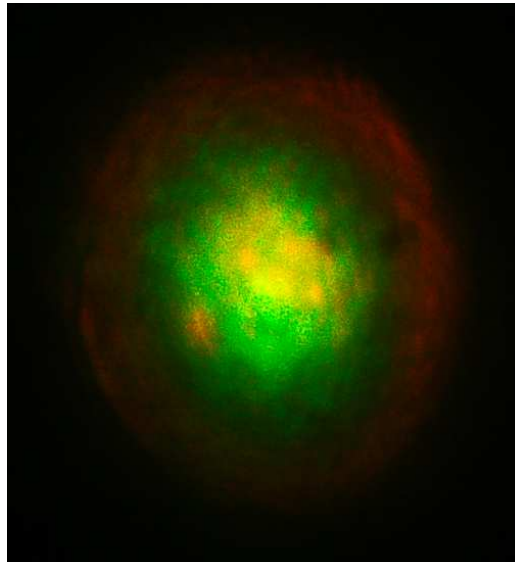


# Nichtlineare Optik

## Stimulierte Raman-Streuung

József András Fülöp



Praktikum für fortgeschrittene Physikstudenten

LMU München, 2007

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>2</b>
<b>2</b>	<b>Theorie</b>	<b>2</b>
2.1	Nichtlineare Polarisation . . . . .	2
2.2	Spontane Raman-Streuung . . . . .	5
2.3	Stimulierte Raman-Streuung . . . . .	7
2.4	Prozesse höherer Ordnung . . . . .	13
2.5	Vierwellenmischung und Phasenanpassung . . . . .	13
<b>3</b>	<b>Experiment</b>	<b>14</b>
3.1	Der Laser . . . . .	14
3.2	Versuchsaufbau . . . . .	15
3.3	Sicherheitshinweise . . . . .	17
3.4	Aufgaben . . . . .	18

**Versuchsaufbau:** Rainer Hörlein, Marion Kraus, József András Fülöp  
**Foto auf der Titelseite:** Alexander Guggenmos, Matthias Handloser

# 1 Einleitung

Nichtlineare Optik befaßt sich mit Phänomenen, die dann auftreten, wenn die optischen Eigenschaften eines Materials unter der Einwirkung von Licht modifiziert werden. Um die optischen Eigenschaften eines Mediums zu verändern, braucht man Intensitäten, die so hoch sind, dass sie nur mit Lasern erreicht werden können. Nichtlineare optische Phänomene sind in dem Sinne nicht-linear, dass die Antwort des Mediums auf das optische Feld nichtlinear von dessen Stärke abhängt.

Nichtlineare optische Prozesse sind sehr vielfältig. Eine wichtige Eigenschaft vieler dieser Prozesse ist die Erzeugung von kohärentem Licht mit einer Frequenz, die unterschiedlich ist von der des erzeugenden Lichtfeldes. Solche frequenzkonvertierenden Prozesse spielen eine besonders wichtige Rolle bei vielen Anwendungen in Wissenschaft und Technik. Wir werden einige frequenzkonvertierende, nichtlineare optische Prozesse in diesem Praktikum untersuchen.

Als weiterführende Literatur über nichtlineare Optik empfiehlt sich das Photonik-Vorlesungsskript von Ferenc Krausz [1], oder das Buch von Boyd [2]. Die Grundlagen sind aber auch in vielen anderen Optikbüchern nachzulesen (siehe z.B. [3, 4, 5]).

## 2 Theorie

### 2.1 Nichtlineare Polarisation

Um genauer zu sehen, was optische Nichtlinearität bedeutet, betrachten wir, wie die Dichte des Dipolmomentes im Medium, also die Polarisation  $P(t)$  von der Stärke  $E(t)$  des angelegten optischen Feldes abhängt. Im Bereich der linearen Optik ist dieser Zusammenhang linear und kann im einfachsten Fall in der Form

$$P(t) = \chi^{(1)}E(t)$$

beschrieben werden. Die Proportionalitätskonstante  $\chi^{(1)}$  ist die lineare Suszeptibilität. Die nichtlineare Antwort des Mediums kann durch eine Verallgemeinerung des obigen linearen Zusammenhanges beschrieben werden:

$$\begin{aligned} P(t) &= \chi^{(1)}E(t) + \chi^{(2)}E^2(t) + \chi^{(3)}E^3(t) + \dots \\ &= P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots \end{aligned}$$

Dabei wurde die Polarisation in eine Potenzreihe von  $E(t)$  entwickelt.  $\chi^{(2)}$  bzw.  $\chi^{(3)}$  ist die nichtlineare Suszeptibilität zweiter bzw. dritter Ordnung,

$P^{(2)}(t)$  bzw.  $P^{(3)}(t)$  ist die nichtlineare Polarisierung zweiter bzw. dritter Ordnung.

Die Evolution des optischen Feldes wird durch die Wellengleichung beschrieben, die in nichtlinearen Medien die folgende Form hat:

$$\nabla^2 E - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 P^{\text{NL}}}{\partial t^2}.$$

$n$  ist der Brechungsindex,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. Die nichtlineare Polarisierung  $P^{\text{NL}}$  wirkt als Quelle für neue Frequenzkomponenten des elektrischen Feldes. Wenn  $\frac{\partial^2 P^{\text{NL}}}{\partial t^2} \neq 0$ , werden Ladungen beschleunigt, und dabei wird elektromagnetische Strahlung erzeugt. Dies erklärt auch die zentrale Rolle der Polarisierung bei der Beschreibung nichtlinearer optischer Prozesse.

### Fragen:

- Wie sieht die nichtlineare Polarisierung zweiter bzw. dritter Ordnung aus, wenn das Medium mit einem monochromatischen Laserstrahl der Frequenz  $\omega$  beleuchtet wird? Welche Harmonischen werden erzeugt?
- Wie sieht die nichtlineare Polarisierung zweiter Ordnung aus, wenn ein Laserstrahl mit zwei Frequenzkomponenten  $E(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}$  benutzt wird? Was für neue Frequenzen werden erzeugt?
- Wie sieht die nichtlineare Polarisierung dritter Ordnung aus, wenn ein Laserstrahl der Form  $E(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_2 e^{-i\omega_2 t} + E_3 e^{-i\omega_3 t} + \text{c.c.}$  benutzt wird? Was für neue Frequenzen werden erzeugt?

