

# THEORETICAL PHOTONICS: KOMPLEX NONLINEAR DAMPING SIGNATURE AND NONLINEAR SPECTRAL RESPONSE SINGULARITIES BASED ON 3 COLORS STIMULATION OF CENTROSYMMETRIC MATTER - NEW SOLUTIONS OF CUBIC NONLINEAR OPTICAL EQUATION IN VERY HIGH ORDER

Peter Krampfl<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> ©2008-2022, xxx, xxx, Germany

<sup>1</sup> E-mail: [p.krampfl@t-online.de](mailto:p.krampfl@t-online.de) (P. Krampfl).

\* Corresponding author.

Received xxxxxx

Accepted for publication xxxxxx

Published xxxxxx

## Abstract

In this paper, a new nonlinear spectrum formulation is presented, which predicts the real behavior of the multiphoton interaction with centrosymmetric matter Z.S. for the extremely nonlinear regime. In addition, it will be shown how this underlying nonlinear optical multiphoton differential equation describing the nonlinear dynamics in the time and Fourier domain can be solved exactly for harmonics of odd order. In this complete approach, the real damping behavior of Z. S. matter is also examined. It could be shown that the real damping behavior in the Z. S. volume material is of a purely non-linear nature. With this complete set of nonlinear solutions obtained, optical response tensors such as nonlinear susceptibility can now be predicted even more precisely. In addition, multiple interference effects were identified, which significantly distort the spectra and knowledge of which is essential to improve the spectra.

In diesem Paper wird eine Formulierung des nichtlinearen Spektrums, welche das reale Verhalten der Multiphotonen- Wechselwirkung mit Zentrosymmetrischer Materie Z. S. für das extrem nichtlineare Regime vorhersagt. Es wird gezeigt, wie diese zugrundegelegte nichtlineare optische Multiphotonen Differentialgleichung zur Beschreibung der nichtlinearen Dynamik in der Zeit- und Fourier- Domäne für Harmonische ungerader Ordnung exakt gelöst werden kann. In dieser vollständigen Betrachtungsweise wird auch das reale Dämpfungsverhalten von Z. S. Materie untersucht. Dabei konnte gezeigt werden, dass das reale Dämpfungsverhalten im Z. S. Volumenmaterial von rein nichtlinearer Natur ist. Mit diesen erhaltenen vollständigen Satz von nichtlinearen Lösungen lassen sich optische Resonsetensoren wie beispielsweise die nichtlineare Suszeptibilität jetzt noch exakter vorhersagen. Zudem wurden multiple Störeffekte identifiziert, welche die Spektren

maßgeblich verfälschen und deren Kenntnis zur Verbesserung der Spektren unentbehrlich sind.

Keywords: Condensed matter, Nonlinear Photonics, Nonlinear Optics, Nonlinear Damping, THG, Higher Harmonics, Higher Subharmonics, SBHM.

---

## 1. INTRODUCTION.

Die in den letzten Jahren veröffentlichten theoretischen und experimentellen wissenschaftlichen Aufsätze [PA04, AHPPW03, PWA02, HPA03] haben mich veranlasst, das Verhalten von nichtzentrosymmetrisch gebundenen Elektronen im nichtlinearen Regime zu untersuchen. Diese sind in dieser Arbeit insbesondere die Generation höherer Harmonischer an zentrosymmetrischer Materie unter Berücksichtigung des realen Dämpfungsverhaltens. Bislang gibt es keine analytische Lösung dafür

In dieser Arbeit soll erstmals der genaue Mechanismus dieser speziellen Licht- Materie Wechselwirkung untersucht und eine exakte mathematische Modellbildung gefunden werden, welche für jegliche nichtlineare Systeme relevant wird.

Zentrosymmetrische Materialien sind dreidimensionale Strukturen die aufgrund ihres Gitteraufbaus durch Punktteilchen immer zentrosymmetrisch aufgebaut sind, wie beispielsweise kristalline Strukturen wie Kupfer, Silber, Gold oder Platin.

Dabei beschäftigt sich die vorliegende Arbeit ausschließlich mit dem Elektronensystem, wobei die adiabatische Näherung von Born und Oppenheimer (1927) zugrunde gelegt wurde, in der das Elektronensystem und die Gitterdynamik der Atomkerne entkoppelt sind. In dieser Approximation ist die Bewegung der Atomkerne wegen ihrer  $10^4$  bis  $10^5$ -fach größeren Masse sehr viel träger als die der Elektronen. Damit erscheinen für das Elektronensystem die dazu vergleichsweise langsamen Schwingungen der Atomkerne (Phononen) näherungsweise eingefroren zu sein, d. h. dem Atomkern können fixierte Koordinaten zugeordnet werden. Im Modell kondensierter Materie sind die meisten dieser Elektronen als Kern-Elektronen wegen der starken Coulomb-Anziehung fest an die Atomkerne gebunden. Sie bilden mit den Atomkernen eine Einheit, ein Ion. Zur Beschreibung der Valenz-Elektronen sind insbesondere ihre Dynamik und ihr energetischer Zustand wichtig. Ihre Beweglichkeit wird durch die kinetische Energie beschrieben. Sie bewegen sich nicht frei, sondern erfahren ein durch die Kern-Elektronen abgeschirmtes Coulomb-Potential der Atomkerne. Korrelationen zwischen den einzelnen Valenzelektronen werden vernachlässigt. Es verbleiben wenige bewegliche Valenz-elektronen, die jedoch aufgrund ihrer Beweglichkeit die elektrischen, magnetischen sowie einen Teil der thermodynamischen Eigenschaften der Festkörperoberfläche bestimmen. Zur Beschreibung dieser Systeme lassen sich störungstheoretische Analysen, wie die klassische Störungsrechnung, mit asymptotischen Näherungsverfahren sehr erfolgreich anwenden. In diesen Näherungen wird in den höheren und hohen Ordnungen eine genaue Beschreibung der einzelnen Valenz- Elektronen in zentrosymmetrischer Materie erreicht.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist eine exakte analytische Beschreibung zentrosymmetrischer Materie in Wechselwirkung mit monochromatischen sowie allgemein mit multichromatischen Photonenfeldern und dabei das Verhalten der Z. S. gebundenen Elektronen beleuchteter Bulk-moleküle in der Zeitdomäne und Fourierdomäne zu verstehen. Die dabei interessierenden Fragen beziehen sich dabei vorrangig auf die Konstruktion der nichtlinearen Polarisationswelle, aufgrund der Licht Materie Wechselwirkung, auf der die abgestrahlte Responsewelle basiert und wie die dazugehörigen Resonanzsensoren, wie z. B. die nichtlineare Suszeptibilität, nichtlineare Polarisierbarkeit, nichtlineare optische Dispersion, der nichtlineare Brechungsindex und die NL Dielektrizität u. s. w. mathematisch exakt formuliert werden können. Dieses bessere Verständnis ist wichtig um die erhaltenen Spektren besser verstehen zu können und deren Analytik fortwährend verbessern zu können was dringend notwendig ist.

Dazu betrachten wir das nichtlineare System mittels effizienter numerischer Lösungen von nichtlinearen Differentialgleichungen. Unser Ansatz ist insbesondere attraktiv für Probleme in welche die

- effiziente Simulation von nichtlinearen -Systemen und deren Dynamik, sowie Vorhersage des Verhaltens, auch im hoch nichtlinearen Regime, erforderlich ist,
- dass das rein nichtlineare Subsystem vom gekoppelten dominierenden linearen System für hohe Felder betrachtet werden soll und

- dass sogar noch kompliziertere lineare Subsystem entkoppelt vom dominierenden nichtlinearen System im extrem nichtlinearen Regime für hohe Felder betrachtet werden soll.

