ZUsatz II: Aspekte der nichtlinearen Optik (NLO)

Optik: Dynamik der Dipoldichte und deren Interferenz mit einem sich ausbreitendem Feld E (optische Frequenzen), das eingestrahlt wird. Wenn P proportional zu E ist, so spricht man von linearer Optik,
nichtlineare Optik ($P \sim E^n,\ n > 1$ oder komplizierter).
NLO entsteht bei Feldstärken, die merkliche Umbesetzung der elektronischen Besetzungszahl ρ_{ii} verursachen.

1. N-Niveausystem als Modellsystem

$$i\hbar\partial_t\psi = \underline{H}\psi$$

ψ : Wellenfkt. eines Einelektronenatoms im optischen Feld:

$$H = H_0 + H_{\text{ww}} = H_0 - q\mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t)$$

$$H_0\varphi_n = \epsilon_n\varphi_n$$

H_0 ist der freie Atomhamiltonian, betrachten 1 Atom / Molekül
H_{ww} ist der Hamiltonian für die Wechselwirkung von Strahlung ($\mathbf{E}$) und Elektron über die Elektronenauslenkung ($\mathbf{r}$) q ist die Ladung,
dabei Dipolnäherung: $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_k \mathbf{E}_k e^{i(kr-\omega t)} \equiv \mathbf{E}(t)$, d.h. $|\mathbf{r}| \approx 0$.

Das E-Feld ist nur von Zeit am Ort des Moleküls abhängig.

N-Niveausystem als Modellsystem 2

Im vorigen Kapitel wurde dieses Modellsystem für die Lasertheorie untersucht:

$$\psi(\mathbf{r},t) = \sum_{n=1}^{N} c_n(t)\psi_n(\mathbf{r}) \text{ wurde die Dipoldichte}$$

$$\mathbf{P} = \frac{1}{2}\sum_{n,m} \mathbf{d}_{nm}\rho_{nm}\omega(\mathbf{r}) + c.c. \text{ dargestellt am Ort des Moleküls } R_i = 0.$$

$$\rho_{nm}(t) = c_n^* c_m,\ \Omega_{nm} = \frac{\mathbf{d}_{nm}\cdot\mathbf{E}}{\hbar},\ \omega_{\text{nm}} = \omega_n - \omega_m,\ \omega_n = \epsilon_n/\hbar$$

$$\mathbf{d}_{nm} = q\int dV\psi_n^*(\mathbf{r})\mathbf{r}\psi_m(\mathbf{r})$$

$$\dot{c}_m = -i\omega_m c_m + i\sum_n \Omega_{mn}c_n,\ \dot{c}_l^* = i\omega_l c_l^* - i\sum_n \Omega_{ln}^* c_n^* \text{ (Kap.Lasertheorie)}$$

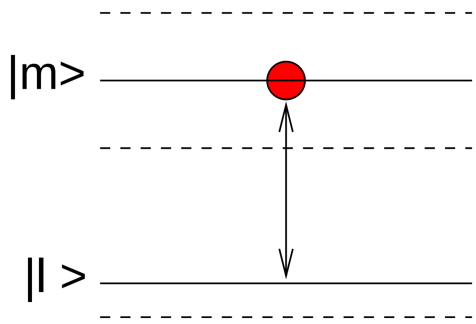
$$\partial_t(c_l^* c_m) = i(\omega_l - \omega_m)c_l^* c_m - i\sum_n(\Omega_{ln}^* c_n^* c_m - \Omega_{mn}c_l^* c_n)$$

$$\partial_t\rho_{lm} = i\omega_{lm}\rho_{lm} - i\sum_n(\Omega_{ln}^*\rho_{nm} - \Omega_{mn}\rho_{ln})$$

Dieses Gleichungssystem nennt man die Dichtematrixgleichungen für ein N-Niveausystem, gilt für beliebig starke Feldankopplung; über Anfangsbedingungen legt man fest, welche Niveaus vor der Feldeinwirkung gefüllt sind (Grundzustand).