Ein zentraler Begriff der nichtlinearen Optik ist die *Phasenanpassung* (Abb. 1). Sie beschreibt die Phasenbeziehung zwischen der erzeugenden *nichtlinearen* Polarisationswelle und der dadurch erzeugten elektromagnetischen Welle. Bleibt diese relative Phase beim Durchlaufen des nichtlinearen Mediums konstant, spricht man von Phasenanpassung. Dies bedeutet, dass das elektromagnetische Feld, das an einer beliebigen Stelle entlang der Propagationsrichtung durch die Polarisationswelle erzeugt wurde, in Phase ist mit der sich im Medium ausbreitenden elektromagnetischen Welle, die an früheren Stellen erzeugt wurde. Das zuletzt erzeugte  $E$ -Feld interferiert also konstruktiv mit dem vorher erzeugten Feld und der Intensitätszuwachs ist maximal.

Verändert sich hingegen die relative Phase zwischen nichtlinearer Polarisierung und  $E$ -Feld mit dem Propagationsabstand (die zwei Wellen laufen aus der Phase), ist die Interferenz nicht mehr optimal. Der Intensitätszuwachs

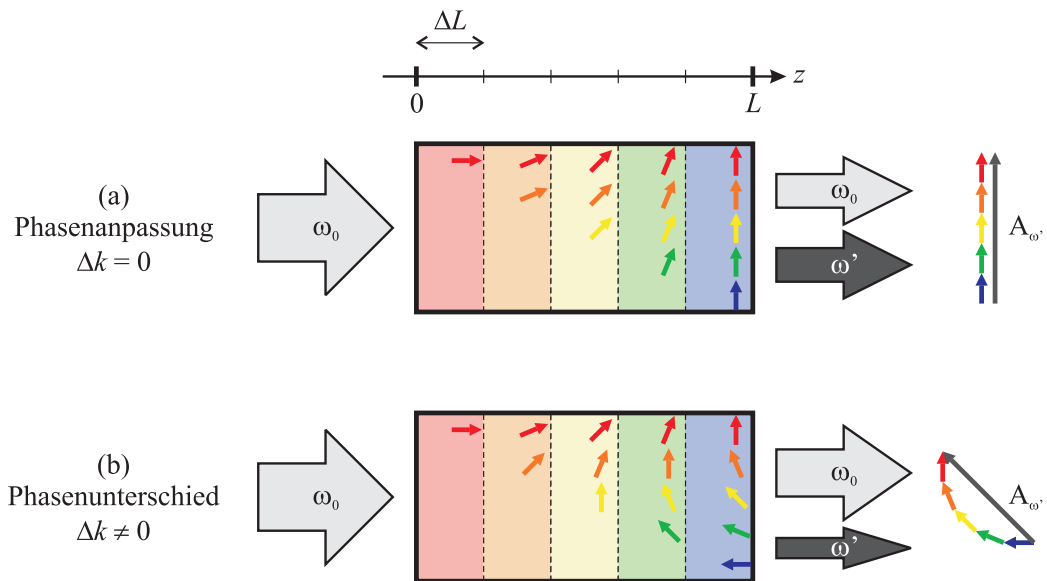


Abbildung 1: Phasenanpassung. Das nichtlineare Medium der Länge  $L$  ist in dünne Schichten mit einer Dicke von  $\Delta L$  aufgeteilt. Die Pfeilchen im Medium symbolisieren die komplexe Amplitude der im nichtlinearen Prozess erzeugten Welle. Die Richtung dieser Amplitudenvektoren gibt die Phase des elektrischen Feldes an (und nicht etwa die räumliche Ausrichtung des Feldes). Die Farbe der Amplitudenvektoren weist auf die  $z$ -Koordinate hin, wo der jeweilige Amplitudenvektor erzeugt wurde. Die einzelnen Vektorreihen zeigen, wie sich die Phase des im jeweiligen dünnen Schicht erzeugten Amplitudenvektors während der (linearen) Ausbreitung im Medium ändert. Die Anfangsphase ist von der Phase der nichtlinearen Polarisationswelle an der  $z$ -Koordinate der Erzeugung abhängig. Das Vektordiagramm rechts zeigt die resultierende Ausgangsamplitude, was offensichtlich bei perfekter Phasenanpassung ihr Maximum hat.  $\omega_0$  ist die Frequenz des erzeugenden Lichtes,  $\omega'$  die des Erzeugten.

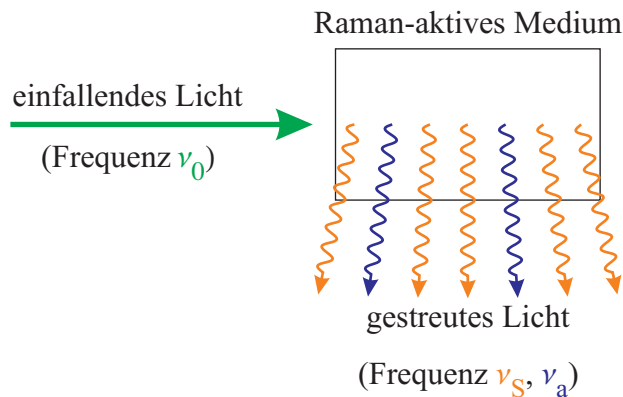


Abbildung 2: Schema der spontanen Raman-Streuung.

wird langsamer, und ab einer bestimmten Propagationslänge wird sogar destruktive Interferenz (also Intensitätsverlust) auftreten. Eine maximale Ausbeute in dem jeweiligen nichtlinearen Prozess kann also nur im Falle der Phasenanpassung erreicht werden.

Qualitativ wird die Phasenanpassung bzw. die Abweichung davon durch die Wellenvektor-Verschiebung  $\Delta\mathbf{k}$  charakterisiert.  $\Delta\mathbf{k}$  ist der Unterschied zwischen dem Wellenvektor  $\mathbf{k}_E$  des erzeugten  $E$ -Feldes und dem der nichtlinearen Polarisation,  $\mathbf{k}_{P,NL}$ :  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_E - \mathbf{k}_{P,NL}$ . Für die Erzeugung von der zweiten Harmonischen gilt z.B.  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_{2\omega} - 2\mathbf{k}_\omega$ . Die Phasenverschiebung ist  $\Delta kz$ , wo  $z$  die Propagationslänge ist.

## 2.2 Spontane Raman-Streuung

Spontane Raman-Streuung (Abb. 2) kann beobachtet werden, wenn Licht der Frequenz  $\nu_0$  auf ein Medium trifft und das gestreute Licht spektroskopisch untersucht wird. Das Medium kann fest, flüssig, oder gasförmig sein. Das durch spontane Raman-Streuung erzeugte Licht ist in der Frequenz verschoben. Die niederfrequenten Komponenten heißen Stokes Linien ( $\nu_s$ ), diejenige mit einer höheren Frequenz anti-Stokes Linien ( $\nu_a$ ). Die Stokes Linien sind typischerweise um Größenordnungen intensiver als die anti-Stokes Linien.