Derartige Probleme erscheinen in einer großen Bandbreite von Anwendungen, z. B. in dynamischen Vielteilchen- Systemen, in Multi- Photonen Spektroskopie oder in Modellen von elektrischen und optischen Schwingkreisen sowie elektrischen und optischen Netzwerken.

Unsere Forschung ist dabei motiviert von feldgekoppelten Problemen, welche in der Simulation von hoch nichtlinearen Systemen mit multiplen, multichromatischen optischen Feldern erscheinen. In diesem Kontext beschreibt das nichtlineare Subsystem das Abstrahlverhalten von (N)ZS Materie

Die folgenden zwei Standardansätze für derartige nichtlineare Probleme sind derzeit weit genutzt in der Praxis:

- harmonisch approximiert Lösung für lineare Differentialalgebraische Systeme, welche nur gültig sind für genügend schwache optische Felder wo die tatsächliche rücktreibende Kraft, die ein Oberflächenelektron erfährt, nur für genügend kleine Oszillationen um den Gleichgewichtszustand erfährt, die durch ein harmonisches Potential approximiert werden kann.
- Die Darstellung des Frequenz- Domain Response von linearen Subsystemen und sehr kleinen nichtlinearen Subsystemen durch ihre harmonischen Denominatorfunktionen, basierend auf den korrespondierenden reduzierten nichtlinearen Differentialalgebraischen Problemen.

## 2. PROBLEM DESCRIPTION AND OUTLINE OF THE APPROACH.

Zur Illustration der Ideen wird das nichtlineare System zunächst numerisch mit dem impliziten Runge Kutta Verfahren vierter Ordnung gelöst und danach in sehr hohen Ordnungen basierend auf der Rayleigh- Schrödinger Störungsrechnung formuliert und die Ergebnisse zusätzlich mit der realen Eigendynamik des autonomen Bindungs- Elektrons im nichtzentrosymmetrischen Potential, aufgrund der vorhandenen Materieenergie, betrachtet und diskutiert.

Ausgangspunkt ist dabei die Betrachtung des Z. S. Systems unter Hinzunahme von Dotierungsfällen mittels des gekoppelten, dynamischen optischen nichtlinearen Differentialgleichungs- Systems unter Hinzunahme von multiplen, monochromatischen photonischen Feldern  $\tilde{\mathbf{E}}(t) = E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_1 e^{-i\omega_1 t} + E_1 e^{-i\omega_1 t} + c.c.$  und zusätzlich auch mit multichromatischen photonischen SubHG Feldern  $\tilde{\mathbf{E}}(t) = E_1 e^{-i(p/q)\omega_1 t} + E_2 e^{-i(p/q)\omega_2 t} + E_3 e^{-i(p/q)\omega_3 t} + c.c.$ , welche jede beliebige Einstrahlungsfrequenz und in jeder Kombination davon beinhalten können.

$$\dots\dots\dots \ddot{\tilde{\mathbf{r}}} + 2\gamma\dot{\tilde{\mathbf{r}}} + \omega_0^2\tilde{\mathbf{r}} \mp \beta\tilde{\mathbf{r}}^3 = -e\tilde{\mathbf{E}}(\tilde{\mathbf{r}}, t)/m_e \dots\dots\dots (1)$$

Dabei kann angenommen werden, dass die optische Feldstörung nicht mehr moderat ist, sondern sich das System im stark nichtlinearen Regime befindet. Dies ist dadurch bedingt, dass zwar für genügend schwache optische Felder die tatsächliche rücktreibende Kraft, die ein Bulkelektron für genügend kleine Oszillationen um den Gleichgewichtszustand erfährt, durch ein harmonisches Potential approximiert werden kann, aber durch Vielwellenmischen sehr schnell sehr hohe Felder erreicht werden können. Dadurch werden die höheren und hohen Terme der Rückstellkraft wichtig und die Bewegung des Elektrons ist nicht länger direkt proportional zum photonischen Feld.

Für diese Z. S. Materie beschreibende nichtlineare optische Differentialgleichung ist keine exakte, analytische Lösung bekannt. Deshalb müssen für diese Probleme neue Strategien entwickelt werden. Diese werden in dieser Arbeit vorgestellt.

Zur Aufhebung der parabolischen Einschränkung und genauen Charakterisierung des hoch nichtlinearen Systems wird das Langzeitverhalten des nicht zentrosymmetrisch und zentrosymmetrisch gebundenen Partikels störungstheoretisch in sehr hohen Näherungen betrachtet.

Dazu wird zur weiteren Untersuchung ein beliebig kleiner Störparameter  $\lambda$  eingeführt gemäß:

$$\dots\dots\dots \ddot{\tilde{\mathbf{r}}} + 2\gamma\dot{\tilde{\mathbf{r}}} + \omega_0^2\tilde{\mathbf{r}} \mp \lambda\beta\tilde{\mathbf{r}}^3 = -\lambda\left(e\left(E_1e^{-i(\nu/q)\omega_1t} + E_2e^{-i(\nu/q)\omega_2t} + E_3e^{-i(\nu/q)\omega_3t} + c.c.\right)/m_e\right)\dots\dots\dots (2)$$

mit  $\mp \lambda\beta$  vom Dotierungsfall und elektrischen Multipolen abhängiger nichtlinearer Korrekturkoeffizient als infinitesimal kleiner positiver Skalar  $0 < \lambda \ll 1$  und  $-e\lambda\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e$  als photonischer Treiberterm. Zudem muss die reale Eigendynamik des autonomen Elektrons aufgrund der vorhandenen Materieenergie berücksichtigt werden.

### 3. NONLINEAR DAMPING SIGNATURE AND SPECTRAL STRUCTURE BASED ON MONOCHROMATIC AND MULTICHROMATIC PHOTONIC FIELD INTERACTION WITH CENTROSYMMETRIC MATTER LIKE BULK THIRD HARMONIC GENERATION

Um die spektrale Struktur der nichtlinearen Amplitude und deren Signatur zu erhalten wird Gl. (2) numerisch integriert. Wir setzen die Dämpfung niedrig und die externe oszillatorische Frequenz genügend hoch an um das “under- resonant criterium  $\omega \ll \omega_0$ “ für optische Frequenzen für He-Ne- Laserlicht zu erfüllen und im hoch nichtlinearen Regime die höheren Harmonischen beobachten zu können. Zudem wird die Fouriertransformierte der nichtlinearen Amplitude in hoher Näherung kleiner Größen bis 9. Ordnung berechnet. Ergebnisse werden repräsentiert in den Abbildungen 1 – 4.

Eine makroskopische Formulierung von Licht- Z. S. Materie Wechselwirkung ergibt sich aus der nichtlinearen optischen Differentialgleichung. Für das nichtlineare THG Bulkspektrum können wir das System gemäß  $\ddot{\tilde{\mathbf{r}}} + 2\gamma\dot{\tilde{\mathbf{r}}} + \omega_0^2\tilde{\mathbf{r}} \mp \beta\tilde{\mathbf{r}}^3 = -e\tilde{\mathbf{E}}(t)/m_e$  nicht mehr auf einen Freiheitsgrad  $x$  reduzieren, da diese Bereiche nicht mehr nur wenige Atomlagen umfassen, sondern jetzt Radialkomponenten besitzen die berücksichtigt werden müssen.

