III Aspekte der nichtlinearen Optik

lineare Optik: Dipoldichte P ~ elektrischem Feld E

nichtlineare Optik: $P \sim f(E^n)$ oder $f\left(\int dt'\, E^2(t')\right)$

oder $f\left(\left(\int dt'\, E(t')\right)^n\right)$ oder ...

i.a. nichtlineare Funktion von $E(t)$

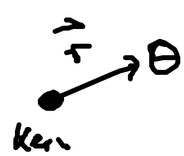
ist klassisch mechanisch durch nichtlineare Oszillatormodelle oder quantenmechanisch durch Dynamik der Wellenfunktion der Elektronen im Atom bestimmt (systematischer Zugang)

1) N-Niveausystem als Materialsystem

$$\vec{P}(\vec{r},t) = \sum_{n,m} \vec{d}_{nm}\, c_n^*(t)\, c_m(t)\, \delta(\vec{r})$$

$(\langle\psi|q\vec{r}|\psi\rangle)$ ← Lage d. Punktdipols

Punktdipol:



$$\vec{d}_{nm} = \langle n|q\vec{r}|m\rangle$$

$$\psi(\vec{r},t) = \sum c_n(t)\,|n\rangle \equiv |\psi\rangle$$

n

$|n\rangle$: atomaren Eigenzustand z.B. H-Atom

zu lösen: $$i\hbar\,\partial_t |\psi\rangle = H|\psi\rangle$$

$$\underbrace{H_0}_{\text{Atom}} \underbrace{- q\vec r\cdot\vec E(t)}_{\hat= q\phi \text{ und } -\nabla\phi = \vec E}$$

$\vec E$ an der Stelle d. Dipols

Ansatz $$|\psi\rangle = \sum_{n=1}^{N\ \text{Niveaus}} c_n(t)\,|n\rangle$$

1) einsetzen

2.) mit $\langle m|$ multiplizieren

3) Orthogonalität ausnutzen, $\quad H_0|m\rangle = \varepsilon_m|m\rangle$, $\quad \hbar\varepsilon_m = \omega_m$

$$\dot c_m = -i\omega_m c_m + i\sum_n \Omega_{mn} c_n$$

$$\Omega_{mn} = \frac{\vec d_{mn}\cdot\vec E(t)}{\hbar}$$

Koeffizientengleichg. zu lösen:

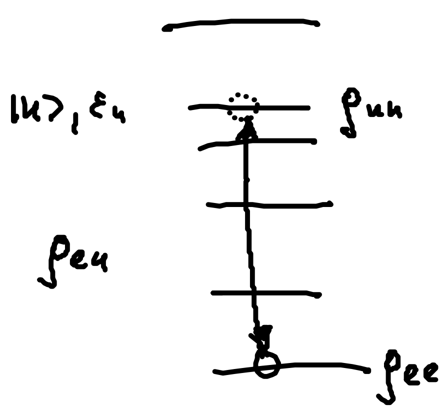
in Dipoldichte sind also $c_n^*(t)\,c_m(t)$

$$\partial_t\left(c_e^* c_m\right) = i(\omega_e-\omega_m)\, c_e^* c_m - i \sum_n \left(\Omega_{en}^* c_n^* c_m - \Omega_{mn} c_e^* c_n\right)$$

(Herleitg. d. Pr. f. $\dot{c}_m \cdot c_e^* + \dot{c}_e^* c_m$)

$$c_e^* c_m \;\hat{=}\; \rho_{em}$$

($\hat{=}$ Dichtematrixgleichungen)



viele atom Niveaus

$n = 1$ bis N

ρ_{nn} : Besetzungswahrscheinlichkeit d. Zustands $|n\rangle$

ρ_{en} : Übergangswahrscheinlichkeits amplitude von e nach n (Interferenzen)

Das E-Feld wird im kohärenten Zustand angenommen und soll klassisch sein f. viele Photonen, hohe Intensität.

$$\underline{E} \approx \langle E \rangle = „E"$$

(semiklassische Theorie)

Materie ist quantisiert.