Der physikalische Hintergrund für die Raman-Streuung kann mithilfe von Energieniveauschemata beleuchtet werden (Abb. 3). Bei der inelastischen Streuung von Licht an einem Molekül ändert sich sowohl die Frequenz des Lichtes als auch die Energie des Moleküls. War das Molekül anfangs im Grundzustand, so wird die Frequenz des Raman-gestreuten Lichtes niedriger (Stokes Verschiebung), und das Molekül bleibt im angeregten Zustand

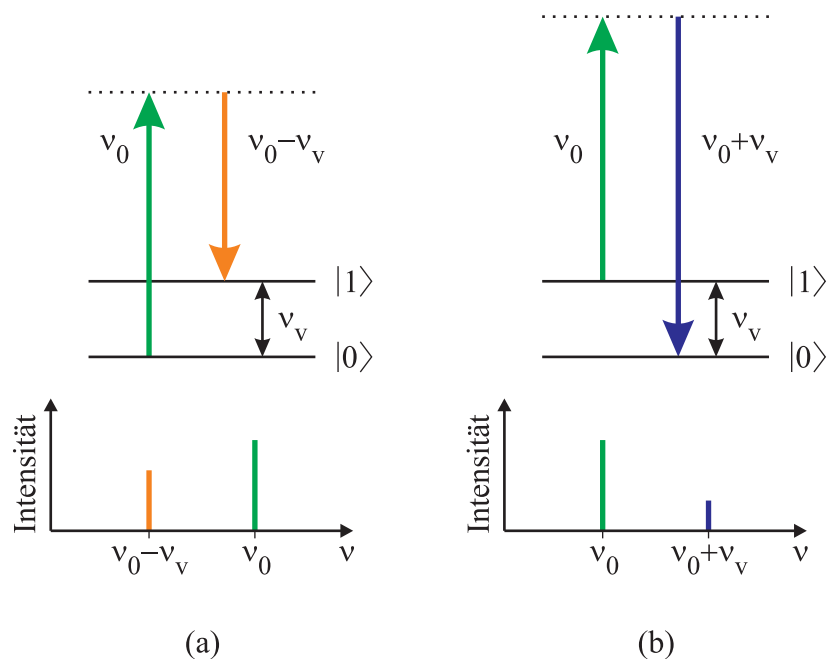


Abbildung 3: Energieniveauschema für Raman Stokes Streuung (a), und Raman anti-Stokes Streuung (b). Unten sind die jeweiligen Raman-Spektren zu sehen.

zurück. Die Energiebilanz für diesen Prozess lautet:

$$h\nu_0 = h\nu_v + h\nu_S.$$

Hier ist  $\nu_v$  eine, für das Medium charakteristische Frequenz (siehe unten) und  $h$  ist die Plancksche Konstante. Trifft das Licht hingegen auf ein Molekül im angeregten Zustand, so wird die Frequenz des gestreuten Lichtes erhöht (anti-Stokes Verschiebung), und das Molekül wird im Grundzustand zurückgelassen. Die Energiebilanz lautet:

$$h\nu_0 + h\nu_v = h\nu_a.$$

In diesem Versuch werden wir Benzol ( $C_6H_6$ ) als Raman-aktives Medium verwenden. Bei der inelastischen Streuung von Licht an einem Benzolmolekül kann dieses zu Schwingungen angeregt werden. Verschiedene Schwingungsarten haben unterschiedliche  $\nu_v$  Vibrationsfrequenzen, die charakteristisch für Benzol sind. Die Energie in einer Schwingungsart kann ein ganzzahliges Vielfaches des Schwingungsquantens  $h\nu_v$  sein.

Im thermischen Gleichgewicht befinden sich die meisten Moleküle im Grundzustand. Die Anzahl der Moleküle im ersten angeregten Schwingungs-

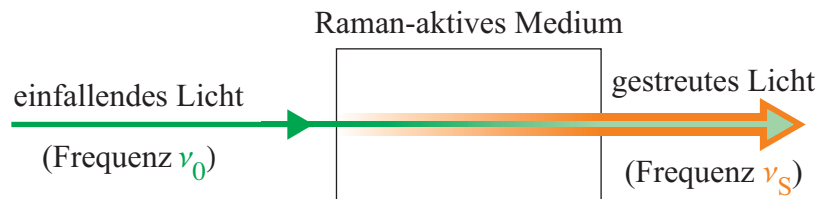


Abbildung 4: Schema der stimulierten Raman-Streuung.

zustand ist um den Boltzmann-Faktor  $e^{-\frac{h\nu_S}{kT}}$  kleiner. Dies erklärt auch, warum die anti-Stokes Linien sehr viel schwächer sind als die Stokes Linien.

### Fragen:

- Was ist kohärentes Licht?
- Wie ist das Populationsverhältnis zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Schwingungszustand bei einer typischen Wert von  $\nu_S/c = 1000 \text{ cm}^{-1}$  für die Raman-Frequenzverschiebung bei Raumtemperatur?

## 2.3 Stimulierte Raman-Streuung

Wird ein Raman-aktives Medium mit einem hochintensiven, monochromatischen (kohärenten) Strahl — z. B. mit einem Laserstrahl — beleuchtet, kann es zur stimulierten Raman-Streuung (SRS) kommen (Abb. 4) [2, 3]. Dabei kann ein kohärenter, in die Laserstrahlrichtung (eventuell auch in die Gegenrichtung) gerichteter Ausgang mit der Stokes-verschobenen Frequenz beobachtet werden. Ist die Intensität des einfallenden Laserlichtes hoch genug, kann die frequenzverschobene Strahlung auch sehr intensiv werden, im Gegensatz zu der meist sehr schwachen und nicht gerichteten spontanen Streuung. Die stimulierte Raman-Streuung kann unter Umständen sehr effektiv sein, mit einer Konversionseffizienz von mehr als 10% bei der Stokes-Frequenz. Dies übertrifft die Effizienz der spontanen Streuung um viele Größenordnungen. Eine weitere wichtige Eigenschaft der stimulierten Streuung in die Stokes-Mode ist der exponentielle Zuwachs der Intensität mit der Propagationslänge.

Es sei erwähnt, dass es eine Analogie zwischen spontaner bzw. stimulierter Raman-Streuung einerseits, und spontaner bzw. stimulierter Emission andererseits besteht. Die physikalischen Hintergründe für Streuung und Emission von Licht sind jedoch unterschiedlich, daher sind die zwei Prozesse klar zu unterscheiden.