Einfallende Pump Photonen der Frequenz  $\omega$  erzeugen, speziell für den THIRD HARMONIC GENERATION - THG Fall, Photonen, welche die dreifache Frequenz der Pump- Photonen aufweisen, vorausgesetzt die Pumpquellen verteilen sich auf mindestens drei unabhängigen Quellen mit jeweils der Frequenz  $\omega$ . Aus diesem Grund lässt sich die schlüssige Annahme formulieren, dass beide Systeme, Pump- Photonen und drei Photonen Resonanz simultan entstehen, vorausgesetzt o. g. Voraussetzungen sind erfüllt.

Wechselwirkt dieses System mit hohen Feldern so wird nachfolgend gezeigt, dass neben normalen Dämpfungscharakter auch nichtlineare Dämpfungscharakteristiken auftreten.

Um einen besseren Einblick in die spektrale Struktur und Signatur von Gleichung (2) zu erhalten, splitten wir die totale Response- Antwort auf in zentrosymmetrische Amplituden- Anteile der Grundharmonischen und der höheren Harmonischen mit ihrer jeweiligen realen Dämpfungssignatur und betrachten das System im Fourier- Raum.

Die vollständigen elektronischen Bulk THIRD HARMONIC GENERATION- Beiträge werden durch Störungstheoretische Terme bis zu kleinen Größen 9. Ordnung berücksichtigt. Damit ergeben sich für BULK THG folgende exakte analytische nichtlineare Korrekturen zur Fundamentalen Harmonischen und zu höheren Harmonischen ungerader Ordnung hier speziell THIRD HARMONIC GENERATION unter Berücksichtigung des jeweiligen realen Dämpfungsverhaltens.

$$\dots\dots\dots \ddot{\tilde{x}}^{(9)} + 2\gamma\dot{\tilde{x}}^{(9)} + \omega_0^2 \tilde{x}^{(9)} = \mathbf{w}^{nl}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl}(\beta, \tilde{b}) \dots\dots\dots (3)$$

**NICHTLINEARE SINGULARITÄT (SKEW):**

$$\mathbf{w}^{nl}(\beta, \tilde{b}) = \omega^{nl(2)}(\beta, \tilde{b}) + \omega^{nl(3)}(\beta, \tilde{b}) + \omega^{nl(4)}(\beta, \tilde{b}) + \omega^{nl(5)}(\beta, \tilde{b}) + \dots\dots\dots \omega^{nl(6)}(\beta, \tilde{b}) + \omega^{nl(7)}(\beta, \tilde{b}) + \omega^{nl(8)}(\beta, \tilde{b}) + \omega^{nl(9)}(\beta, \tilde{b}) \dots\dots\dots (4)$$

**REALE KOMPLEXE DÄMPFUNG:**

$$\gamma^{nl}(\beta, \tilde{b}) = \gamma^{nl(2)}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl(3)}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl(4)}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl(5)}(\beta, \tilde{b}) + \dots\dots\dots \gamma^{nl(6)}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl(7)}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl(8)}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl(9)}(\beta, \tilde{b}) \dots\dots\dots (5)$$

**REALE NICHTLINEARE SINGULARITÄT:**

$$\mathbf{w}^{nl}(\beta, \tilde{b}) + \gamma^{nl}(\beta, \tilde{b}) = \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\beta}{8\omega_0} \left( -\lambda^3 + \lambda^5 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\beta}{32\omega_0^2} - \lambda^7 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta}{512\omega_0^4} \right) + \dots\dots\dots + \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta}{192\omega_0^5} \left( +\lambda^3 - \lambda^5 \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\beta}{16} - \lambda^9 \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta}{32768\omega_0^4} \right) + \dots\dots\dots (6)$$

$$+ \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta}{10240\omega_0^5} \left( -\lambda^5 + \lambda^7 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\beta}{32\omega_0^2} \right) + \lambda^7 \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta}{2752512\omega_0^7} - \lambda^9 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta\beta}{188743680\omega_0^9} +$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{3\gamma\tilde{b}\tilde{b}\beta}{4\omega_0^2(4\gamma\gamma + \omega_0^2)} \left( -\lambda^3 + \lambda^5 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\beta}{32\omega_0^2} - \lambda^7 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta}{512\omega_0^4} \right) + \frac{\gamma\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta}{36\omega_0^2(4\gamma\gamma + 9\omega_0^2)} \left( -\lambda^3 + \lambda^5 \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\beta}{16\omega_0^2} \right) + \\
& \quad + \lambda^9 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta\beta\gamma(4\gamma\gamma + 81\omega_0^2)}{393216\omega_0^8(16\gamma\gamma\gamma + 360\gamma\gamma\omega_0^2 + 729\omega_0^4)} + \\
\cdots & + \frac{\gamma\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta}{100\omega_0^4(4\gamma\gamma + 25\omega_0^2)} \left( -\frac{3\lambda^5}{32} - \lambda^7 \frac{42\tilde{b}\tilde{b}\beta}{14336\omega_0^2} \right) - \lambda^7 \frac{15\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta\gamma}{1003520\omega_0^6(4\gamma\gamma + 49\omega_0^2)} + \\
& \quad + \lambda^9 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta\beta\gamma(4\gamma^2 + 9\omega_0^2)}{10616832\omega_0^8(16\gamma\gamma\gamma + 360\gamma\gamma\omega_0^2 + 729\omega_0^4)} \\
& \quad + \mathcal{O}((SubHG, SubHHG))
\end{aligned} \tag{7}$$

Dabei stellt der erste Term ① die Frequenzkorrektur der Fundamentalen dar, der zweite Term ② die Frequenzkorrektur für THG und die weiteren Terme die Frequenzkorrekturen hoher Harmonischer ungerader Ordnung (hier bis zur 9. Ordnung). Zudem kommen noch weitere Terme vor, welche die Dämpfung charakterisieren. Der 6. Term stellt die Dämpfung der Fundamentalen dar, der 7. Term die THG Dämpfung und die Terme 8 bis 10 die Dämpfung der 5., 7. und 9. Harmonischen.