2.) Zweiniveausystem $l = 1,\ m = 2$

$\vec{d}_{lm} = \langle l | q\vec{r} | m \rangle \neq 0$ unter Beachtg. d. Auswahlregeln

$\Delta m = 0, \pm 1$ (H Atom)

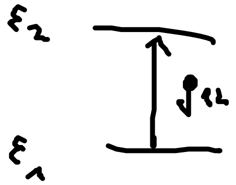
$\vec{d}_{12} = \vec{d}_{21} = \vec{d}$ = reell

$\vec{d}_{11}$ und $\vec{d}_{22} \neq 0$  z.B. an Oberflächen $\neq 0$

→ sonst 0

$$\vec{d}_{lm} = \int d^3r\ \varphi_l^*(\vec{r})\ q\vec{r}\ \varphi_m(\vec{r})$$

$$\boxed{\begin{aligned} \dot{\rho}_{12} &= i\left(\omega_{12} - \omega(t)\right)\rho_{12} + i\,\Delta\,\Omega(t) \\ \dot{\Delta} &= -i\,2\,\Omega(t)\left(\rho_{21} - \rho_{12}\right) \end{aligned}}$$



; $\underbrace{\omega_{12} = \omega_1 - \omega_2}_{\text{Oszillation}}$, $\underbrace{\omega(t) = \Omega_{22}(t) - \Omega_{11}(t), \quad \Omega_{11} = \frac{\vec{d}_{11}\cdot\vec{E}(t)}{\hbar}, \ \Omega_{22} = \frac{\vec{d}_{22}\cdot\vec{E}(t)}{\hbar}}_{}$

zeitl. Modulation d. Übergangsfrequenz

analog. zu Störungstheorie QM I

$\Delta = \rho_{11} - \rho_{22}$ Inversion : $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$

Besetzungswahrscheinlichkeitsdifferenz

$\Delta = 1 \rightarrow$ El ist unten

$\Delta = -1 \rightarrow$ El ist oben

$\Delta = 0 \rightarrow$ El ist 50% unten und mit 50% oben

$\Omega = \Omega(t) = \frac{E d}{\hbar}$ Rabifrequenz, treibt Dynamik
wirft Oszillator an

$\Delta = \Delta(t)$, $\rho_{12} = \rho_{12}(t)$

Δ wird durch Übergangsamplitude u. E-Feld (Ω) getrieben

Bemerkung: völlig analog zu Lasergleichungen

Anfangsbedingg. (vor E-Feld anschalten)

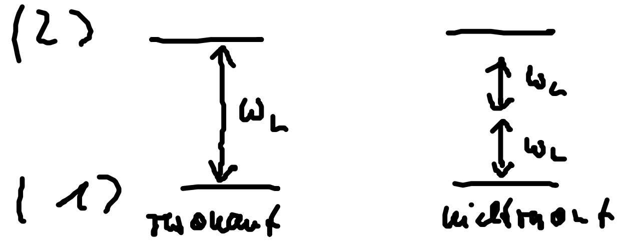
$\rho_{22} = 0$

$\rho_{11} = 1$

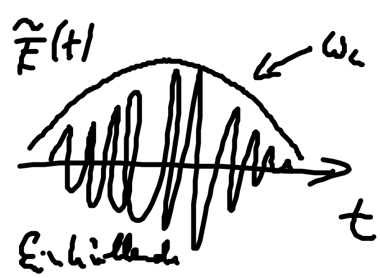
$\rho_{12} = 0$

3. Nichtresonante Nichtlinearitäten

$\omega_L \approx |\omega_{12}|$ $\qquad$ $\omega_L \ll |\omega_{12}|$



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



$$\Omega(t) = \frac{\vec{d}\cdot\vec{E}(t)}{\hbar} = \frac{d\,\tilde{E}(t)}{\hbar}\cos(\omega_L t)$$