N-Niveausystem als Modellsystem 3

Schema der Übergänge und Besetzungen in einem N-Niveausystem:



ρ_{mm}: Besetzungswahrscheinlichkeit

ρ_{lm}: Übergangswahrscheinlichkeit

Bsp.: Zwei-Niveausystem $l = 1,\ m = 2,\ \mathbf{d}_{11} = \mathbf{d}_{22} = 0$
(einfachste optische Auswahlregeln, Zweiphotonenprozess wenn $\mathbf{d}_{11} \neq 0$)

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

$$\dot{\rho}_{11} = -i(\Omega^*_{12}\rho_{21} - \Omega_{12}\rho_{12}), \quad \dot{\rho}_{22} = -i(\Omega^*_{21}\rho_{12} - \Omega_{21}\rho_{21})$$

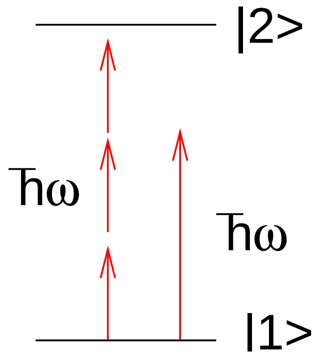
$$\dot{\rho}_{11} + \dot{\rho}_{22} = 0$$

ist ein gekoppeltes lineares Differentialgleichungssystem.
Anfangsbedingungen: Bei $t \to -\infty:\ \rho_{11} = 1,\ \rho_{22} = 0,\ \rho_{12} = \rho_{21} = 0$
Elektron im Grundzustand $|1\rangle$, keine Dipoldichte ohne Feld.
Für diese Anfangsbeding. ergibt sich der Erhaltungssatz $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$.
Für $\mathbf{d}_{12} = \mathbf{d}_{21} = \mathbf{d}$ setzen wir $\Omega_{12} = \Omega_{21} = \dfrac{d\,E(t)}{\hbar} = \Omega$.

2. Nichtresonante Nichtlinearitäten

Trägerfrequenz des Lichts $\neq$ Übergangsenergie
bedeutend für Faseroptik (Soliton), Atomoptik (Mehrphotonenprozesse), am Bsp. eines Zweiniveausystems.

$\hbar\omega_L \ll \omega_2 - \omega_1$ erlaubt Mehrphotonenprozesse u.a.
Kerr-Effekt und Mehrphotonenabsorption



$$\rho_{12} = -i \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}t' e^{i\omega_{12}(t-t')} \Omega(t')(\rho_{22}(t') - \rho_{11}(t'))$$

Störungstheoretische Betrachtung : $\rho_{22} = 0, \ \rho_{11} = 1$ = konstant als erste Näherung ansetzen (1.Ordung im Feld $\rho_{12}^1(t)$)

$$\rho_{12}^1(t) = i \int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}t' e^{i\omega_{12}(t-t')} \Omega(t')$$

stellt lineare Optik dar, da proportional zu $\Omega(t) = E(t)d/\hbar$.
Man erkennt eine Zeitretardierung (Gedächtnisseffekte).
Umschreiben mit $s = t - t', \ \mathrm{d}s = -\mathrm{d}t'$ Grenzen: $-\infty \to \infty, t \to 0$

Nichtresonante Nichtlinearitäten 5

$$\rho_{12}^1(t) = i\int_0^\infty \mathrm{d}s\, e^{i\omega_{12}s}\Omega(t-s)$$

die schnellste Zeitabhängigkeit in $\Omega(t-s)$ ist $\omega_L(\partial_t\Omega \sim \omega_L\Omega)$, da $\omega_{12} \gg \omega_L$ stellen wir das Integral als Reihe $\omega_{12}\partial_t\Omega/\Omega \ll 1$ dar:

$$\begin{aligned}
\rho_{12}^1(t) &= i\int_0^\infty \mathrm{d}s\, e^{i\omega_{12}s}\sum_{n=0}^\infty \partial_t^n\Omega(t)(-s)^n\frac{1}{n!} \\
&= i\int_0^\infty \mathrm{d}s\, e^{i\omega_{12}s}\Omega(t) - i\int_0^\infty \mathrm{d}s\, e^{i\omega_{12}s}s\partial_t\Omega(t) + \dots \\
&= \frac{-i}{i\omega_{12}-\gamma}\Omega(t) + \partial_{i\omega_{12}}\left(\frac{i}{i\omega_{12}-\gamma}\right)\partial_t\Omega(t) + \dots
\end{aligned}$$