	<i>spontane RS</i>	<i>stimulierte RS</i>
<i>Effizienz</i>	sehr schwach	hoch
<i>Richtung</i>	nicht gerichtet	in der Laserstrahlrichtung bzw. in der Gegenrichtung strahlförmig gerichtet
<i>Kohärenz</i>	nicht kohärent	kohärent

Tabelle 1: Spontane und stimulierte Raman-Streuung (RS) im Vergleich.

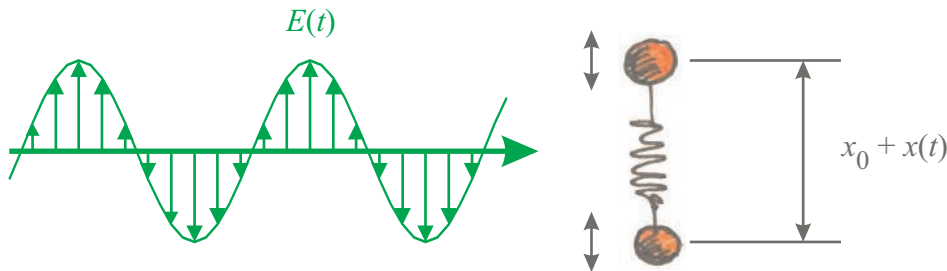


Abbildung 5: Klassisches Modell für SRS.

**Klassisches Modell.** Die physikalischen Hintergründe der SRS können mit Hilfe eines klassischen Bildes erläutert werden. Dabei wird die Wechselwirkung von optischer Strahlung mit einer Vibrationsmode der Moleküle des Raman-aktiven Mediums betrachtet (Abb. 5). Die Vibrationsmode wird als harmonischer Oszillator mit einer Resonanzfrequenz  $\nu_v = \omega_v/2\pi$  und Dämpfung  $\gamma$  beschrieben. Die Auslenkung des interatomaren Abstandes von seinem Gleichgewicht wird mit der Koordinate  $x(t)$  bezeichnet,  $x_0$  ist der Gleichgewichtsabstand. Daraus ergibt sich die folgende Bewegungsgleichung für das Molekül:

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} + \omega_v^2 x = \frac{F(t)}{m},$$

wobei  $F(t)$  der auf die Vibrationsmode wirkende Kraft, und  $m$  die reduzierte Masse ist.

Es wird angenommen, dass die Polarisierbarkeit  $\alpha$  eines Moleküls von der Schwingungskordinate  $x$  abhängt. In erster Näherung gilt:

$$\alpha(t) = \alpha_0 + \left. \frac{\partial \alpha}{\partial x} \right|_{x_0} x(t).$$

Schwingt das Molekül, so ändert sich dessen Polarisierbarkeit mit der Zeit. Diese Annahme ist von grundlegender Bedeutung, und hat zweierlei Folgen:

- (a) Das Lichtfeld wird durch die schwingenden Moleküle moduliert.

(b) Die molekulare Schwingung wird durch das Lichtfeld beeinflusst.

Es kommt also zu gegenseitiger Wechselwirkung zwischen dem Lichtfeld und der molekularen Schwingung.

**Fragen:**

- Wie ist die molekulare Polarisierbarkeit definiert?

**Modulation des Lichtfeldes.** Um zu sehen, wie das einfallende Licht durch die schwingenden Moleküle verändert wird, nehmen wir zunächst an, dass alle Moleküle des Mediums kohärent (im Takt, synchronisiert) schwingen. (Wie dies erreicht werden kann, werden wir im folgenden Paragraphen sehen.) Die daraus resultierende simultane periodische Änderung der Polarisierbarkeit eines jeden einzelnen Moleküls führt zu einer zeitlichen Modulation des Brechungsindex für das gesamte Medium:

$$n(t) = \sqrt{1 + \chi(t)} = \sqrt{1 + N\alpha(t)},$$

wobei  $N$  die Dichte der Moleküle, und  $\chi = N\alpha$  die (makroskopische) Suszeptibilität ist. Dadurch wird auch die Phase des Lichtfeldes periodisch moduliert, was eine periodische Modulation der Lichtfrequenz bedeutet. Die momentane Frequenz ist nämlich durch  $\omega(t) = \dot{\varphi}(t)$  mit der Phase verbunden. Es läßt sich zeigen, dass in diesem Fall im Spektrum des transmittierten Lichtes Seitenbänder auftreten, die um  $\pm\nu_v$  von der Laserfrequenz entfernt sind.

**Fragen:**

- Wie ist das Spektrum eines zeitabhängigen elektrischen Feldes  $E(t)$  definiert?
- Es sei angenommen, dass  $n(t)$  sich langsam genug ändert um seine Veränderung während der Laufzeit des Lichtes durch das Medium vernachlässigen zu können. Wie ist die momentane Frequenz des transmittierten Strahles?

**Kohärent schwingende Moleküle.** Wie können Moleküle zum kohärenten Schwingen angeregt werden? Im elektrischen Feld  $\mathbf{E}(z, t)$  des Laserlichtes werden die Moleküle polarisiert. Das induzierte Dipolmoment eines Moleküls an

der Position  $z$  ist durch  $\mathbf{p}(z, t) = \alpha \mathbf{E}(z, t)$  gegeben. Die durchschnittliche (über die optische Periode gemittelte) Energie des Dipols im Lichtfeld ist

$$W = \frac{1}{2} \langle \mathbf{p}(z, t) \mathbf{E}(z, t) \rangle = \frac{1}{2} \alpha \langle \mathbf{E}^2(z, t) \rangle.$$

Die Mittelung ist durch den eckigen Klammern gekennzeichnet.

$$F = \left. \frac{dW}{dx} \right|_{x_0} = \frac{1}{2} \left. \frac{d\alpha}{dx} \right|_{x_0} \langle \mathbf{E}^2(z, t) \rangle$$

gibt die Kraft an, die das optische Feld auf den Freiheitsgrad der Vibration ausübt. Ist nur eine einzige Frequenz im Laserlicht enthalten (monochromatisches Feld), so tritt nur eine konstante Kraft auf. Sind es jedoch zwei unterschiedliche Frequenzen vorhanden, wird eine zeitlich verändernde Kraft auftreten, und die Schwingung der Moleküle wird mit der Schwebungsfrequenz (kohärent) getrieben.

#### Fragen:

- Wie sieht die Zetabhängigkeit des E-Feldes aus, wenn zwei verschiedene Frequenzen vorhanden sind?

