeschwindigkeit
ω_L	Mittenfrequenz des Laserpulses
ω_C	Zyklotronfrequenz
ω_0	Resonanzfrequenz in der Dispersionsrelation
n_0	Linearer Brechungsindex
n_2	Nichtlinearer Brechungsindex
$\chi, \vec{\chi}$	Suszeptibilität bzw. Suszeptibilitätstensor
\vec{P}	induzierte Polarisierung
\tilde{P}	induzierte Polarisierung im Frequenzraum
I	Intensität des elektromagnetischen Feldes
F	Fluenz des Laserpuls
\vec{k}_z	Wellenvektor in z -Richtung
\vec{E}_{\odot}	linkszirkular polarisierte elektromagnetische Welle
\vec{E}_{\ominus}	rechtszirkular polarisierte elektromagnetische Welle
α	Drehwinkel der Polarisationssebene
\mathcal{L}	Lagrangefunktion
T	kinetische Energie
U	potentielle Energie
k	Federkonstante beim Drude-Modell
K	nichtlineare Konstante bei Prozessen 3. Ordnung
\vec{A}	Vektorpotential
κ	Stoffkonstante der spezifischen Drehung
$\delta\vec{r}_u$	Vektor der Auslenkung des Elektrons u aus der Ruhelage
\vec{n}_u	Normalenvektor der Bewegung des Elektrons u
q_u	Auslenkung in Richtung von \vec{n}_u
$\vec{\Gamma}$	nichtlokaler Anteil des Suszeptibilitätstensors
ω_ξ^2	Wechselwirkungskonstante der optischen Aktivität
ς	Matrix der Bewegungsgleichungen der optischen Aktivität
h	Steighöhe der Helix
R	Radius der Grundfläche der Helix
α_P	Analysatorwinkel
α^*	spezifischer nichtlinearer Drehwinkel



Literaturverzeichnis

- [1] MAIMAN, T. H.: Stimulated Optical Radiation in Ruby. In: *Nature* 187 (1960), S. 493–494
- [2] FRANKEN, P. A. ; HILL, A. E. ; PETERS, C. W. ; WEINREICH, G.: Generation of Optical Harmonics. In: *Physical Review Letters* 7 (1961), Nr. 4, S. 118–119
- [3] ARMSTRONG, J. A. ; BLOEMBERGEN, N. ; DUCUING, J. ; PERSHAN, P. S.: Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. In: *Physical Review* 127 (1962), Nr. 6, S. 1918–1939
- [4] MAKER, P. D. ; TERHUNE, R. W.: Study of Optical Effects Due to an Induced Polarization Third Order in the Electric Field Strength. In: *Physical Review* 137 (1965), Nr. 3A, S. A801–A818
- [5] BLOEMBERGEN, N. ; PERSHAN, P. S.: Light Waves at the Boundary of Nonlinear Media. In: *Physical Review* 128(2) (1962), S. 606–622
- [6] BLOEMBERGEN, N. ; SHEN, Y. R.: Quantum-theoretical Comparison of Nonlinear Susceptibilities in parametric Media, Lasers, and Raman Lasers. In: *Physical Review* 133(1A) (1964), S. A37–A49
- [7] <http://www.sangha.net/messengers/Ramses-II.htm>
- [8] <http://www.spectrumvoice.com/art/artists/major/v/vlzquz03.htm>
- [9] http://masters-of-photography.com/M/muybridge/muybridge_galloping_horse_full.html
- [10] VERBIEST, T. ; KAURANEN, M. ; PERSOONS, A.: Light-Polarization-Induced Optical Activity. In: *Physical Review Letters* 82 (1999), Nr. 18, S. 3601–3604
- [11] AKHMANOV, S. A. ; ZHARIKOV, V. I.: Nonlinear Optics of Gyrotropic Media. In: *JETP Letters* 6 (1967), S. 137–140
- [12] VLASOV, D. V. ; ZAITSEV, V. P.: Experimental Observation of Nonlinear Optical Activity. In: *JETP Letters* 14 (1971), S. 112–115
- [13] AKHAMANOV, S. A. ; ZHDANOV, B. V. ; ZHELUDEV, N. I. ; KOVRIGIN, N. I. ; KUZNETSOV, V. I.: Nonlinear Optical Activity in Crystals. In: *JETP Letters* 29 (1979), Nr. 264, S. 264–268
- [14] GORBAN, I. S. ; MYAGCHENKO, Y. A. ; SLOBODYANYUK, A. V.: Direct Experimental Observation of Nonlinear Optical Activity in Quartz Crystals. In: *Soviet Tech. Physics Letters* 6 (1980), Nr. 1, S. 1–2
- [15] ZHELUDEV, N. I. ; RUDDOCK, I. S. ; ILLINGWORTH, R.: Intensity Dependence of Thermal Nonlinear Optical Activity in Crystals. In: *Applied Physics B* 49 (1989), S. 65–67
- [16] BAIMAROV, B. K. ; ZAKHARCHENYA, B. P. ; TOPOROV, V. V. ; KHASHKHOZHEV, Z. M.: Nonlinear Rotation of the Plane of Polarization of Light in $\text{Be}_{12}\text{GeO}_{20}$ Crystals. In: *Soviet Physics Solid State* 15 (1973), Nr. 6
- [17] YU, Y. J. ; OSBORN, R. K.: Effect of a Nonlinear Refractive Index on Faraday Rotation. In: *Physical Review A* 15 (1977), Nr. 6, S. 2404–2409

