VI Nichtlineare Antwort

Verschiedene Klassifizierungen der Nichtlinearitäten sind möglich:

a) Resonante WW (Frequenz des Lichts $\approx$ atomare Übergänge)
Nichtresonante WW (Frequenz des Lichts $\not\approx$ atomare Übergänge)

b) Dielektrika (Atome, Moleküle, HL ...) $\rightarrow$ einzelne Niveaus
geladene Flüssigkeiten (Metalle, Plasmen ...) $\rightarrow$ Vielteilchenzustände

der Übergang ist fließend ... z.B. Halbleiter

c) Störungstheorie $\vec{P} \sim \sum_n d_n E^n$
nicht störungstheoretisch $\vec{P} = \vec{P}(\vec{E})$ als Fkt. gelöst
"alle Ordnungen in $\vec{E}$"

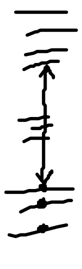
Ziel: Formulierung verschiedener Nichtlinearitäten
für Beschreibung von Lichtausbreitung
in verschiedenen wichtigen Grenzfällen

1. Nichtlinearitäten für lokalisierte Elektronen (Atome, Dielektrika)

Grundlage: Dichtematrixgl. für ρ_{ij} ($i \neq j$: Nichtdiagonal El. $\rightarrow$ "coherences"; $i = j$: Diagonal El. $\rightarrow$ "populations")

$$\dot{\rho}_{ij} = i\omega_{ij}\rho_{ij} - i\sum_m \left(\Omega^*_{im}\rho_{mj} - \Omega_{jm}\rho_{im}\right)$$

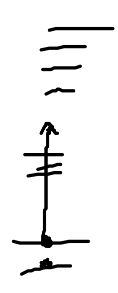
resonante WW



↑ unbesetzte ↓ Zustände erreichbar

"echte" Besetzung verbleibt nach Puls

nichtresonante WW



"keine Zustände erreichbar"

transiente Besetzung während des Pulses

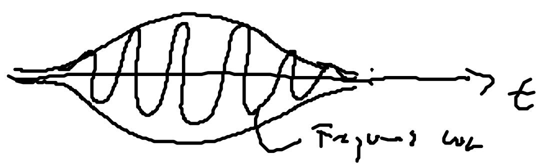
1.1 Exakt resonante Nichtlinearitäten im Zweiniveausystem

—— $|2\rangle$ Dichtematrixgl.
mit Inversionssymmetrie
—— $|1\rangle$ $\Omega_{ii} = 0$

WW mit Puls

$$E(t) = \tilde{E}(t) \cos \omega_L t \quad , \text{ Pulsdauer } \tau$$

$\uparrow$ Envelope - Einhüllende



Dephasing

$$\dot{\rho}_{12} = i\omega_{21} \rho_{12} - i\left(\Omega^*_{12} \rho_{22} - \Omega_{21} \rho_{11}\right) - \gamma \rho_{12}$$

$$\dot{\rho}_{11} = -i\left(\Omega^*_{12} \rho_{21} - \Omega_{12} \rho_{12}\right) - \Gamma\left(\rho_{11} - \rho^0_{11}\right)$$

$$\dot{\rho}_{22} = -i\left(\Omega^*_{21} \rho_{12} - \Omega_{21} \rho_{21}\right) - \underbrace{\Gamma\left(\rho_{22} - \rho^0_{22}\right)}_{\text{phänomenologisch ergänzt}}$$

Energierelaxation

$$\Omega_{ij}(t) = \frac{d_{ij} E(t)}{\hbar}$$

Diskussion von 3 komplementären Lösungen: nach γ, Γ, τ klassifiziert

a) <u>Ultrakurzzeitregime</u>: $\tau \ll \gamma^{-1}, \Gamma^{-1}$

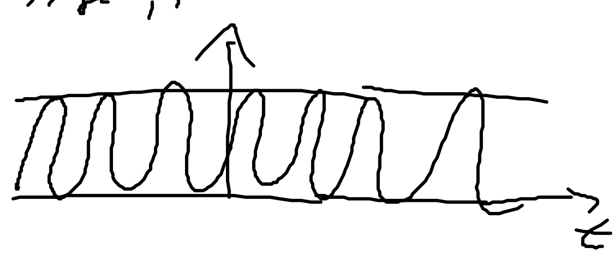
Puls ist schneller als alle Relaxationsprozesse
d.h. Relaxationsvorgänge vernachlässigen

b) <u>Ratengleichungsregime</u>: $\tau \gg \gamma^{-1} \ll \Gamma^{-1}$

i.a. $\gamma \gg \Gamma$, weil Stöße immer die Phase zerstören, aber nicht zu Niveauänderung führen

c) <u>Stationäres Regime</u> $\tau \gg \gamma^{-1}, \Gamma^{-1}$

ganz langer Puls
erlaubt stationäre Lsg.