**Ursprung der stimulierten Raman-Streuung.** Die zwei Prozesse (a) und (b) der Wechselwirkung zwischen den Molekülen und dem Lichtfeld verstärken sich gegenseitig (Abb. 6). Je stärker die Intensität durch die Komponente mit der verschobenen Frequenz  $\nu_0 - \nu_v$  moduliert wird, desto stärker werden die molekularen Oszillatoren (kohärent) getrieben. Auf der anderen Seite, stärkere kohärente Oszillation führt zu einer stärkeren Modulation des Lichtes. Das Resultat ist die kohärente Verstärkung der Strahlung mit der verschobenen Frequenz  $\nu_0 - \nu_v$ .

**SRS und nichtlineare Polarisation.** Die obige qualitative Erklärung für SRS läßt sich genauer begründen, wenn man das klassische Modell im Detail ausarbeitet. Hier sollen nur einige wichtige Aspekte der quantitativen Beschreibung hervorgehoben werden; eine ausführliche Betrachtung findet man in der Literatur.

Die Ausbreitung einer Lichtwelle wird durch die Wellengleichung beschrieben. Bei nichtlinearen Prozessen wird dazu auch die nichtlineare Polarisation (bzw. die nichtlineare Suszeptibilität) benötigt. Um diese für SRS zu finden, nehmen wir an, dass die Stärke des optischen Feldes durch

$$E(z, t) = A_0 e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + A_S e^{i(k_S z - \omega_S t)} + c.c.$$

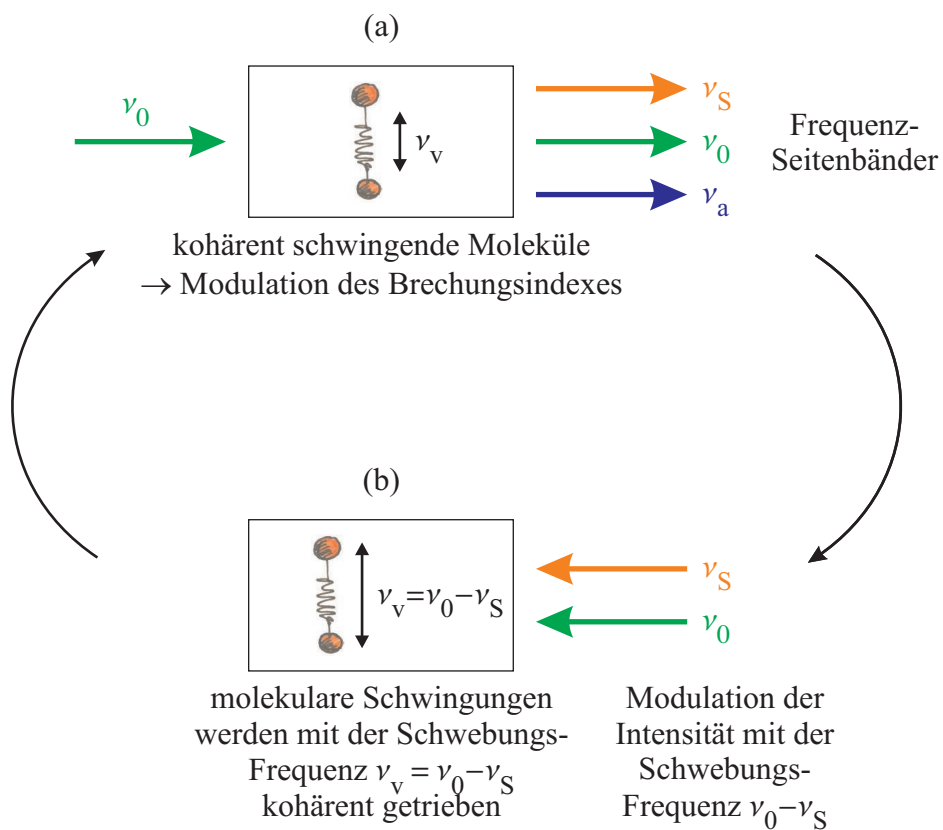


Abbildung 6: Die gegenseitige Wechselwirkung zwischen den Molekülen und dem Lichtfeld führt zur SRS. Wegen der besseren Verständlichkeit sind unter (b) nur zwei Eingangsfrequenzen angezeigt.

gegeben ist. Mit Hilfe des obigen Ausdruckes für die treibende Kraft  $F(z, t)$  der molekularen Oszillatoren lässt sich daraus folgendes berechnen:

$$F(z, t) = \left. \frac{d\alpha}{dx} \right|_{x_0} A_0 A_S^* e^{i[(k_0 - k_S)z - (\omega_0 - \omega_S)t]} + \text{c.c.}$$

Die Moleküle werden also mit der Differenzfrequenz  $\omega_0 - \omega_S$  getrieben. Dieser Ausdruck wird in die Bewegungsgleichung für die molekulare Schwingung eingesetzt. Mit dem Ansatz  $x(z, t) = x(\Omega)e^{i(Kz - \Omega t)} + \text{c.c.}$  wird die Bewegungsgleichung leicht gelöst, wobei  $K = k_0 - k_S$  und  $\Omega = \omega_0 - \omega_S$  gilt. Daraus ergibt sich für die makroskopische Polarisation  $P(z, t) = Np(z, t) = N\alpha(z, t)E(z, t)$  folgendes:

$$P(z, t) = N\alpha_0 E(z, t) + N \left. \frac{d\alpha}{dx} \right|_{x_0} x(z, t)E(z, t).$$

Der zweite Term gibt die nichtlineare Polarisation  $P^{\text{NL}}(z, t)$  an. Setzt man hier die Ausdrücke für  $x$  und  $E$  ein, so erhält man Terme mit unterschiedlichen Frequenzkomponenten. Der Term mit der Frequenz  $\omega_S$  ist die Stokes-Polarisation, deren Amplitude durch

$$P(\omega_S) = \frac{N}{m} \left( \left. \frac{d\alpha}{dx} \right|_{x_0} \right)^2 |A_0|^2 A_S e^{ik_S z} \frac{1}{\omega_S^2 - \Omega^2 + 2i\Omega\gamma}$$

gegeben ist. Eine Raman-Suszeptibilität lässt sich mit  $P(\omega_S) = 6\chi_R(\omega_S) |A_0|^2 A_S e^{ik_S z}$  definieren. Da hier Amplituden von elektrischen Feldstärken insgesamt in dritter Potenz vorkommen, handelt es sich um eine nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung.