- [18] MACKENZIE, H. A. ; DENNIS, R. B. ; VOGEL, D. ; SMITH, S. D.: Intensity Dependent Faraday Rotation in Indium Antimonide. In: *Optics Communications* 34 (1980), Nr. 2, S. 205–208
- [19] DRAKE, K. H. ; LANGE, W.: Nonlinear Faraday and Voigt Effect in a $J=1$ to $J'=0$ Transition in Atomic Samarium Vapor. In: *Optics Communications* 66 (1988), Nr. 5, 6, S. 315–320
- [20] BAIRD, P. E. G. ; IRIE, M. ; WOLFENDEN, T. D.: Non-linear Faraday Rotation on Simple Transitions in Samarium Vapour. In: *Journal of Physics B* 22 (1989), S. 1733–1742
- [21] BARKOV, L. M. ; MELIK-PASHAYEV, D. A. ; ZOLOTOREV, M. S.: Nonlinear Faraday Rotation in Samarium Vapor. In: *Optics Communications* 70 (1989), Nr. 6, S. 467–472
- [22] CHEN, X. ; TELEGDI, V. L. ; WEIS, A.: Quantitative Study of the Nonlinear Macaluso-Corbino (Resonant Faraday) Effect in Cs. In: *Optics Communications* 74 (1990), Nr. 5, S. 301–305
- [23] ZETIE, K. P. ; WARRINGTON, R. B. ; MACPHERSON, M. J. D. ; STACEY, D. N. ; SCHULLER, F.: Interpretation of Nonlinear Faraday Rotation in Samarium Vapour. In: *Optics Communications* 91 (1992), S. 210–214
- [24] WEIS, A. ; WURSTER, J. ; KANORSKY, S. I.: Quantitative Interpretation of the Nonlinear Faraday Effect as a Hanle Effect of a light-induced Birefringence. In: *Journal of the Optical Society of America B* 10 (1993), Nr. 4, S. 716–724
- [25] FEURER, T. *Kohärente Kontrolle molekularer Systeme*. Vorlesung. WS 1998/99
- [26] LANDAU, L. D. ; LIFSCHITZ, E. M.: *Lehrbuch der Theoretischen Physik*. Bd. VIII. Band: *Elektrodynamik der Kontinua*. Akademie-Verlag, 1967
- [27] ARAGO, D.-F.: Mémoire sur une modification remarquable qu'éprouvent les rayons lumineux dans leur passage à travers certains corps diaphanes, et sur quelques autres nouveaux phénomènes d'optique. In: *Mémoire de la classe des sciences mathématiques et physiques de l'Institut impérial de France* Part 1 (1811), S. 93–134
- [28] BIOT, J.-B.: Mémoire sur un nouveau genre d'oscillation que les molécules de la lumière éprouvent en traversant certains cristaux. In: *Mémoire de la classe des sciences mathématiques et physiques de l'Institut impérial de France* Part 1 (1812), S. 1–372
- [29] FRESNEL, A.: Extrait d'un mémoire sur la double réfraction particulière que présente le cristal de roche dans la direction de son axe. In: *Annales de Chimie et de Physique* (1825), S. 147–161
- [30] DRUDE, P.: In: *Göttinger Nachrichten* (1892), S. 400ff.
- [31] DRUDE, P.: *Lehrbuch der Optik*. 3. Auflage. Verlag von S. Hirzel, 1912
- [32] LINDMAN, K. F.: Über eine durch ein isotropes System von spiralförmigen Resonatoren erzeugte Rotationspolarisation der elektromagnetischen Wellen. In: *Annalen der Physik* 63 (1920), Nr. 4, S. 621–645
- [33] BARRON, L. D.: *Molecular Light Scattering and Optical Activity*. Cambridge University Press, 1982
- [34] : *Gmelins Handbuch der anorganischen Chemie*. Bd. Silicium Teil B / Nr. 15. Verlag Chemie GmbH, 1959
- [35] BORN, M.: Über die natürliche optische Aktivität von Flüssigkeiten und Gasen. In: *Physikalische Zeitschrift* 16 (1915), S. 251–258
- [36] KUHN, W.: Quantitative Verhältnisse und Beziehungen bei der natürlichen optischen Aktivität. In: *Zeitschrift für physikalische Chemie B* 4 (1929), S. 14–36
- [37] SVIRKO, Y. P. ; ZHELUDEV, N. I.: *Polarization of Light in Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons Ltd., 1998

