

Vierwellenmischen und Anwendungen

René Costard

Seminar Moderne Optik, WS 2007/2008
21.01.2008

- 1 Ausgewählte Grundlagen der Nichtlinearen Optik
- 2 Vierwellenmischen
 - Entartetes Vierwellenmischen
 - Holographic-Grating Spectroscopy
 - CARS
 - Grundlegendes
 - CARS-Mikroskopie
 - Zusammenfassung
- 3 Literatur

Die nichtlineare Wellengleichung

Maxwell-Gleichungen im Dielektrikum enthalten $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$
→ Lineare Optik: $\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}$

$$\left(\Delta - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{E}(\vec{r}, t) = 0$$

Größere elektrische Feldstärken → kein linearer Zusammenhang zwischen \vec{P} und \vec{E}

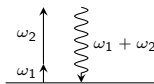
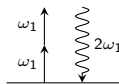
$$\vec{P} = \epsilon_0 (\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots)$$

Nichtlineare Wellengleichung

$$\left(\Delta - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{E}(\vec{r}, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}_{NL}(\vec{r}, t)$$

Nichtlineare Beiträge zur Polarisation

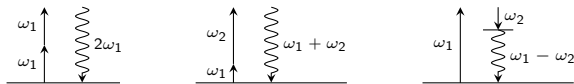
- $\chi^{(2)}$
 - Nur in Medien ohne Inversionssymmetrie
 - Zweite Harmonische, Summen- & Differenzfrequenzerzeugung



Nichtlineare Beiträge zur Polarisation

- $\chi^{(2)}$

- Nur in Medien ohne Inversionssymmetrie
- Zweite Harmonische, Summen- & Differenzfrequenzerzeugung



- $\chi^{(3)}$

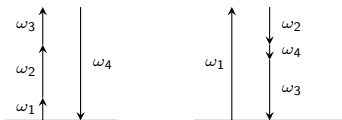
- Existiert in allen Medien
- Wenn $\chi^{(2)} \neq 0$ gilt i.A. $|\chi^{(3)}| \ll |\chi^{(2)}|$
- Enthält Kombinationen von 3 Frequenzen \rightarrow 48 Terme
- Für uns interessant wegen Vierwellenmischung

Vierwellenmischen

- Nichtlinearer Effekt mit vier wechselwirkenden elektromagnetischen Wellen:

$$\vec{P}^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E}_1 \vec{E}_2 \vec{E}_3 \quad \text{bzw.} \quad P_i^{(3)} = \epsilon_0 \chi_{ijkl}^{(3)} E_{1,j} E_{2,k} E_{3,l}$$

- Energieerhaltung: $\omega_4 = \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$
- Phasenanpassung: $\vec{k}_4 = \pm\vec{k}_1 \pm \vec{k}_2 \pm \vec{k}_3$
- Beispiele:



Entartetes Vierwellenmischen

- Entarteter Fall:

$$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega_4 \rightarrow |\vec{k}_1| = |\vec{k}_2| = |\vec{k}_3| = |\vec{k}_4|$$

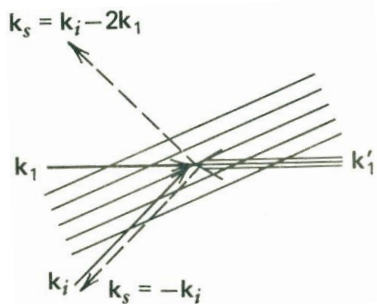
- Aber: Unterschiedliche Richtungen für \vec{k}_i möglich
- Lösung der Nichtlinearen Wellengleichung mit

$$P^{(3)}(\omega) = P^{(3)}(\vec{k}_1, \vec{k}_2, -\vec{k}_3, \omega) + P^{(3)}(\vec{k}_1, -\vec{k}_2, \vec{k}_3, \omega) + P^{(3)}(-\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3, \omega)$$

- Einfaches physikalisches Bild: Zwei Wellen interferieren im Medium, dritte Welle erfährt Bragg-Reflexion