Um die räumliche Veränderung der Amplitude  $A_S(z)$  der Stokes-Welle zu beschreiben, setzt man die Ausdrücke für  $E(z, t)$  und  $P^{\text{NL}}(z, t) = P(\omega_S)e^{-i\omega_S t} + \text{c.c.}$  in die Wellengleichung ein. Unter der Annahme, dass die Amplitude sich langsam ändert, gilt

$$\frac{dA_S}{dz} = -\alpha_S A_S,$$

mit  $\alpha_S = -12\pi i \frac{\omega_S}{n_S c} \chi_R(\omega_S) |A_0|^2$  für den ‘‘Absorptionskoeffizienten’’ der Stokes-Welle. Da der Imaginärteil von  $\chi_R(\omega_S)$  negativ ist, ist der Realteil von  $\alpha_S$  negativ, und die Amplitude der Stokes-Welle wächst exponentiell.

Die anti-Stokes Suszeptibilität erhält man leicht, wenn man  $\omega_S$  in der obigen Herleitung durch  $\omega_a$  ersetzt, da für das Vorzeichen von  $\omega_0 - \omega_S$  wurde keine Annahme gemacht. Der Imaginärteil von  $\chi_R(\omega_a)$ , und damit auch der Realteil von  $\alpha_a$  ist positiv, und die anti-Stokes-Welle wird abgeschwächt. In einem, mit der Laserfrequenz  $\omega_0$  getriebenen Raman-aktiven Medium enthält

der kohärente Ausgang in der Strahlrichtung also die Frequenz  $\omega_S$ , nicht aber  $\omega_a$ .

### Fragen:

- Wie ist die Amplitude  $x(\Omega)$  der molekularen Schwingung? Wie sieht der Ausdruck für  $P^{\text{NL}}(z, t)$  aus?

## 2.4 Prozesse höherer Ordnung

Bei SRS wird ein kohärenter Strahl mit der Stokes-verschobenen Frequenz  $\nu_S = \nu_{S1} = \nu_0 - \nu_v$  erzeugt. Wie oben erwähnt, kann die Konversion eine Effizienz von über 10% erreichen. Die hohe Intensität bei der Stokes-Frequenz kann selbst SRS hervorrufen, wobei ein kohärenter Strahl mit der Frequenz  $\nu_{S2} = \nu_0 - 2\nu_v$  erzeugt wird. Bei sehr hohen Intensitäten kann sich dieser Prozess wiederholen, und zu einer ganzen Reihe  $\nu_{S1}, \nu_{S2}, \nu_{S3}, \dots$  von neuen spektralen Komponenten führen.

## 2.5 Vierwellenmischung und Phasenanpassung

Im Experiment kann sehr oft auch eine anti-Stokes-Welle mit relativ hoher Intensität beobachtet werden — zumindest in bestimmten Richtungen. Die Ursache dafür ist ein weiterer Term der Frequenz  $\omega_a$  in der nichtlinearen Polarisation  $P^{\text{NL}}(z, t)$ . Die totale Amplitude der Polarisation bei der anti-Stokes Frequenz ist damit durch

$$P(\omega_a) = 6\chi_R(\omega_a) |A_0|^2 A_a e^{ik_a z} + 3\chi_F(\omega_a) A_0^2 A_S^* e^{i(2k_0 - k_S)z}$$

gegeben. Der zweite Term beschreibt einen sogenannten Vierwellenmischungsprozess (*four-wave mixing*),  $\chi_F$  ist die dazugehörige nichtlineare Suszeptibilität. Die Amplitude der Stokes-Polarisation besteht ebenfalls aus zwei Termen:

$$P(\omega_S) = 6\chi_R(\omega_S) |A_0|^2 A_S e^{ik_S z} + 3\chi_F(\omega_S) A_0^2 A_a^* e^{i(2k_0 - k_a)z}.$$

Für die räumliche Evolution der Stokes- und anti-Stokes-Felder erhält man mit der Wellengleichung nun die folgenden gekoppelten Gleichungen:

$$\begin{aligned} \frac{dA_S}{dz} &= -\alpha_S A_S + \kappa_S A_a^* e^{i\Delta k z}, \\ \frac{dA_a}{dz} &= -\alpha_a A_a + \kappa_a A_S e^{i\Delta k z}. \end{aligned}$$

Für die nichtlinearen Absorptionskoeffizienten gilt  $\alpha_j = -(12\pi i \omega_j / n_j c) \chi_R(\omega_j) |A_0|^2$ , und für die nichtlinearen Kopplungskoeffizienten  $\kappa_j = (6\pi i \omega_j / n_j c) \chi_F(\omega_j) A_0^2$ ,

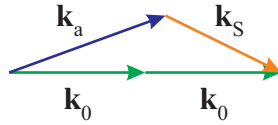


Abbildung 7: Phasenanpassung für Vierwellenmischung.

mit  $j = S, a$ .  $\Delta k = \Delta \mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{z}} = (2\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_S - \mathbf{k}_a) \cdot \hat{\mathbf{z}}$  ist die Wellenvektor-Verschiebung ( $\hat{\mathbf{z}}$  ist der Einheitsvektor in der  $z$ -Richtung).

Die Stokes und anti-Stokes Amplituden werden von zwei Termen getrieben, der erste beschreibt die Raman-Verstärkung bzw. -Verlust, der zweite die Vierwellenmischung. Vierwellenmischung führt zu einem effektiven Amplitudenzuwachs nur bei Phasenanpassung, d.h. wenn  $\Delta k$  klein ist. Für Materialien mit normaler Dispersion kann immer eine perfekte Phasenanpassung ( $\Delta k = 0$ ) erreicht werden, wenn die Stokes-Welle unter einem bestimmten Winkel zu dem Laserstrahl propagiert (Abb. 7). In diesen Richtungen kann eine intensive Strahlung erzeugt werden, sowohl bei der Stokes als auch bei der anti-Stokes Frequenz.

#### Fragen:

- Wie ist der Verlauf des Brechungsindex im Bereich der normalen Dispersion?