- [38] FICHTENHOLZ, G. M.: *Differential und Integralrechnung I*. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, 1964
- [39] LOWRY, T. M.: *Optical Rotatory Power*. Dover Publications, Inc., 1964
- [40] HELLWEGE, K. H. ; HELLWEGE, A. M.: *8. Teil - Optische Konstanten*. Bd. II. Band - Eigenschaften der Materie in ihren Aggregatzuständen: *Landolt-Börnstein*. 6. Auflage. Springer-Verlag, 1961
- [41] SCHLARB, U. ; SUGG, B.: Refractive Index of Terbium Gallilum Garnet. In: *Physica status solidi (b)* 182 (1994), S. K91–K93
- [42] ADAIR, R. ; CHASE, L. L. ; PAYNE, S. A.: Nonlinear Refractive Index of Optical Crystals. In: *Physical Review B* 39 (1989), Nr. 5, S. 3337–3350
- [43] SCHÄFER, K. ; LAX, E.: *4. Teil - Kalorimetrische Zustandsgrößen*. Bd. II. Band - Eigenschaften der Materie in ihren Aggregatzuständen: *Landolt-Börnstein*. 6. Auflage. Springer-Verlag, 1961
- [44] GERTHSEN, C.: *Gerthsen Physik*. 19. Auflage. Springer-Verlag, 1997
- [45] BOYD, R. W.: *Nonlinear Optics*. Academic Press, 1992
- [46] <http://www.physik.uni-jena.de/~lab2>
- [47] SCHMUTZER, E.: *Grundlagen der theoretischen Physik*. Bd. Teil I. BI Wissenschaftsverlag, 1989

Erklärung

Ich erkläre, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Jena, den 22. Juni 2000

Bodo Schmidt

Danksagung

Ich möchte es natürlich nicht versäumen, allen zu danken,
die mir in dieser anstrengenden Zeit zur Seite standen.

Mein Dank geht an

Prof. Dr. R. Sauerbrey für die Vergabe und die zahlreichen Diskussionen zu dieser Arbeit,

Dr. T. Feurer, G. Stobrawa und M. Hacker für die zahlreichen Diskussionen, Hilfestellungen bei den kleinen Problemen des Alltags und die wunderbare Arbeitsatmosphäre,

Dr. Stadermann und A. Saupe für die Herstellung und Bearbeitung der Polymere,

meiner Familie für die fortwährende Unterstützung während meines Studiums,

Andrea für den Rückhalt in allen Lebenslagen.