konvergenzerzeugender Faktor $\gamma \to 0\,(e^{(i\omega_{1s}-\gamma)s})$ zur Lösung der Integrale:

$$\rho_{12}^1(t) = -\frac{\Omega(t)}{\omega_{12}} + i\frac{\partial_t\Omega}{\omega_{12}^2} + \dots$$

offensichtlich stellt diese Reihe eine Entwicklung nach $\left(\frac{\partial_t}{\omega_{12}}\right)^n$ dar.

Einsetzen der ersten beiden Glieder in ρ_{22} gibt die zweite Ordnung der Störungstheorie im Feld Ω.

Nichtresonante Nichtlinearitäten 6

Erste Ordnung der Störungstheorie (oben 1 geschrieben): $\rho_{11} = 1$

Zweite Ordnung der Störungstheorie (oben 2 geschrieben):

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}^2_{22} &= -i\Omega(\rho^1_{12} - \rho^1_{21}) = -i\Omega(\rho^1_{12} - c.c.) \\
&= -i\Omega\left(2i\frac{\partial_t\Omega}{\omega^2_{12}}\right) = \partial_t\left(\frac{\Omega^2}{\omega^2_{12}}\right) \\
\rho^2_{22} &= \frac{\Omega^2}{\omega^2_{12}}, \quad \rho^2_{11} = 1 - \frac{\Omega^2}{\omega^2_{12}} \\
\dot{\rho}^3_{12} &= i\omega_{12}\rho_{12} + i\Omega\left(1 - 2\frac{\Omega^2}{\omega^2_{12}}\right)
\end{aligned}$$

formale Lösung:

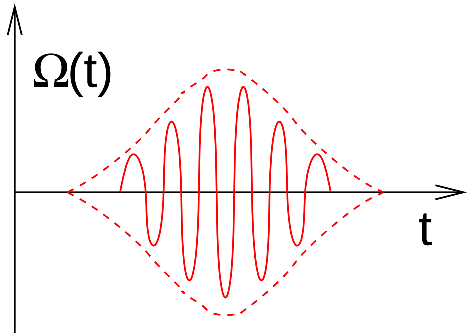
$$\rho^3_{12} = i\int_{-\infty}^{t} \mathrm{d}t'\, e^{i\omega_{12}(t-t')}\left(\Omega(t') - 2\frac{\Omega^3(t')}{\omega^2_{12}}\right)$$

$$\rho^3_{12} = i\int_{0}^{\infty} \mathrm{d}s\, e^{i\omega_{12}s}\left(\Omega(t-s) - 2\frac{\Omega^3(t-s)}{\omega^2_{12}}\right)$$

Nichtresonante Nichtlinearitäten 7

Der erste Term ist wiederum lineare Optik, der zweite Term ist ein Term, der nichtlinearen Optik (E^3).
Für eine höhere Potenz in E müßte man höhere Störungstheorie rechnen.

$\Omega(t) = \frac{d\tilde{E}(t)}{\hbar}\cos(\omega_L t)$ als E-Feld verwenden:



Trägerschwingung (ω_L) mit Einhüllender ($\tilde{\Omega}$) =Lichtpuls

$$\Omega(t) = \tilde{\Omega}(t)\cos(\omega_L t)$$

$$\Omega^3(t) = \frac{\tilde{\Omega}^3(t)}{8}\left(e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}\right)\left(e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}\right)\left(e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}\right)$$

$$\Omega^3(t) = \frac{\tilde{\Omega}^3(t)}{8}\left(e^{i3\omega_L t} + e^{-i3\omega_L t} + 3e^{i\omega_L t} + 3e^{-i\omega_L t}\right)$$

Man unterscheidet:

(a) $\omega_{12} \neq 3\omega_L$: i) Kerr-Nichtlinearität $e^{\pm i\omega_L t}$, ii) 3. Harmonische $e^{\pm i3\omega_L t}$

(b) $\omega_{12} \approx 3\omega_L$: 3-Photonenabsorption bzw. Verstärkung, $e^{\pm i3\omega_L t}$