## 3 Experiment

### 3.1 Der Laser

Um die erforderlichen sehr hohen Intensitäten erreichen zu können, die für stimulierte Raman-Streuung benötigt werden, braucht man einen leistungsstarken Laser als Pumpquelle. Zu diesem Zweck steht ein gepulster Nd:YAG Laser zur Verfügung. Die maximale Pulswiederholrate beträgt 10 Hz. Für den Laserbetrieb sind die Nd-Atome verantwortlich, die in einen YAG Kristall (Yttrium-Aluminium-Granat,  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ) eingebettet sind. Die Nd-Atome werden durch optisches Pumpen mit einer Blitzlampe angeregt. Der Laserresonator ist Gütegeschaltet (Q-switching), also die Verluste im Resonator werden plötzlich von einem hohen Wert auf einen niedrigen geschaltet. Gleichzeitig mit dem Schalten setzt der Laserbetrieb ein und der Laser emittiert einen kurzen Puls. Die Pulsdauer beträgt 5–7 ns. Die von dem Laser emittierte Strahlung mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  wird in einem KDP (Kalium-Dihydrogen-Phosphat,  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ) Kristall frequenzverdoppelt

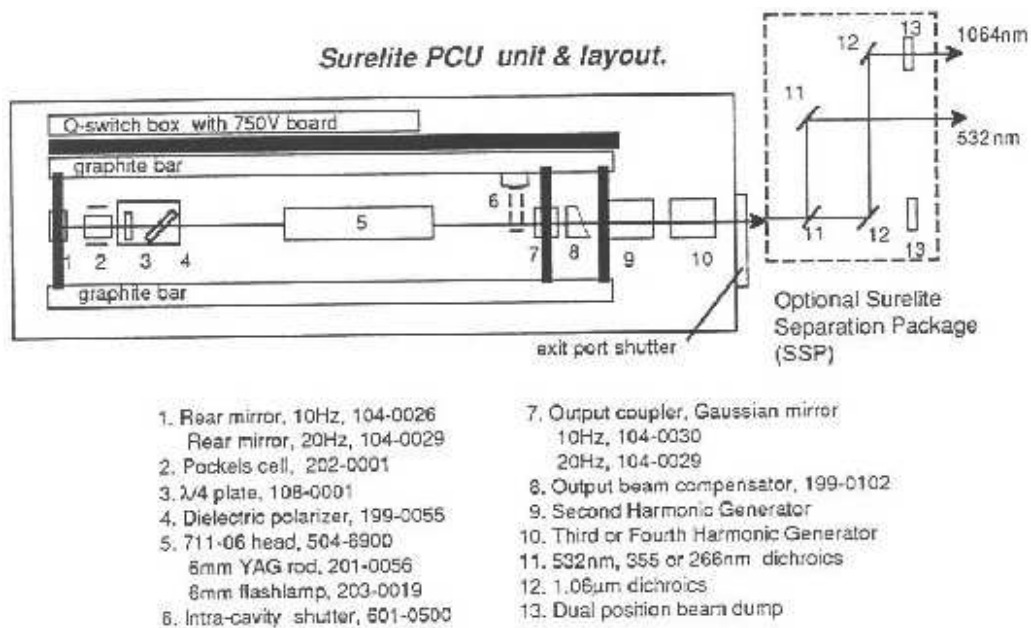


Abbildung 8: Der Aufbau des Nd:YAG Lasers mit Frequenzverdoppelung.

(*second-harmonic generation*, SHG). Die zweite Harmonische ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) wird anschließend von der Fundamentalen in einem Separator-Einheit durch einen dichroischen Spiegel getrennt. Die Pulsdauer der zweiten Harmonischen beträgt 4–6 ns. Die maximale Ausgangsleistung bei 532 nm ist 2.3 W.

### Fragen:

- Wieviel Energie ist in einem Puls enthalten? Wie hoch ist die Intensität in einem Puls?

## 3.2 Versuchsaufbau

Der Versuchsaufbau (Abb. 9) zur Untersuchung von stimulierter Raman-Streuung in Benzol ist prinzipiell sehr einfach. Als Pumpstrahl wird der 532 nm (frequenzverdoppelter) Ausgang des Lasers verwendet. Als Raman-aktives Medium wird Benzol verwendet. Es ist in einer zylindrischen Zelle mit Glasfenstern an beiden Enden enthalten.

Um die Intensität variieren zu können, wird der linear polarisierte Pumpstrahl durch eine Verzögerungsplatte und einen Dünnschicht-Polarisator geschickt. Der Polarisator ist so eingestellt, dass er für eine Polarisationsrichtung transparent ist, und die andere reflektiert. Die Polarisationsrichtung des

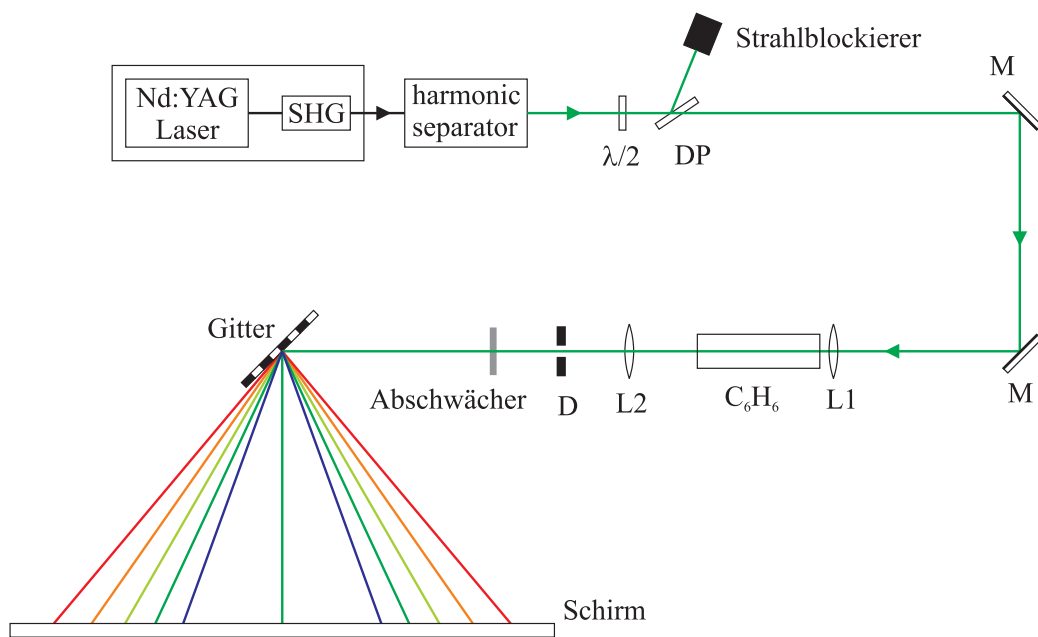


Abbildung 9: Der Versuchsaufbau zur Untersuchung von stimulierter Raman-Streuung in Benzol.  $\lambda/2$ : Verzögerungsplatte mit  $\lambda/2$  Retardation; DP: Dünnschicht-Polarisator; M: dielektrische Spiegel; L1, L2: Linsen; D: Diaphragma (Irisblende).

einfallenden Strahles kann man durch Drehen der Verzögerungsplatte ändern. Somit wird der am nachgestellten Polarisator transmittierte Teil variiert.