Entartetes Vierwellenmischen: Anschauliche Erklärung

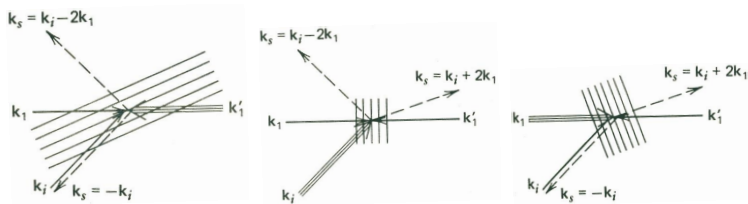
- Prinzip (Shen [1]: $\vec{k}_{1,2,3,4} \leftrightarrow \vec{k}_{1,1',i,s}$)



- $\vec{k}_s = \vec{k}'_1 \pm (\vec{k}_1 - \vec{k}_i)$

Entartetes Vierwellenmischen: Anschauliche Erklärung

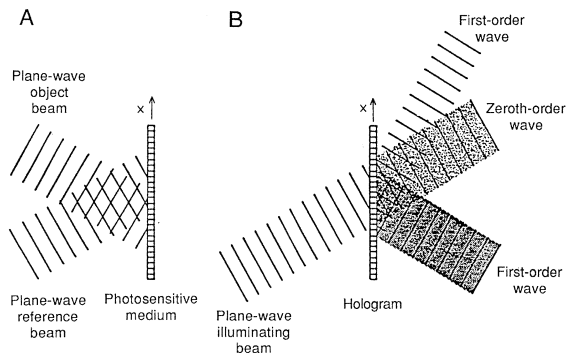
- Prinzip (Shen [1]): $\vec{k}_{1,2,3,4} \leftrightarrow \vec{k}_{1,1',i,s}$



- Allgemein: $\vec{k}_s = \vec{k}_{in} \pm (\vec{k}_{int1} - \vec{k}_{int2})$
- Energieerhaltung i.a. nur von $-\vec{k}_i$ erfüllt

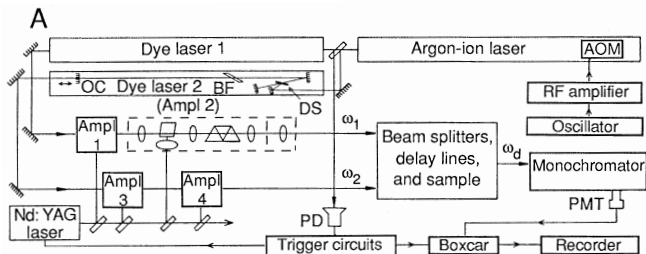
Holographic-Grating Spectroscopy

- Wiersma & Duppen, Science 1987: [2]

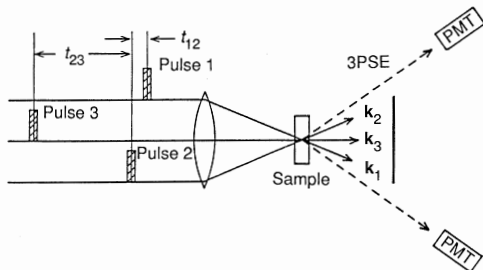


- Streifenmuster $I(x) \propto \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda}x + \Phi_{12}\right)$ mit $\Lambda = \lambda/(2 \sin \Theta)$
- Übertragung des Prinzips auf kurze Lichtimpulse

Holographic-Grating Spectroscopy: Experiment



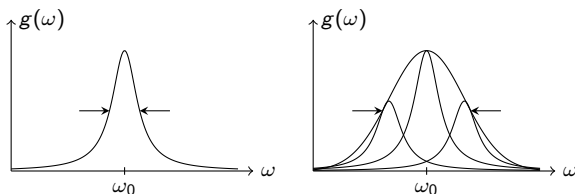
B



Mögliche Messgrößen: T_1 und T_2

Je nach Experiment können Zeiten T_1 und/oder T_2^* entscheidend sein:

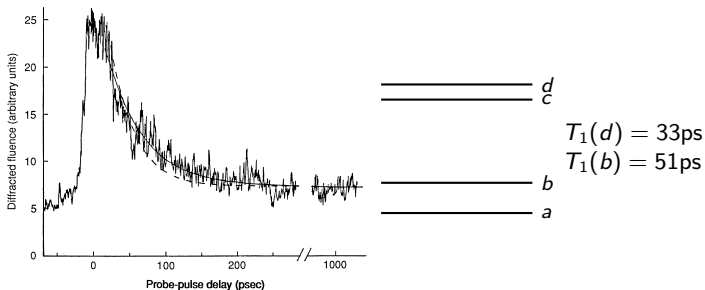
- Relaxation angeregter Zustände: T_1
→ homogene & inhomogene Verbreiterung