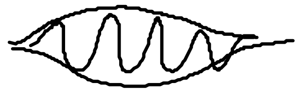
<u>Anwendung der RWA</u> "rotating-wave-approximation" — Drehwellennäherung

$E = \tilde{E}(t)\cos(\omega_L t)$ am Ort d. Atoms

$\dot\rho_{ij} \sim i\omega_{ij}\rho_{ij}$ + Quelle $(\cos\omega_L t)$ $\qquad \omega_L \approx |\omega_{ij}|$

Ansatz: $\rho_{ij} \sim \tilde\rho_{ij}\, e^{-i\omega_L t}$ und dann „langsame" Gl. für $\tilde\rho_{ij}$ konstruieren

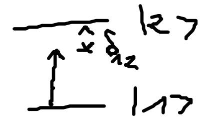
geht, wenn

a)  Puls viele Oszillationen beinhaltet

b) $\omega_L \approx \omega_{ij}$

c) Ω, γ, Γ etc $< \omega_{ij}$

-> dann kann RWA gemacht werden



$\omega_1 - \omega_L < 0$

$\rho_{12} = \tilde\rho_{12}\, e^{-i\omega_L t}$

$\Omega_{12} = \frac{1}{2}\tilde\Omega_{12} e^{+i\omega_L t} + \frac{1}{2}\tilde\Omega_{12}^* e^{-i\omega_L t}$

$$\dot{\tilde\rho}_{12} = i\underbrace{(\omega_{12}+\omega_L)}_{\delta_{12}}\tilde\rho_{12} - i\Big\{\big(\tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{12}^*(t)\,e^{-i\omega_L t} + \tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{12}\,e^{+i\omega_L t}\big)\rho_{22}(t) - \big(\tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{21}(t)\,e^{-i\omega_L t} + \tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{21}^*\,e^{+i\omega_L t}\big)\rho_{11}(t)\Big\}e^{i\omega_L t}$$

„Verstimmung"

„RWA"

$$= i\delta_{12}\tilde\rho_{12} - i\Big\{\big(\tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{12}^*(t) + \cancel{\tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{12}(t)\,e^{i2\omega_L t}}^{\to 0}\big)\rho_{22}(t) - \big(\tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{21}(t) + \cancel{\tfrac{1}{2}\tilde\Omega_{21}^*(t)\,e^{i2\omega_L t}}^{\to 0}\big)\rho_{11}(t)$$

$$\boxed{\begin{aligned}
&\dot{\tilde\rho}_{12}(t) = i\delta_{12}\tilde\rho_{12} + i\frac{\tilde\Omega_{21}(t)}{2}\big(\rho_{11}(t)-\rho_{22}(t)\big) - \gamma\tilde\rho_{12}(t)\\
&\text{analog}\\
&\dot{\tilde\rho}_{11}(t) = -\frac{i}{2}\big(\tilde\Omega_{21}(t)\tilde\rho_{21}(t) - \tilde\Omega_{12}(t)\tilde\rho_{12}(t)\big) - \Gamma(\tilde\rho_{11}-\tilde\rho_{11}^0)\\
&\dot{\tilde\rho}_{22}(t) = +\frac{i}{2}\big(\tilde\Omega_{21}(t)\tilde\rho_{21}(t) - \tilde\Omega_{12}(t)\tilde\rho_{12}(t)\big) - \Gamma(\tilde\rho_{22}-\tilde\rho_{22}^0)\\
&\text{ohne Relaxation}\quad \frac{d}{dt}\tilde\rho_{11} = -\frac{d}{dt}\tilde\rho_{22} \qquad \tilde\rho_{11}+\tilde\rho_{22}=1
\end{aligned}}$$

Zweiniveaugl. in RWA

jetzt Diskussion der versch. Grenzfälle

$$\hat{\tilde{\Omega}} \to \Omega, \quad \hat{\tilde{\rho}} \to \rho$$

α) Ultrakurzzeit regime: Rabi oszillationen

Annahme $\delta_{12} = 0$, volle Resonanz

$\|2\rangle$	$\rho_{22} = 0$	$\Delta = 1$
$\|1\rangle$ (•)	$\rho_{11} = 1$	
$\|2\rangle$ (•)	$\rho_{22} = 1$	$\Delta = -1$
$\|1\rangle$	$\rho_{11} = 0$	