Der Pumpstrahl wird mit einer Linse in die Zelle fokussiert. Der Laser kann zwar in dem direkten Strahl genügend hohe Intensitäten liefern, die zur stimulierten Raman-Streuung notwendig sind, das Glasfenster kann diese aber nicht aushalten. Mit einer Linse direkt vor dem Eintrittsfenster der Zelle wird erreicht, dass die Intensität am Fenster unter dessen Zerstörschwelle bleibt, aber in der Mitte des Raman-aktiven Mediums für stimulierte Streuung genügend hoch ist.

Hinter der Zelle wird der Laserstrahl und die erzeugte kohärente Strahlung mit einer zweiten Linse kollimiert. Mit einer Irisblende, bzw. Spalt kann ein Teil des Ausganges räumlich selektiert werden. Mit einem Reflexionsgitter wird der Ausgang spektral analysiert. Das Gitter kann nur eine sehr moderate Intensität aushalten; man soll daher den Strahl vorher mit Filtern entsprechend abschwächen. Da die Intensität bei der Pumpwellenlänge sehr viel höher ist, als bei den verschobenen Wellenlängen, stehen Farbfilter zur Verfügung, um die Fundamentale abzuschwächen und die Stokes Linien besser sichtbar zu machen.

### Fragen:

- Wie lautet die Gittergleichung für den Fall wie in Abb. 9?
- Wäre es möglich, als Pumpstrahl den 1064 nm (fundamentalen) Ausgang des Lasers zu verwenden? Was würde man beobachten?
- Wie ist die Reflexion an einer Glasscheibe für verschiedene Polarisationsrichtungen des einfallenden Strahles?
- $I_G$  sei die Zerstörschwelle für Glas, und  $I_{\text{SRS}}(> I_G)$  der Schwellenwert der Intensität für stimulierte Raman-Streuung. Wie sollte die Brennweite der Fokussierlinse gewählt werden, um eine Beschädigung des Fensters zu vermeiden und gleichzeitig effektive stimulierte Streuung zu ermöglichen?
- Wie sollte man die Brennweite der Kollimatorlinse wählen?

### 3.3 Sicherheitshinweise

Der in diesem Experiment verwendete Laser ist gefährlich. Er liefert Pulse mit hoher Energie, und gehört zur Klasse IV. Es genügt nur ein kleiner Teil des Laserstrahles, um permanente Schäden der Retina zu verursachen.

Laser mit hoher Ausgangsleistung oder Pulsenergie werden allerdings sehr oft sowohl in der Wissenschaft als auch in der Industrie verwendet. Mit Vorsicht und Vernunft kann man mit solchen Laser sicher arbeiten. Die folgenden Sicherheitsregeln müssen strengstens eingehalten werden.

- Während der Arbeit mit dem eingeschalteten Laser muß eine Laserschutzbrille getragen werden.
- Keine reflektierenden Gegenstände dürfen unkontrolliert in den Strahlengang gelangen. Uhren und Ringe sind vor Arbeitsbeginn abzunehmen.
- Nicht nur der direkte Strahl ist gefährlich. Auch gestreutes Laserlicht kann das ungeschützte Auge verletzen. Die an den Glasoberflächen der optischen Elemente reflektierten Teile des Strahles sollten blockiert werden. Sie dürfen auch nicht in den Laser zurückreflektiert werden.
- Es muß darauf geachtet werden, dass andere Personen nicht durch Streulicht gefährdet werden.
- Mit infraroter Strahlung (1064 nm) ist besondere Vorsicht angebracht, da diese Strahlen unsichtbar sind.
- In der Benzolzelle werden intensive Lichtstrahlen erzeugt mit neuen Wellenlängen, gegen die die Laserschutzbrille keinen Schutz bietet! Es ist besondere Vorsicht angebracht!

Vorsicht ist ebenfalls angebracht, wenn man mit organischen Lösungsmitteln wie z.B. Benzol oder Änlichem arbeitet. Bei diesem Versuch ist Benzol in einer geschlossenen und hermetisch abgedichteten Zelle enthalten, so dass man damit nicht in direkten Kontakt kommt. Man sollte sich aber im klaren sein, dass Benzol giftig und leicht entzündlich ist, und dass daher Feuergefahr besteht.

### 3.4 Aufgaben

1. Optimierte die Leistung der zweiten Harmonischen.
2. Beobachte den Ausgang von der Zelle sowohl in Strahlrichtung als auch in der Gegenrichtung.
3. Messe die Wellenlängen des kollinearen Ausganges mit dem Gitter und mit dem Spektrometer, mit geeigneten Filtern.

4. Messe die relativen Intensitäten der einzelnen spektralen Komponenten für verschiedene Pumpintensitäten.
5. Messe den Öffnungswinkel der konischen Emission.
6. Untersuche die spektrale Zusammensetzung der konischen Emission für verschiedene Pumpintensitäten, eventuell mit räumlicher Auflösung.

**Fragen:**

- Welche Vibrationsfrequenzen lassen sich aus den gemessenen Spektren bestimmen?
- Berechne die Öffnungswinkel für konische Emission. Der Brechungsindex kann aus der Formel

$$n(T, \lambda) = (a_0 + a_2\lambda^{-2} + a_4\lambda^{-4}) + (b_0 + b_2\lambda^{-2})T$$

berechnet werden. Hier ist  $\lambda$  die Wellenlänge in nm,  $T$  die Temperatur in K,  $a_0 = 1,6566$ ,  $10^{-3}a_2 = 11,128 \text{ nm}^2$ ,  $10^{-8}a_4 = 3,0030 \text{ nm}^4$ ,  $10^4b_0 = -6,0514 \text{ K}^{-1}$ ,  $b_2 = -14,904 \text{ nm}^2\text{K}^{-1}$ .

## Literatur

- [1] Ferenc Krausz. *Photonics I. Theory of Light and its Advanced Applications*. Vorlesungsskript, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2005, <http://www.attoworld.de>  
Zur Grundlagen der nichtlinearen Optik siehe den Abschnitt *Nonlinear polarization, light modulation and frequency conversion* im Kapitel IV. *Electromagnetic optics*.
- [2] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, San Diego, 1992.  
Über nichtlineare Polarisation, Erzeugung von zweiter Harmonischen, Polarisation dritter Ordnung: Abschnitte 1.1 und 1.2. Über SRS: Abschnitte 9.1 und 9.2.
- [3] Guang S. He and Song H. Liu. *Physics of Nonlinear Optics*. World Scientific, Singapore, 1999.  
Über SRS: Abschnitte 8.1–8.3.
- [4] A. Yariv. *Quantum Electronics*. Wiley, New York, 1989.
- [5] P. W. Milonni and J. H. Eberly. *Lasers*. Wiley, New York, 1988.