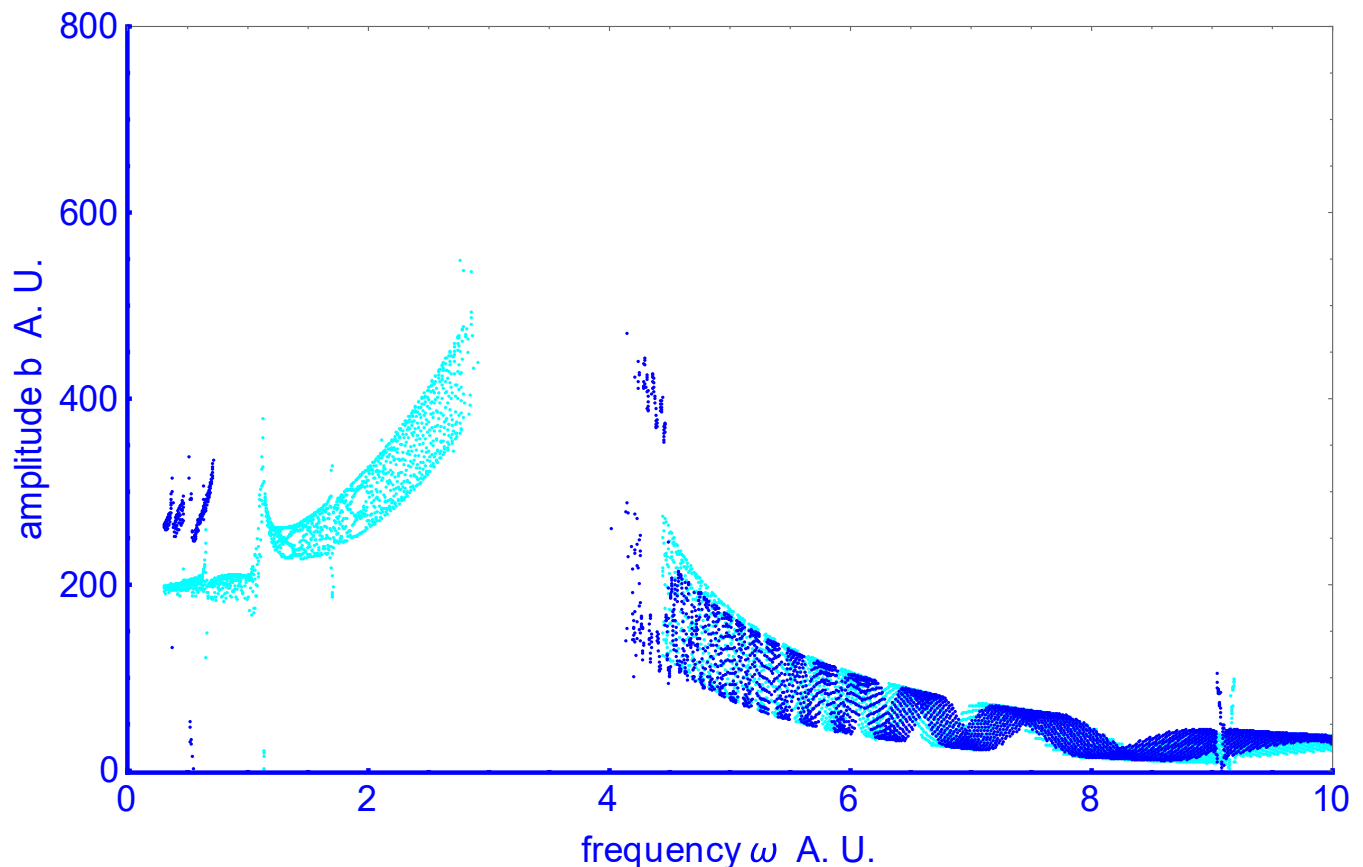
Dabei ist bemerkenswert, dass für ungeradzahlige Harmonische keine DC für die Frequenzkorrektur und Dämpfungskorrektur einhergeht, ganz im Gegensatz zu geradzahligen Harmonischen, wo der DC Anteil den Frequenz- Skew und die nichtlineare Dämpfung mitkorrigiert und für deren Entstehung notwendig ist.

Offensichtlich erkennt man an den erhaltenen Termen, dass **die nichtlineare reale** Dämpfung  $\gamma^{nl}$  sich nun nicht mehr nur als Faktor in  $2\gamma\dot{\tilde{x}}$  ergibt, sondern mit den neuen Parametern  $\beta$ , der nichtlinearen Amplitude  $\tilde{b}$  und der jeweiligen Frequenz vorkommt.

Darüber hinaus wird die Dämpfung nun genauer im jeweiligen Frequenzbereich beschrieben. So treten neben **in Näherung kleiner Größen dritter Ordnung** den zu erwarteten **erzwungenen Schwingungen mit den Frequenzen  $\omega$  und  $3\omega$**  die der Einstrahlungsfrequenzen entsprechen, noch weitere Komponenten mit den Frequenzvielfachen  $\nu \pm 2\omega$  und  $2\nu \pm \omega$  und in Näherung noch höherer Ordnungen weitere Komponenten mit den Frequenzvielfachen  $\nu \pm 4\omega$ ,  $\nu \pm 6\omega$ ,  $\nu \pm (n+2)\omega$ ,  $n = 0, 1, 2, \dots$  und  $4\nu \pm \omega$ ,  $6\nu \pm \omega$ ,  $(n+2)\nu = \pm \omega$ ,  $n = 0, 1, 2, \dots$  auf, was aber wiederum charakteristisch nur für nichtlineare Systeme ist. Dies ist somit ein direkter Beweis, dass es sich nicht wie aus dem Ausdruck  $2\gamma\dot{\tilde{x}}$  vermuten lässt eine rein lineare Dämpfung ist, sondern es sich hierbei um eine Dämpfung mit nichtlinearen Komponenten handelt, welche im nichtlinearen Regime immer nichtlinearer wird bis letztendlich rein nichtlineare komplexe Dämpfung vorliegt. Die Nichtlinearität der Dämpfung wird dabei vom Duffing Nichtlinearitäts- Faktor  $\beta x^3$  verursacht.

Betrachtet man die erhaltenen Dämpfungsterme, so erkennt man, dass diese negative Dämpfungsanteile beinhalten, welche als Anregung für das System wirken (selbsterregende Schwingungsanteile). Um auf die Effektivbeiträge zum zentrosymmetrischen System zu kommen, müssen hier in diesem Fall die erhaltenen Terme mit  $1/\beta$  zu multipliziert werden.

Für zentrosymmetrische Materie ergibt sich für den Frequenz Response und der realen Dämpfung demnach neben der Frequenzabhängigkeit, jetzt auch noch eine Abhängigkeit vom Nichtlinearitätsparameter  $\beta$  und von der nichtlinearen Amplitude  $\tilde{b}$ , sowohl für die Fundamentale Harmonische als auch für deren nichtlinearen komplexen Dämpfungen. Dabei sind, wie die nachfolgenden Abbildungen zeigen, die FREQUENZ RESPONSE Peaks aufgrund der Berücksichtigung ihrer nichtlinearen Natur nicht mehr symmetrisch, sondern zeigen deutlich für die jeweilige Materiestruktur signifikantes Hystereseverhalten auf.