- Phasenverlust (pure dephasing): T_2^*
→ Dephasierungszeit T_2 : $\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_2^*} + \frac{1}{2T_1}$

Holographic-Grating Spectroscopy: Ergebnisse I

- $t_{12} = 0$: Transiente Gitter
 - Räumliche Modulation des komplexen Brechungsindex
 - Nur Information über T_1
Beispiel: Pentacen in Naphtalin (1,5K)



- $t_{12} \neq 0 \rightarrow$ Photonenechos: Dephasierungszeit T_2

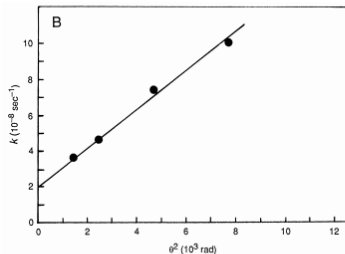
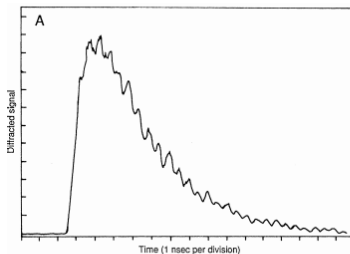
Holographic-Grating Spectroscopy: Ergebnisse II

- Optische Anregung in Halbleitern → Exzitonen
- Diffusion → Zerfall des Gitters mit

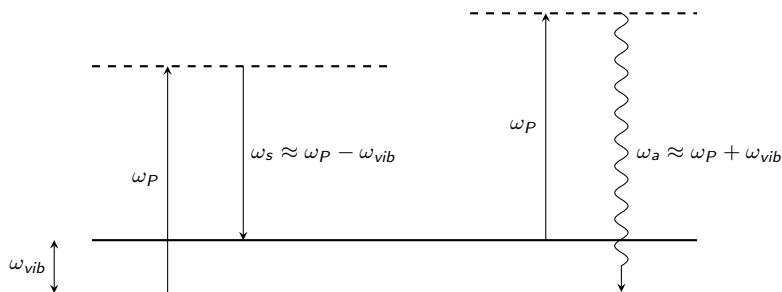
$$1/T = 1/T_1 + (4\pi^2/\Lambda^2)D$$

→ Bestimmung der Diffusionskonstanten D

- Beispiel: Kristallines Anthracen bei 10K → $D = 1.8\text{cm}^2/\text{s}$



= Coherent Anti-Stokes Raman Scattering



- Kohärente Anregung einer Polarisation im Medium mit $\omega_{Diff} = \omega_p - \omega_s$
- Abfragen der Polarisation mit $\omega_p \rightarrow$ kohärentes Signal $\omega_a = 2\omega_p - \omega_s$

CARS: Phasenanpassung

Kohärenz bietet den Vorteil gerichteter Signale, allerdings muss Phasenanpassung gewährleistet sein:

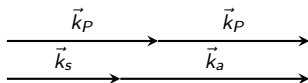
$$\vec{k}_a = 2\vec{k}_P - \vec{k}_s$$

CARS: Phasenanpassung

Kohärenz bietet den Vorteil gerichteter Signale, allerdings muss Phasenanpassung gewährleistet sein:

$$\vec{k}_a = 2\vec{k}_P - \vec{k}_s$$

- In Gasen

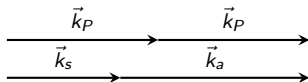


CARS: Phasenanpassung

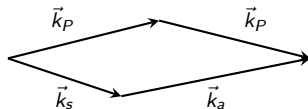
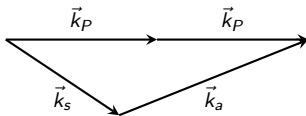
Kohärenz bietet den Vorteil gerichteter Signale, allerdings muss Phasenanpassung gewährleistet sein:

$$\vec{k}_a = 2\vec{k}_P - \vec{k}_s$$

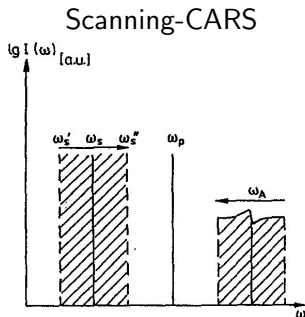
- In Gasen



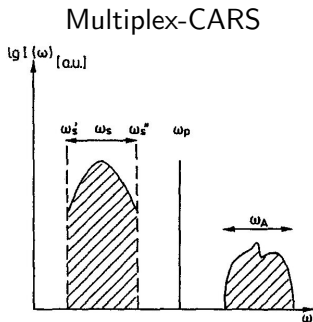
- In Kondensierter Materie: Dispersion $dn/d\lambda < 0$



CARS: Experimentelle Techniken



- Spektral schmalbandige Strahlung
- Durchstimmen von ω_S
- Gute spektrale Auflösung



- Schmalbandiger Pumplaser, breitbandiger Stokeslaser
- Schnelle Messung möglich

CARS: Spektroskopie

- Signal:

$$I \propto |\chi^{(3)}|^2, \quad \chi^{(3)} = \chi_{NR}^{(3)} + \chi_R^{(3)}, \quad \chi_R^{(3)} = \frac{a}{(\omega_P - \omega_S - \omega_{vib}) + i\Gamma}$$

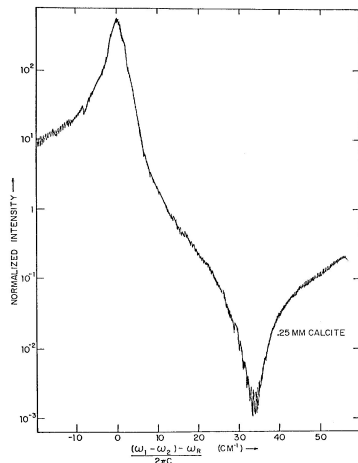


Fig. 15.2 A CARS spectral line around the 1088-cm⁻¹ resonance in calcite. [After M. D. Levenson, *IEEE J. Quant. Electron.* **QE-10**, 110 (1974).]

CARS-Mikroskopie - Warum CARS?

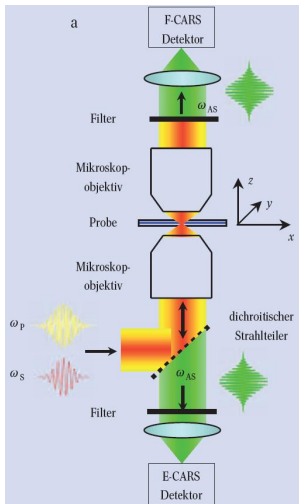
Sehr gute Auflösung in Fluoreszenzmikroskopie, aber meist Anfärben notwendig → Probleme:

- Präparation der Proben
- Änderungen der Probeneigenschaften
- Ausbleichen der Farbstoffe

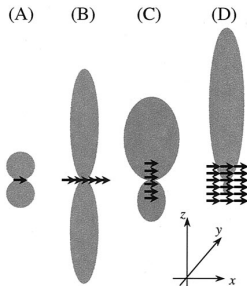
Alternative Kontrastmethoden durch:

- Phasenkontrast-Mikroskopie (keine chemische Selektivität)
- Infrarot-Mikroskopie (geringe Auflösung), Raman-Mikroskopie (große Intensitäten nötig)

CARS-Mikroskop



Voraussetzung für Signalentstehung:
Phasenanpassung \rightarrow möglich durch
Mikroskopobjektive mit großer NA

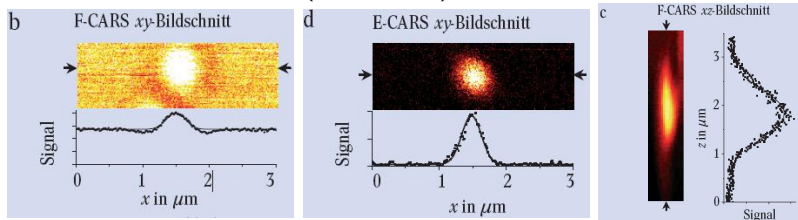


Cheng et al., Biophys. J., July 2002. [4]