(1) $$\dot{\rho}_{12} = +\frac{i}{2}\,\Omega_{21}(t)\,\underbrace{\left(\rho_{11}(t) - \rho_{22}(t)\right)}_{\Delta(t) \text{ "Inversion"}}$$

(2) $$\dot{\rho}_{11}(t) - \dot{\rho}_{22}(t) = -i\left(\Omega_{21}(t)\,\rho_{21}(t) - \Omega_{12}(t)\,\rho_{12}(t)\right)$$

$\rho_{12} = i\rho$ Ansatz f. reelles $\Omega_{ij} = \Omega$, $\rho \in \mathbb{R}$

(1) $\to$ $\dot{\rho} = +\frac{1}{2}\Omega\Delta$

(2) $\to$ $\dot{\Delta} = -i\Omega(-2i\rho) = -2\Omega\rho$

neue Koordinate $\Theta(t) = \int_{-\infty}^{t} dt'\,\Omega(t')$ Fläche des Felds (nicht Intensität)

(1) $\to$ $\rho' = \frac{1}{2}\Delta$

(2) $\to$ $\Delta' = -2\rho$

Ableitung nach Θ

$\Delta'' = -\Delta$ $\qquad \Delta = \cos\left(\Theta(t)\right) = \cos\left(\int_{-\infty}^{t} dt'\,\Omega(t')\right)$

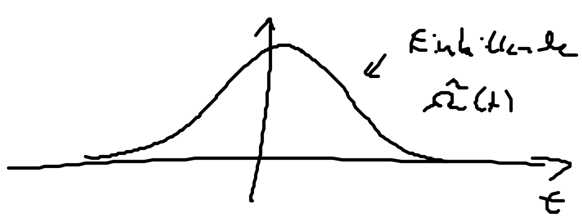
für Anfangsbedingung $\Delta = 1$

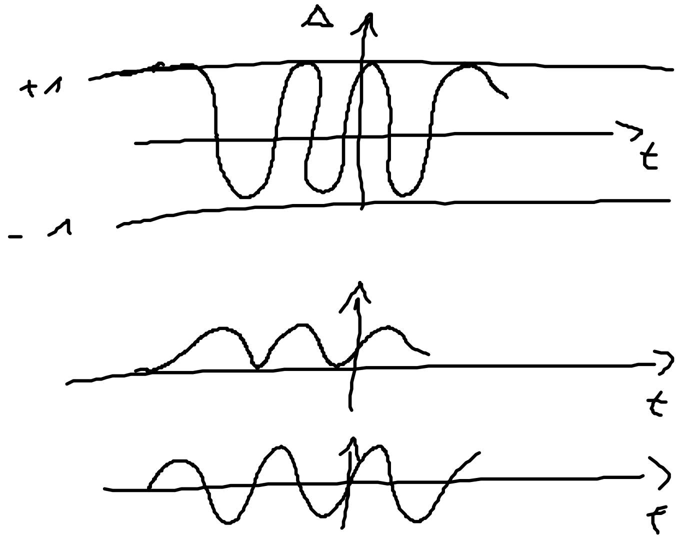
$$\rho = \frac{1}{2}\sin\left(\int_{-\infty}^{t} dt'\,\Omega(t')\right)$$

Pulsfläche

$$\rho_{12} = \frac{i}{2}\sin\left(\int_{-\infty}^{t} dt'\,\Omega(t')\right)$$ "Rabi-Oszillation"

später: in Wellengl. $\to$ Solitonen





$\Delta = \rho_{11} - \rho_{22}$

$1 = \rho_{11} + \rho_{22}$

$\Delta = 1 - 2\rho_{22}$

$\rho_{22} = \frac{1}{2}(1-\Delta)$

Macht Sinn Pulse $\Theta(\infty)$ nach Fläche zu benennen:

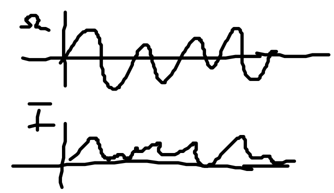
$t = -\infty$ $\qquad$ $t = +\infty$

$\Theta(\infty) = \frac{\pi}{2}$ Puls: $\Delta(-\infty) = 1 \rightarrow \Delta(+\infty) = 0$ ($\rho_{11} = \rho_{22} = 1/2$ Gleichbesetzung)

π Puls: $\Delta(-\infty) = 1 \rightarrow \Delta(+\infty) = -1$ ($\rho_{11} = 0$, $\rho_{22} = 1$)