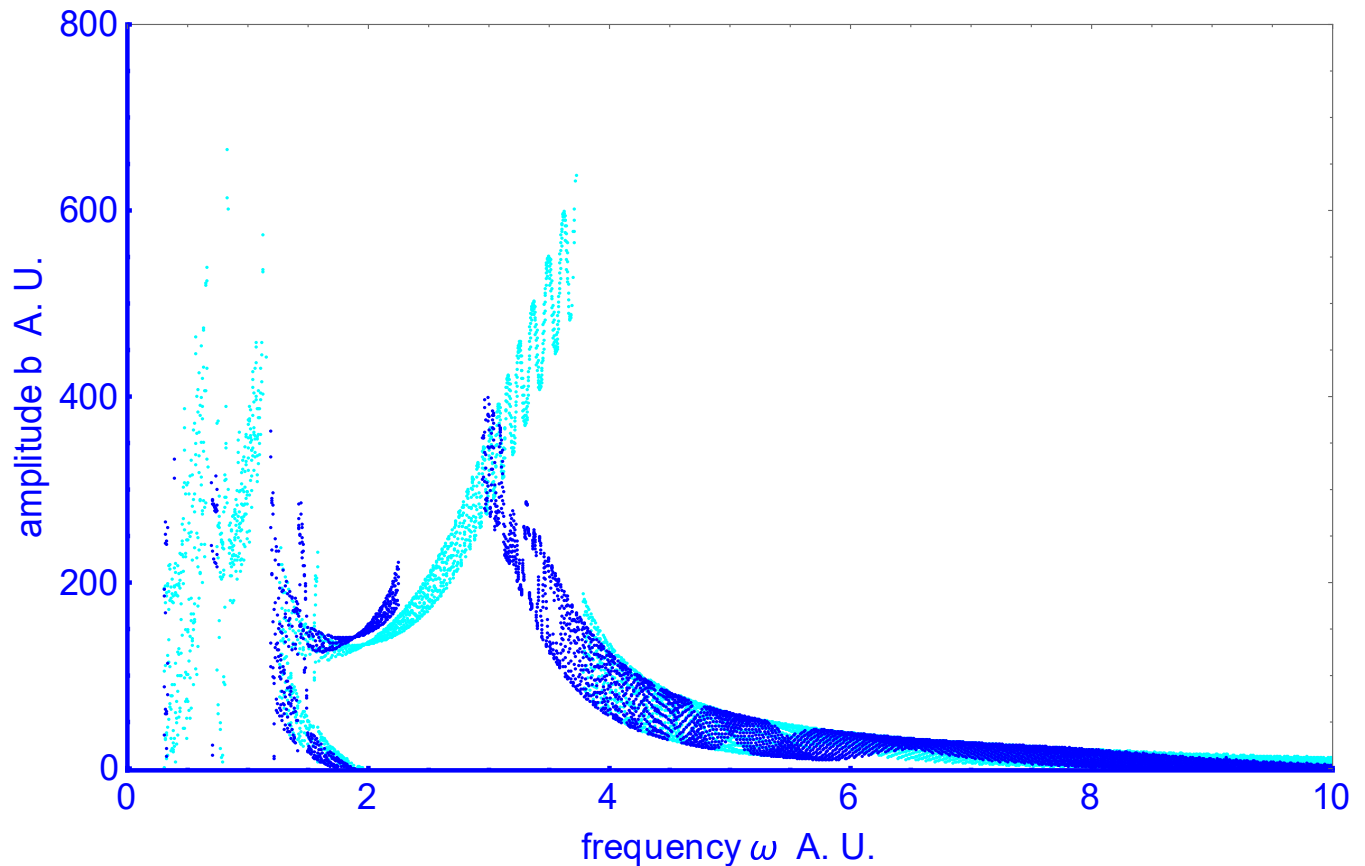
**Abbildung 1: Nichtlineare Frequenz Response Kurve mit nichtlinearer Dämpfung in zentrosymmetrischer Materie durch Multiphotonen Anregung  $(\omega, \omega, \omega)$ . a, b, blau, türkis.** Frequenz- Response für Bulk **a** und negativ dotierten Bulk bzw. Z. S. Systeme mit Elektronenschiebenden Gruppen, d. h. Gruppen mit positiv induktiven Effekt **b**.

Die Frequenz Responses zeigen Hystereseverhalten (SubHG, GHG, HHG hier THG). Die Frequenz und Amplitude wird in Graph **b** nach *oben* gedrückt (positive Skew, BULK DOTIERT, Z. S. S. mit Elektronenschiebenden Gruppen) und *abwärts* gedrückt **a** aufgrund Hystereseffekte. Graph **a** negativer Skew, BULK UNDOTIERT, Z. S. S. mit Elektronenziehenden Gruppen – Gruppen mit negativ induktiven Effekt. Es zeigen sich stabile Höherere Harmonische und Ansätze von Subharmonischen die nur wenige stabile Anteile aufweisen. Die Bildung stabiler höherer Harmonischer gehen mit destabilisierenden Subharmonischen einher.

Die Abbildungen 1 bis 4 zeigen die Frequenz- Kurve für zentrosymmetrische Systeme und negativ dotierte zentrosymmetrische Materie mit ihrer jeweiligen realen nichtlinearen Dämpfung. Es ist zu sehen, dass die Subharmonischen auf Kosten der Höheren Harmonischen entstehen und umgekehrt höhere Harmonische sich auf Kosten von Subharmonischen stabilisieren können.