2.1 Kerr-Nichtlinearität

nur den nichtlinearen Term betrachten:

$$\rho_{12}^3(t) = -2i \int_0^\infty \mathrm{d}s\, e^{i\omega_{12} s} \frac{\Omega^3(t-s)}{\omega_{12}^2} \quad \text{und nur Terme } e^{\pm i\omega_L t},\ \omega_L \neq \omega_{12}$$

$$\Omega^3(t) \to \frac{3}{4}\tilde{\Omega}^3(t)\cos(\omega_L t) = \frac{3}{4}\tilde{\Omega}^2(t)\Omega(t), \text{ analoge Behandlung der Zeitintegrals}$$

Kerreffekt: $$\rho_{12}^3(t) = -2i\frac{\frac{3}{4}|\tilde{\Omega}(t)|^2\Omega(t)}{-i\omega_{12}\omega_{12}^2} = \frac{3}{2}|\tilde{\Omega}(t)|^2\frac{\Omega(t)}{\omega_{12}^3}, \quad \left(\mathbf{P} = \frac{1}{2}n_0 d\rho_{12}(t)\omega(\mathbf{r}) + c.c.\right)$$

$$\mathbf{P}_{\text{kerr}} = \alpha|\tilde{E}(r,t)|^2 E(r,t), \quad \text{mit homogenen verteilten Dipolen}$$

Wellengleichung für eine Vektorkomponente auswerten: $(\partial_t|\tilde{E}|^2 \approx 0)$

$$\Box E = \mu_0\partial_t^2 P \approx \mu_0\alpha|\tilde{E}(t)|^2\partial_t^2 E(t)$$

$$\left(\Delta - \left\{\frac{1}{c^2} + \mu_0\alpha|\tilde{E}(t)|^2\right\}\partial_t^2\right)E(t) = 0$$

$$\left(\Delta - \frac{n_{nl}^2}{c^2}\partial_t^2\right)E(t) = 0$$

Der Brechungsindex n_{nl} wird nichtlinear vom Feld, der Intensität I abhängig, wird oft als $n_2 I$ beschrieben, Iso Konstante mal Intensität (Kerreffekt).
Der Kerreffekt führt zu verschiedenden Phänomenen in der nichtlinearen Optik.

Selbstphasenmodulation

$$E(z,t) \sim e^{i(n\frac{\omega_L}{c}z - \omega_L t)} = e^{i(\frac{\omega_L}{c} + n_2\frac{\omega_L}{c}I(t))z}$$

Es kommt zu einer Akkumulation einer nichtlinearen Phase während der Ausbreitung einer ebenen Welle.
Die Phase wird "moduliert", ist proportional zur Intensität $\hat{=}$ nichtlineare Selbstphasenmodulation.
Selbstphasenmodulation führt zu einer "instanten" (momentanen) Trägerfrequenz des Lichts:

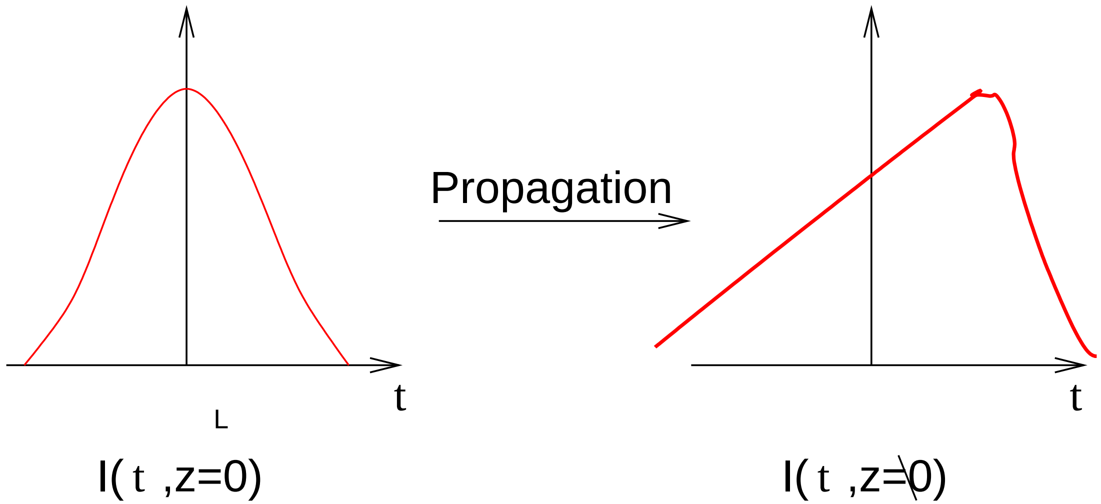
$$\frac{\partial}{\partial t}\varphi(t) = \omega_L + \frac{\omega_L}{c}n_2\frac{\partial}{\partial t}I(t)z$$