2π Puls: $\Delta(-\infty) = 1 \rightarrow \Delta(+\infty) = 1$ ($\rho_{11} = 1$, $\rho_{22} = 0$)

existieren 0π Pulse mit Intensität $\neq 0$



b) Ratengleichungen: Sättigungseffekte

Annahme $\delta_{12} = 0$ $\qquad$ $\gamma_\perp \gg \Omega$ und ∂_t in $\dot\rho_{12}(t)$

↳ Elimination der Übergangsamplitude

$$\underbrace{\cancel{\dot\rho_{12}}}_{\to 0} + \gamma_\perp \rho_{12} = \frac{i}{2}\Omega_{21}\Delta \rightarrow \rho_{12} = \frac{i}{2}\frac{\Omega_{21}\Delta}{\gamma_\perp}$$

groß gegen $\dot\rho_{12}$

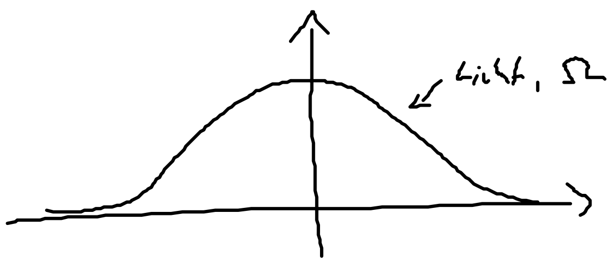
$$\dot\Delta = -\frac{i}{2}\left(\Omega_{21}\rho_{21} - \Omega_{12}\rho_{12}\right)$$

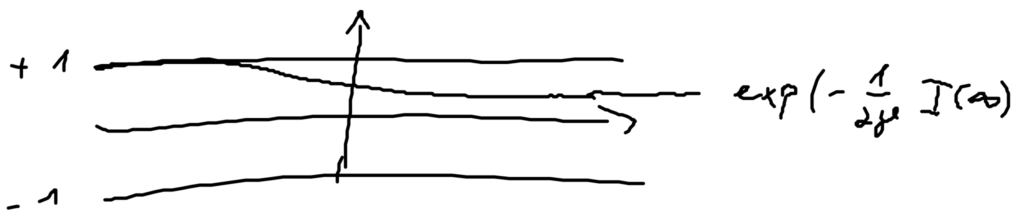
$$= -\frac{i}{2}\left(\Omega_{21}\left(-\frac{i}{2}\Omega_{12}\frac{\Delta}{\gamma_\perp}\right) - \Omega_{12}\left(\frac{i}{2}\Omega_{21}\frac{\Delta}{\gamma_\perp}\right)\right)$$

$$= -\frac{1}{2}|\Omega_{12}|\frac{\Delta}{\gamma}$$

$$\Delta = \exp\left(-\frac{1}{2\gamma}\int_{-\infty}^{t} dt'\,\Omega^2(t')\right) \qquad \text{mit} \quad \Delta(-\infty) = 1$$

$$\rho_{12} = \frac{i}{2}\frac{\Omega_{21}\Delta}{\gamma} = \frac{i}{2\gamma}\,\Omega_{21}\exp\left(-\frac{1}{2\gamma}\int_{-\infty}^{t} dt'\,\Omega^2(t')\right)$$





$\Delta = 0 \;\rightarrow\; \rho_{11} = \rho_{22} \;\hat{=}\;$ Gleichbesetzung beider Niveaus ist maximal erreichbar

c) stationäre Lösungen

$\dot{\rho}_{12} = 0 \qquad \tau \gg \gamma^{-1}, \Gamma^{-1}$

(1) $$\rho_{12} = \frac{i}{2}\frac{\Omega_{21}\Delta}{\gamma} \qquad \text{(aus Teil b)}$$

$$\Gamma(\Delta - \Delta_0) = -\frac{1}{2}|\hat{\Omega}_{12}|^2\frac{\Delta}{\gamma}$$

$$\Delta\left(\Gamma + \frac{\hat{\Omega}^2}{2\gamma}\right) = \Delta_0\Gamma$$

(2) $$\Delta = \frac{\Delta_0\Gamma}{\Gamma + \frac{\hat{\Omega}_{12}^2}{2\gamma}} = \frac{\Delta_0}{1 + \Omega_{12}^2/2\gamma\Gamma}$$

(2) in (1)

$$\rho_{12} = \frac{i}{2\gamma}\frac{\Omega_{21}\Delta_0}{(1 + |\hat{\Omega}|^2/2\gamma\Gamma)}$$

- ein starkes Feld $\hat{\Omega} \rightarrow \infty$ sättigt das atomare System

$$\Delta = 0 \;\rightarrow\; \rho_{11} = \frac{1}{2} = \rho_{22}$$

- δ und ρ_{12} folgen dem Feld adiabatisch