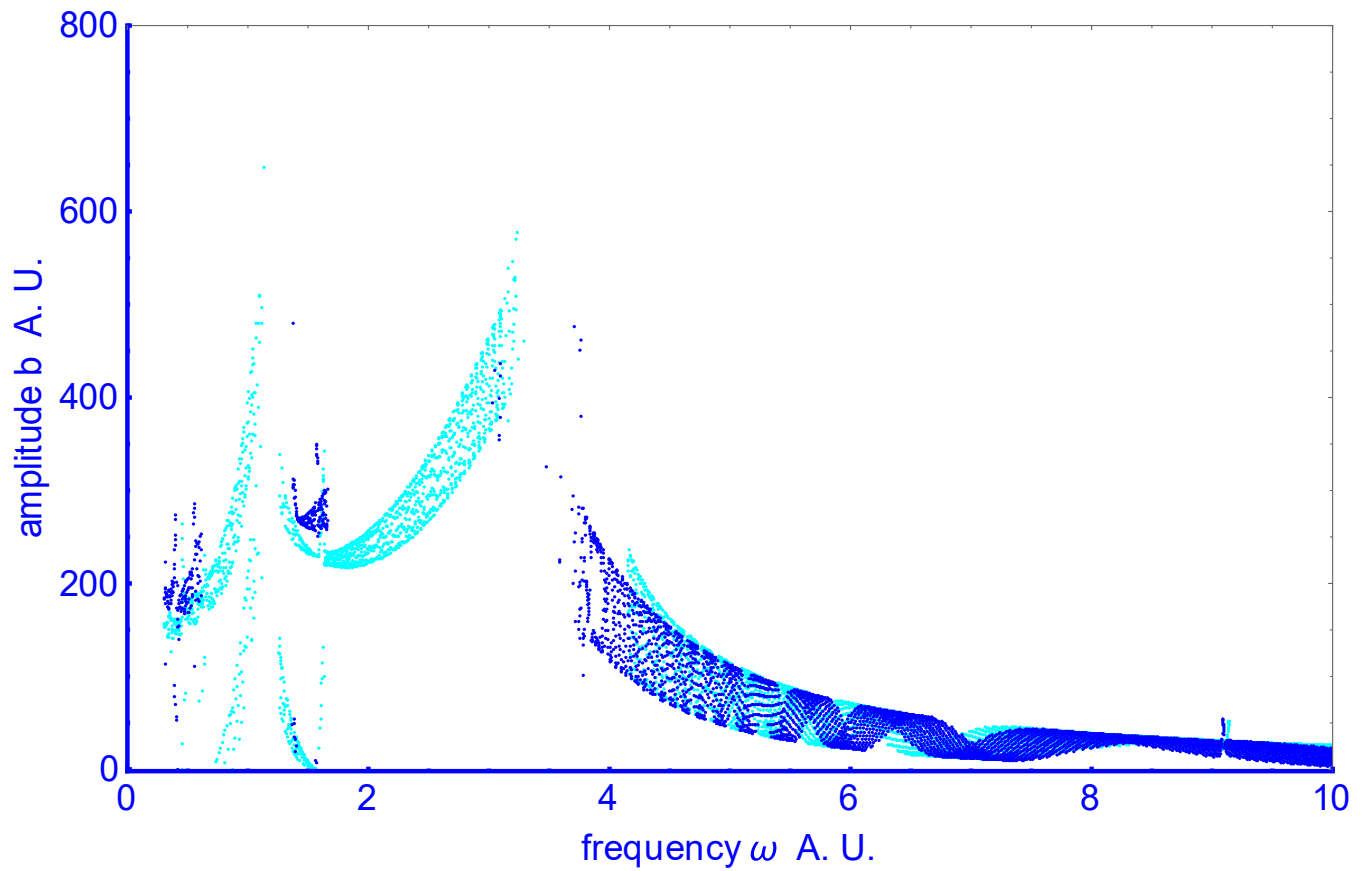


Durch Einstrahlung immerer höherer harmonischer photonischer Felder ist der Effekt destabilisierender Subharmonischer zugunsten sich stärker ausprägender höherer Harmonischer immer stärker ausgeprägt, Vergleiche hierzu insbesondere Abbildungen **2** und **3** hier für höhere SubHG und THIRD HARMONIC GENERATION für das photonische Frequenztripel  $(\omega, 3\omega, 5\omega)$  und  $(\omega, \omega, 3\omega)$ . Dabei zeigt sich, dass für negativ dotierten BULK (Soft Matter - Elektronenschiebende Gruppen) die Subharmonischen stärker ausgeprägt sind als für “unbehandelten” BULK UNDOTIERT, Soft Matter - Elektronenziehende Gruppen. Dies beweist sehr anschaulich, dass die Störeffekte von Subharmonischen sich auf höhere Harmonische sehr stark auswirken und für die SPEKTREN zu berücksichtigen sind um die Spektrenanalytik insbesondere SBHM zu verbessern.



**Abbildung 2: Nichtlineare Frequenz Response Kurve mit nichtlinearer Dämpfung in zentrosymmetrischer Materie durch photonische drei Farben Anregung  $(\omega, 3\omega, 5\omega)$ . a, b, blau, türkis, BULK undotiert a, BULK dotiert b.**

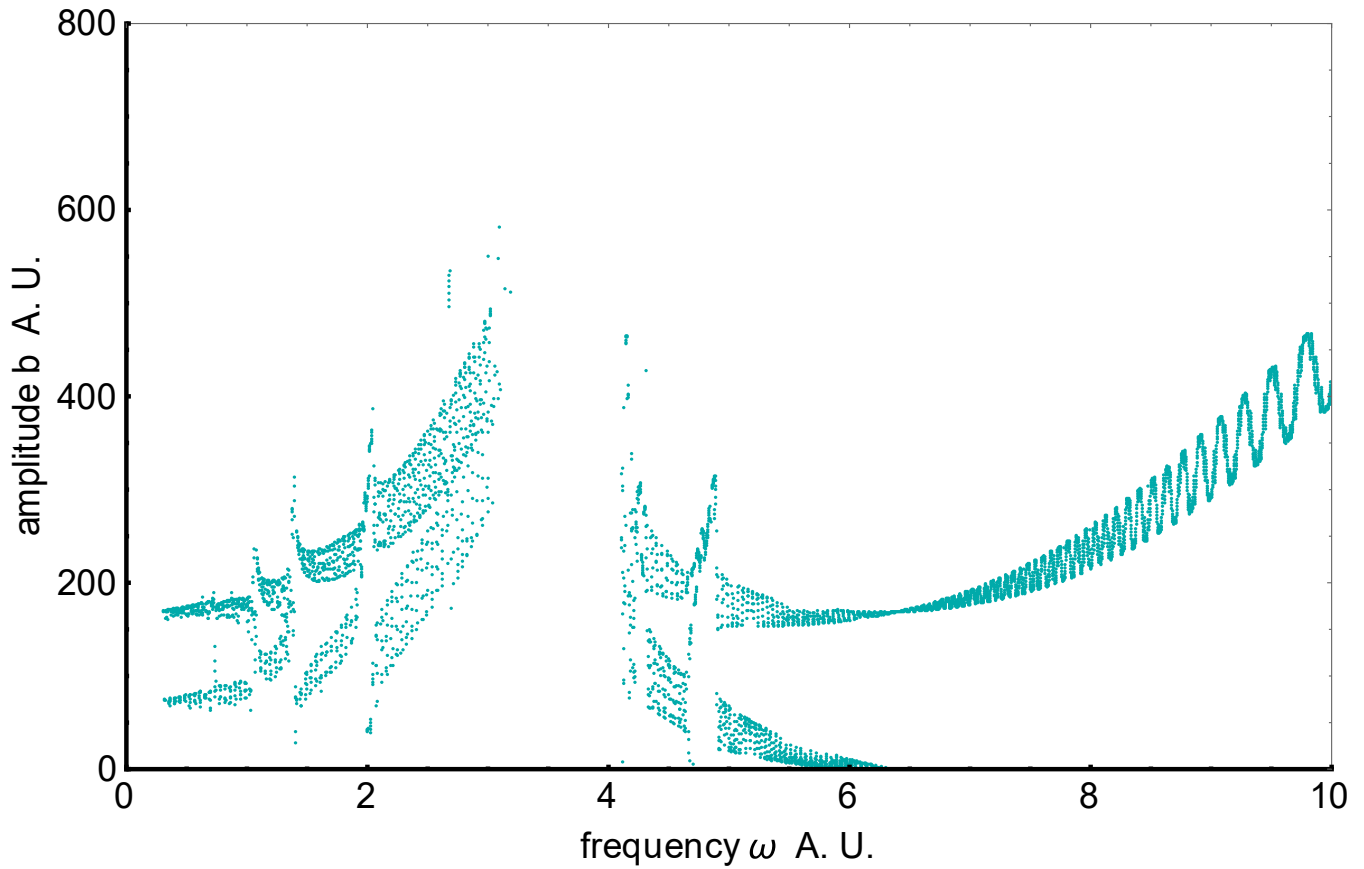
Die höheren Harmonischen Response Signale werden durch die Subharmonischen destabilisiert, bis diese letztendlich gänzlich zerfallen.



**Abbildung 3: Nichtlineare Frequenz Response Kurve mit nichtlinearer Dämpfung in zentrosymmetrischer Materie durch photonische drei Farben Anregung ( $\omega, \omega, 3\omega$ ). a, b, blau, türkis, BULK undotiert, bzw. Z. S. Systeme mit -I Gruppen a, BULK dotiert bzw. Z. S. Systeme mit +I Gruppen b.**

Subharmonische sind hier nur in wenigen Ordnungen ausgeprägt und es sind stabile höhere Harmonische mit Hystereseverhalten zu beobachten.

Dieser Effekt wird durch die nichtlineare Dämpfung verursacht. Die nichtlineare Dämpfung ist ein neuer exotischer Effekt der von der Duffing Nichtlinearität herrührt.



**Abbildung 4: Nichtlineare Frequenz Response Kurve mit nichtlinearer Dämpfung in zentrosymmetrischer Materie durch bichromatische Multiphotonen Anregung mit den Harmonischen und Subharmonischen Photonenfeldern  $(\omega, \frac{\omega}{3}, \omega)$  a, türkis, BULK dotiert.**

Subharmonische sind hier noch sehr viel stärker und in hohen Ordnungen ausgeprägt als in den zuvor gezeigten Fällen und zeigen Hystereseverhalten. Durch die SubHG Photonenfelder Anregung werden diese erwartungsgemäß unter Destabilisierung der höheren Harmonischen stabilisiert und es ergeben sich keine stabilen Lösungen höherer Harmonischen mehr. Interessant sind die Frequenz Responses nach der Grundharmonischen, welche auf Schnittstelleneffekte und Oberflächeneffekte hindeuten.