$$I = |\tilde{E}|^2$$

Die Phase des Lichts wird mit zunehmender Ausbreitungslänge nichtlinear moduliert, wird zunächst erhöht, dann erniedrigt (chirp!).

Kerr-Nichtlinearität (Selbstphasenmodulation) 10

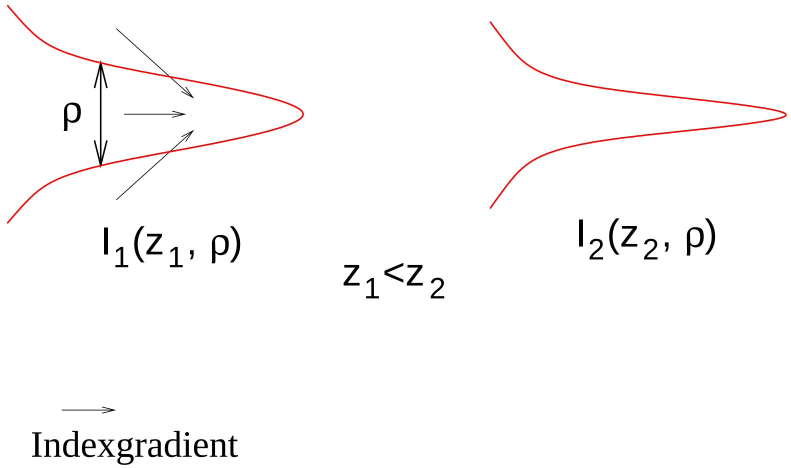
Folge: Pulsdeformation im Verlauf der Propagation



Der Zeitverlauf des elektromagnetische Pulses wird ortsabhängig (anders als im Vakuum, dort unveränderlich), da Front und Ende eine veränderte Geschwindigkeit haben. Es verschiebt sich der mittlere Zeitabschnitt des Pulses zu späteren/früheren Zeiten (Vorzeichen α). Man erhält eine Asymmetrie. Die Asymmetrie kann wiederum durch lineare Dispersion (Wellenpaketdynamik!) des Mediums balanziert werden, so dass der Nettoeffekt Null ist $\longrightarrow$ Soliton (frominvariante Ausbreitung trotz starker WW mit Material aufgrund zweier sich ausgleichener Effekte).

Selbstfokussierung

Aufgrund der nichtlinearen Brechzahl $n_2 I$ entsteht ein räumlicher Gradient in der Brechzahl $n(r)$, zum Beispiel für eine Gaussbeam:



Interpretation mit Eikonalgleichung: Lichstrahlen immer in Richtung des momentanen Indexgradienten, ist Null in der Mitte aber hoch an den Rändern, die Strahlen laufen zur Mitte - der Strahl fokussiert sich selbst, induziert durch die selbst induzierte Brechzahländerung!

2.2 Höhere Harmonische

wieder nur den nichtlinearen Term betrachten:

$$\rho^3_{12}(t) = -2i \int_0^\infty \mathrm{d}s \, e^{i\omega_{12} s} \frac{\Omega^3(t-s)}{\omega^2_{12}}$$

und nur Beiträge $e^{\pm 3i\omega_L t}, \ 3\omega_L \neq \omega_{12}$

$$\Omega^3(t) = \frac{1}{4} \tilde{\Omega}^3(t) \cos(3\omega_L t)$$

führt zur Erzeugung von Feldern (Dipolen) mit der dreifachen Frequenz der eingestrahlten Welle:
Höhere Harmonische:

$$\rho^3_{12}(t) = -2i \frac{1}{4} \frac{\tilde{\Omega}^3(t) \cos(3\omega_L t)}{-i\omega_{12}\omega^2_{12}} = \frac{1}{2} \frac{\tilde{\Omega}^3(t)}{\omega^3_{12}} \cos(3\omega_L t)$$

$$\mathbf{P}_{\text{3H}} = \beta \tilde{\mathbf{E}}^3(t) \cos(3\omega_L t)$$

Die Dipoldichte zeigt Oszillationen mit der 3-fachen Frequenz der eingestrahlten Welle. Diese Oszillation führt zu einem abgestrahlten E-Feld der dreifachen Frequenz, also einer harmonischen Frequenz die höherer Ordnung ist.

2.3 Multiphotonabsorption

Nichtlinearer Anteil der Übergangswahrscheinlichkeit

$$\rho_{12}^3(t) = -2i \int_0^\infty \mathrm{d}s \, \frac{\Omega^3(t-s)}{\omega_{12}^2} e^{i\omega_{12}s}$$

Anteil mit $e^{\pm 3i\omega_L t}$ des Felds und $|\omega_{12}| \approx 3\omega_L$ führt zur simultanen Absorption von 3 Photonen:

$$\rho_{12}^3(t) = -2i \frac{1}{8\omega_{12}^2} \int_0^\infty \mathrm{d}s \left(e^{3i\omega_L(t-s)} + e^{-3i\omega_L(t-s)} \right) e^{i\omega_{12}s} \tilde{\Omega}^3(t-s)$$

$$\omega_{12} = (\epsilon_1 - \epsilon_2)/\hbar < 0$$

nehmen Terme mit $\omega_{12} + 3\omega_L = 0$ im Exponenten mit (Resonanzapproximation) und führen wieder eine phänomenologische Dämpfung γ ein.

$$\rho_{12}^3(t) = -i \frac{1}{4\omega_{12}^2} \int_0^\infty \mathrm{d}s \, e^{-\gamma(t-s)} \tilde{\Omega}^3(t-s) e^{-3i\omega_L t}$$

$$\rho_{12}^3(t) = i \frac{1}{4\omega_{12}^2 \gamma} \tilde{\Omega}^3(t) e^{-3i\omega_L t - \gamma t}$$

Multiphotonabsorption 14

Dieser Term gibt offensichtlich wieder einen Beitrag zur dritten Harmonischen. Für 3-Photonabsorption muß höher in der Störungstheorie gegangen werden, ohne Beweis:

$$\dot{\rho}_{22}^{(4)} = -i\Omega(\rho_{21}^{(3)} - \rho_{12}^{(3)}) = \frac{\Omega\tilde{\Omega}^3}{2\omega_{12}^2\gamma}\sin(3\omega_L t)$$

$$\rho_{22}^{(4)} = \frac{\tilde{\Omega}^4}{4\omega_{12}^2\gamma^2}\left(e^{-2i\omega_L t} - e^{2i\omega_L t}\right)$$

$$\dot{\rho}_{12}^{(5)} = i\omega_{12}\rho_{12}^{(5)} + 2i\Omega\frac{\tilde{\Omega}^4}{4\omega_{12}^2\gamma^2}\left(e^{-2i\omega_L t} - e^{2i\omega_L t}\right)$$

$$\rho_{12}^{(5)} = -i\frac{\tilde{\Omega}^5}{2\omega_{12}^2\gamma^3}e^{-i\omega_L t}$$

Dieser Beitrag mit $\tilde{P}_{3p} = \tilde{\alpha}_{3p}\tilde{E}^5$ führt zu einer Abweichung vom bekannten Lambert Beer Exponentialgesetz.

Lambert Beer: $$\frac{\partial}{\partial z}I(z) = -\alpha_{1p}I(z), \quad I = I_0 e^{-z\alpha_{1p}}$$

3-Photonabsorption: $$\frac{\partial}{\partial z}I(z) = -\alpha_{3p}I^3(z), \quad I = I_0/\sqrt{1 + 2\alpha_{3p}zI_0^2}$$