Zumbusch & Volkmer, Physik Journal, Juli 2005. [3]

CARS-Mikroskopie: Räumliche Auflösung

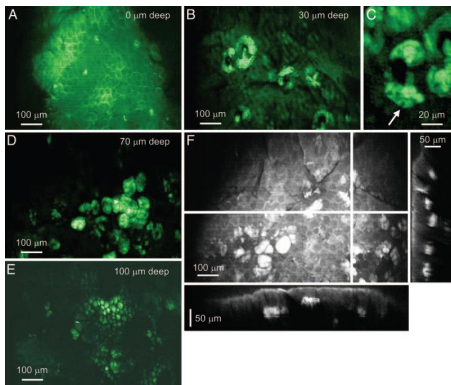
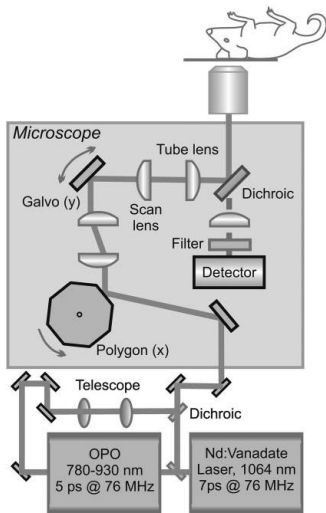
Polystyrolkugeln in wässriger Lösung, dargestellt durch C=C-Streckschwingung (1595cm^{-1})



Zumbusch & Volkmer, Physik Journal, Juli 2005. [3]

→ Laterale Auflösung: 340nm , axiale Auflösung: $1.2\mu\text{m}$
($\lambda_P > 780\text{nm}$)

CARS-Mikroskopie: *In-Vivo* Bildaufnahme mit Video-Rate



Evans et al., PNAS, November 2005.

<http://www.pnas.org/cgi/content/abstract/102/46/16807> (\rightarrow Supporting Information), [4]

- Vierwellenmischen als nichtlinearer optischer Effekt 3. Ordnung
 - Nichtlineare Polarisation als Quellterm in der Wellengleichung
 - Notwendigkeit der Phasenanpassung
- Bestimmung der Dynamik mit Holographic-Grating Spectroscopy
 - Relaxation von Schwingungszuständen (T_1)
 - Diffusion von Exzitonen
- CARS
 - Spektroskopie
 - Mikroskopie

Weitere Anwendungsgebiete des Vierwellenmischens

Hier wurde nur ein sehr kleiner Ausschnitt der Möglichkeiten gezeigt, weitere Anwendungsgebiete des Vierwellenmischens sind u.a.:

- Erzeugung durchstimmbarer infraroter und ultravioletter Strahlung
- Phasenkonjugation
- Photonenechos → Untersuchung der Dephasierungszeit T_2
- ...

- [1] Y. R. Shen.
The Principles of Nonlinear Optics.
Wiley-Interscience, 1984.
- [2] D.A. Wiersma and K. Duppen.
Picosecond Holographic-Grating Spectroscopy.
Science, 237:1147–1154, September 1987.
- [3] Zumbusch Andreas and Andreas Volkmer.
Einblick in das Unsichtbare.
Physik Journal, 4(7):31–37, Juli 2005.

- [4] Conor L. Evans, Eric O. Potma, Mehron Puoris'haag, Daniel Cote, Charles P. Lin, and X. Sunney Xie.
Chemical imaging of tissue in vivo with video-rate coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy.
Proceedings of the National Academy of Sciences,
102(46):16807–16812, 2005.
- [5] Andreas Zumbusch, Gary R. Holtom, and X. Sunney Xie.
Three-Dimensional Vibrational Imaging by Coherent Anti-Stokes Raman Scattering.
Phys. Rev. Lett., 82(20):4142–4145, May 1999.
- [6] Ji-Xin Cheng, Y. Kevin Jia, Gengfeng Zheng, and X. Sunney Xie.
Laser-Scanning Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy and Applications to Cell Biology.
Biophys. J., 83(1):502–509, 2002.