Als ein weiteres Ergebnis kann die Elektronenposition, welche das abgestrahlte Gesamtfeld repräsentiert, angesetzt werden als eine Überlagerung der System Grundfrequenz (GHG) und der Emissionsfelder der dritten Harmonischen (THG) wie nachfolgend anschaulich gezeigt wird:

$$\dots \tilde{\mathbf{r}}_{\omega} = \frac{-\beta e}{m_e (\omega_0^2 - \omega^2 + \mathbf{w}_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) - 2i\gamma_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b})\omega)} \cdot \tilde{\mathbf{E}}_{\omega} \dots (8)$$

$$\tilde{\mathbf{r}}_{3\omega} = \frac{-\beta}{(\omega_0^2 - \omega^2 + \mathbf{w}_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) - 2i\gamma_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b})\omega)^3} \times$$

$$\dots\dots\dots \frac{e^3}{m_e^3(\omega_0^2 - 9\omega^2 + \mathbf{w}_{THG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) - 6i\gamma_{THG}^{nl}(\beta, \tilde{b})\omega)} \vdots \tilde{\mathbf{E}}_\omega \tilde{\mathbf{E}}_\omega \tilde{\mathbf{E}}_\omega \dots\dots\dots (9)$$

$$+ \mathcal{O}((SubHG, SubHHG))$$

+  $\mathcal{O}((SubHG, SubHHG))$  für den Fall, dass multichromatische photonische Felder eingestrahlt werden mit  $n\omega + m\omega + o\omega$ ,  $n, m, o \in \mathbb{N}$   $n \neq m \neq o$

mit  $\mathbf{w}_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) = \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta}{8\omega_0} \left( -\lambda^3 + \lambda^5 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\beta}{32\omega_0^2} - \lambda^7 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta}{512\omega_0^4} \right) + \mathcal{O}(HHG(THG, 5HG, 7HG, 9HG))$  als

nichtlineare Singularitätssignatur der Fundamentalen,

$$\gamma_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) = \frac{3\gamma\tilde{b}\tilde{b}\beta}{4\omega_0^2(4\gamma^2 + \omega_0^2)} \left( -\lambda^3 + \lambda^5 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\beta}{32\omega_0^2} - \lambda^7 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta}{512\omega_0^4} \right) + \mathcal{O}(HHG(THG, 5HG, 7HG, 9HG))$$

als nichtlineare Dämpfungscharakteristica der Fundamentalen, resp.

$$\mathbf{w}_{THG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) = + \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta}{192\omega_0^5} \left( +\lambda^3 - \lambda^5 \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\beta}{16} - \lambda^9 \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta}{32768\omega_0^4} \right) + \mathcal{O}(HHG(5HG, 7HG, 9HG))$$

als

nichtlineare Singularitätssignatur der dritten Harmonischen THG und

$$\gamma_{THG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) = + \frac{\gamma\tilde{b}\tilde{b}\beta}{36\omega_0^2(4\gamma^2 + 9\omega_0^2)} \left( -\lambda^3 + \lambda^5 \frac{3\tilde{b}\tilde{b}\beta}{16\omega_0^2} \right) + \lambda^9 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\beta\beta\gamma(4\gamma^2 + 81\omega_0^2)}{393216\omega_0^8(16\gamma^4 + 360\gamma^2\omega_0^2 + 729\omega_0^4)} + \mathcal{O}(HHG(5; 7; 9^{HG}))$$

als Dämpfungscharakteristica der dritten Harmonischen THG.

Diese nichtlinearen Gleichungen sind jetzt auch gültig für reale, in Experimenten verwendete sehr intensive Einstrahlungsfelder (**Pumpfelder**), weit weg von den Resonanzfrequenzen, die das System im hoch nichtlinearen Regime exakt beschreiben.

Mit der Beziehung  $\mathbf{p}_{\omega, 3\omega} = e \mathbf{r}_{\omega, 3\omega}$  als Dipolmoment des Atoms und  $\mathbf{P}_{\omega, 3\omega} = N e \mathbf{r}_{\omega, 3\omega}$  mit N als Oszillatordichte kann man die vollständige Polarisationsdichte für Vielteilchensysteme des Bulks pro Volumeneinheit anschreiben mit:

$$\dots\dots\dots \mathbf{P}_{\omega, 3\omega}^{nl} = \chi_{\omega}^{(1)nl} \mathbf{E}_\omega + \chi_{3\omega}^{(3)nl} \vdots (\mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega) \mathbf{E}_\omega \dots\dots\dots (10)$$

und

$$\dots\dots\dots \mathbf{P}_{3\omega} = \mathbf{P}_{\omega, 3\omega} = \chi_{3\omega}^{(1)nl} \mathbf{E}_\omega + \chi_{3\omega}^{(3)nl} \vdots (\mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega) \mathbf{E}_\omega \dots\dots\dots (11)$$

Mit den exakten nichtlinearen Suszeptibilitäten (11) und (12) gemäß:

$$\dots\dots\dots \chi_{\omega}^{(1)nl} = \frac{Ne^2}{m_e(\omega_0^2 - \omega^2 + \mathbf{w}_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) - 2i\gamma_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b})\omega)} \dots\dots\dots (12)$$

und

$$\chi_{3\omega}^{(3)nl} = \frac{N\beta e^4}{m_e^3(\omega_0^2 - \omega^2 + \mathbf{w}_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) - 2i\gamma_{GHG}^{nl}(\beta, \tilde{b})\omega)^3 (\omega_0^2 - 9\omega^2 + \mathbf{w}_{SHG}^{nl}(\beta, \tilde{b}) - 6i\gamma_{THG}^{nl}(\beta, \tilde{b})\omega) + \mathcal{O}((SubHG, SubHHG))} \dots\dots\dots (13)$$

+  $\mathcal{O}((SubHG, SubHHG))$  für den Fall, dass multichromatische photonische Felder eingestrahlt werden  
 $n\omega + m\omega + o\omega$ ,  $n, m, o \in \mathbb{N}$   $n \neq m \neq o$

Damit kann man sofort von der Frequenzdomäne direkt auf die Zeitdomäne schließen. Man erhält damit beispielsweise für SHG ein Zeitdelta 0,47 ps bis 1.23 ps. Die Ausprägung der Frequenzvariation bzw. des Zeitdeltas ist für THG etwas kleiner als für SHG und liegt für die SHG – THG Schnittstelle zwischen diesen beiden Werten.

$$\begin{aligned} \gamma^{nl, int}(\alpha, \beta, \tilde{b}) = & -\lambda^2 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\alpha}{4\gamma} + \lambda^2 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\alpha}{32\omega_0} \frac{\gamma}{\gamma^2\omega_0 + \omega_0^3} + \\ & -\lambda^3 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\gamma}{12\omega_0^3} \frac{(10\alpha + 9\beta\omega_0^2)}{4\gamma\omega_0 + \omega_0^3} - \lambda^3 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\gamma}{108\omega_0^3} \frac{(-2\alpha + 3\beta\omega_0^2)}{4\gamma\omega_0 + 9\omega_0^3} + \\ & -\lambda^4 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\alpha(19\alpha + 45\beta\omega_0^2)}{144\gamma\omega_0^4} - \lambda^4 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\alpha\gamma(\alpha^2 - 3\beta\omega_0^2)}{96\omega_0^6 \gamma\gamma + \omega_0^2} + \lambda^4 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\alpha\gamma(\alpha\alpha - 9\beta\omega_0^2)}{4608\omega_0^6 \gamma\gamma + 4\omega_0^2} + \dots\dots\dots (14) \\ & -\lambda^5 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\gamma(214\alpha^2 - 9\beta\omega_0^2)}{384\omega_0^5} + \lambda^5 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\gamma(38\alpha\alpha + 9\beta\omega_0^2)}{1728\omega_0^5} + \lambda^5 \frac{\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\tilde{b}\beta\gamma(14\alpha\alpha - 9\beta\omega_0^2)}{9600\omega_0^5} + \dots + \\ & + \mathcal{O}(HHG) + \mathcal{O}((SubHG, SubHHG)) \end{aligned}$$

Damit wurde gezeigt, dass SHG, sowie THG und deren Schnittstelle, sowie dotierte Systeme erst durch ein Zeitdelta - Zeitverschiebung bzw. Frequenzvariation entstehen. Höhere und Hohe Harmonische, deren Schnittstellensignale und Subharmonischen entstehen erst durch einen Zeitsprung.

Dabei ist die charakteristische Zeitverschiebung unabhängig von der Zeitverschiebung des extern eingestrahlt Feldes und das jeweils für SHG, THG, SubHG und deren Schnittstellensignale. Der Effekt der zeitlichen Verschiebung wird mit zunehmender Ordnung für die Harmonischen und Subharmonischen immer kleiner und könnte für sehr hohe Harmonische nur noch quantenmechanisch nachgewiesen werden.

Aufgrund der Frequenzverschiebung ändert sich auch das Absorptionsverhalten der Materie, verschoben um den charakteristischen Skewnesseffekt hin zu niedrigeren Frequenzen bzw. zu höheren Frequenzen für NEGATIV dotierten Bulk.

Der hier gewählte Ansatz zum Lösen der Gleichung umgeht die Lösungsmöglichkeit mittels der viel komplizierteren Finite Difference Methode, deren Lösung sich zudem als instabil erweist, außer man nützt spezielle einschränkende Vorgaben.

#### 4. DISCUSSION

- ① Es konnte gezeigt werden, dass die Dämpfung in Z. S. Materie rein nichtlinear ist. Dabei wurde gefunden, dass die nichtlineare Dämpfung sehr stark von der Response- Amplitude  $\tilde{b}$  und vom Nichtlinearitätsparameter  $\beta$  abhängt. Dies steht im starken Kontrast zu den linearen Dämpfungsparadigmen.
- ② THG sowie noch höhere Harmonische Z. S. Materie entstehen, wie hier gezeigt wurde, nachweislich unter Ausbildung einer charakteristischen Frequenzvariation (symmetrieabhängige charakteristische Skewnesseffekte).
- ③ Berücksichtigt man, dass man von der Frequenzdomäne direkt auf die Zeitdomäne schließen kann, so erhält man beispielsweise für SHG ein Zeitdelta 0,47 ps bis 1.23 ps. Die Ausprägung der Frequenzvariation bzw. des Zeitdeltas ist für THG etwas kleiner als für SHG und liegt für die SHG – THG Schnittstelle zwischen diesen beiden Werten.
- ④ Weiters konnte gezeigt werden, dass BULK- THG, Z. S. S. dotiert wie undotiert erst durch ein Zeitdelta - Zeitverschiebung bzw. Frequenzvariation entstehen. Höhere und Hohe Harmonische, und Schnittstellensignale entstehen demnach erst durch einen Zeitsprung. Dasselbe gilt für Subharmonische.
- ⑤ Die charakteristische Zeitverschiebung ist dabei unabhängig von der Zeitverschiebung des extern eingestrahlten Feldes.
- ⑥ Der Effekt der zeitlichen Verschiebung wird mit zunehmender Ordnung für die Harmonischen immer kleiner und könnte für sehr hohe Harmonische nur noch quantenmechanisch nachgewiesen werden.
- ⑦ Aufgrund der Frequenzverschiebung ändert sich auch das Absorptionsverhalten der Materie, verschoben um den charakteristischen Skewnesseffekt hin zu niedrigeren Frequenzen für BULK undotiert oder mit -I Effekt Gruppen (elektropositive Ortsladung) bzw. Verschiebung zu höheren Frequenzen für negativ dotierten Bulk – Z. S. S. mit Elektronenschiebende +I Gruppen die lokal die Elektronendichte signifikant erhöhen, welche u. a. für Organische Moleküle und “Soft Matter” Systeme wie sie in der Biologie vorkommen sehr relevant sind.

Weiters konnte gezeigt werden, dass zwei nicht zu vernachlässigbare Störeffekte auftreten, die das nichtlineare Spektrum maßgeblich beeinflussen:

- ① Das sind zum einen die Entstehung noch höherer Harmonischer die das Spektrum der höheren Harmonischen überlagern und somit das nichtlineare Spektrum maßgeblich verfälschen.

- ② Zum anderen konnten Störeffekte in Form von Subharmonischen gezeigt werden, die entstehen, wenn mindestens zwei getrennte Photonische Felder, eingestrahlt werden, die dann Stör- Effekte erzeugen.
- ③ Dieser Effekt verstärkt sich durch Erhöhung der Nichtlinearität des Systems oder Vielwellen- Mischen, wie z. B. 2 Farben- Anregung für Oberflächen- SHG und 3- Farben Anregung für BULK THG, wie sie, wie wir noch sehen werden, normalerweise nur an Schnittstellen und Übergängen verschiedener Medien oder Materiesymmetrien entstehen. Die Subharmonischen werden dann fortlaufend stärker ausgeprägt auf Kosten der Ausprägung der Frequenz Responses der höheren Harmonischen.
- ④ Die Amplitude des Frequenz- Responses mit NEGATIVEN Skew wird aufgrund von Hystereseeffekten nach unten gedrückt, ganz im Gegensatz zu Frequenz Response mit POSITIVEN Skew, dessen Amplitude nach oben gedrückt wird.
- ⑤ Durch diese Erkenntnisse lassen sich die nichtlinearen Spektren noch besser Verstehen und verbessern und deren analytische Einsatzmöglichkeiten erweitern und deren Analytik verbessern, was dringend notwendig ist. Darüber hinaus sind die Ergebnisse von tragender Bedeutung für Soft- Matter Materialien, chemische Strukturaufklärung, Analyse chemischer Zusammensetzungen in Z. S. Materie usw.

Mit diesen Erkenntnissen kann man jetzt die nichtlineare Natur von Z. S. Materie nutzen um die Leistung der Spektrenanalyse zu verbessern und um die Spektren besser verstehen zu können. Diese Erkenntnisse lassen sich auf N. Z. S. Systeme und deren Schnittstellen anwenden.

## References

[RWB99] R. W. Boyd, *J. Mod. Opt.* **46**, 367, 1999

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

[BSMM08] Bronstein, I. N., K. A. Semendjajew, G. Musiol, H. Mühlig, *Taschenbuch der Mathematik*, 7., vollständig überarbeitete und ergänzte Auflage, Verlag Harri Deutsch, Frankfurt am Main, (2008).