$(|\vec{d}_{12}| = |\vec{d}_{21}| = d$

nehme $\vec{d} \parallel \vec{E}$ an

analog $\vec{d}_{11}, \vec{d}_{22}$

$$w(t) = \frac{d_{22}-d_{11}}{\hbar}\,\tilde{E}(t)\cos(\omega_L t)$$

von Neumann reihe f. ZNS: Feld bei $-\infty$ ausschalten

Dämpfg. d. Oszillators

$\dot{\rho}_{12} = i\omega_{12}\rho_{12} - \gamma\rho_{12}$

$$\rho_{12}(t) = \underbrace{\rho_{12}(-\infty)}_{=0} + \int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)(t-t')}\left(\Omega(t') + w(t')\rho_{12}(t')\right)$$

inhomogene Lösung

$$\Delta(t) = \underbrace{\Delta(-\infty)}_{1} + 4\int_{-\infty}^{t} dt'\,\Omega(t')\,\mathrm{Im}\left(\rho_{12}(t')\right)$$

die rechte Seite sind von ρ_{12}, Δ selbst abhängig

(nur implizite Lösung)

aber: Iteration zugänglich f. Störung Ω, $w(t)$

0. Näherung:

$$\rho_{12}(t) = 0\,, \quad \Delta = 1$$

1. Ordnung in E-Feld „lineare Optik“

1. Näherung

$$\rho_{12}^{(1)}(t) = i\int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)(t-t')}\,\Omega(t') + 0$$

$$\Delta^{(1)}(t) = 1$$

2. Näherung.

$$\rho_{12}^{(2)}(t) = \rho_{12}^{(1)}(t) + i\int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)(t-t')}\, \omega(t')\, \underline{\underline{\rho_{12}^{(1)}(t')}}$$

$$\left.\begin{array}{l} \text{in } \rho_{12}^{(1)} \sim \Omega \; \} \; E \\ \phantom{\text{in }} \rho_{12}^{(2)} \sim \omega \; \} \; E \end{array}\right\} \; \cancel{E^2}$$

quadratisch im E-Feld!

$$\text{betrachte } \underline{\underline{\rho_{12}^{(1)}(t)}} = \int_0^{\infty} ds\, \underbrace{e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}}_{\text{schnell schwingend}}\, \underbrace{\Omega(t-\cancel{s})}_{\sim\cos(\omega_L t)}$$

kann aus Integral rausgezogen werden

$$(s = t - t')$$

$$\rho_{12}^{(1)}(t) \approx \underbrace{i\int_0^{\infty} ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}}_{i\frac{-1}{i\omega_{12}-\gamma} \approx -\frac{1}{\omega_{12}} \quad \gamma\to 0}\, \Omega(t)$$

$$\left.\rho_{12}^{(2)}\right|_{\text{mitteln}} = i\int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)(t-t')}\, \omega(t')\, \rho_{12}^{(1)}(t')$$

$$= i \int_0^\infty ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\, \omega(t-s)\, \frac{\Omega(t-s)}{-\omega_{12}}$$

in ω und Ω steht $E(t)$

$$E^2(t) = \tilde{E}^2(t)\cos^2(\omega_L t)$$

$$= \tilde{E}^2(t)\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos(\underline{\underline{2\omega_L}} t)\right)$$

Zweite Harmonische
Zweiphoton Absorption

$$\rho_{12}^{(2)}(t)\Big|_{ue} = -\frac{i}{\omega_{12}}\int_0^\infty ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\,\tilde{\Omega}^2(t-s)\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos(2\omega_L(t-s))\right)$$

optische Gleichrichtung

$$\tilde{\Omega}^2 = \frac{d_{22}-d_{11}}{\hbar}\tilde{E}(t-s)\cdot\frac{d\,\tilde{E}(t-s)}{\hbar}$$

Detektion im Fernfeld

$$\vec{E}(\vec{r},t)\Big|_{\text{Quelle}} \simeq -\frac{\mu_0}{4\pi}\int d^3r'\, \frac{\ddot{\vec{P}}\left(\vec{r}\,',\, t - \frac{|\vec{r}-\vec{r}\,'|}{c}\right)}{|\vec{r}-\vec{r}\,'|}$$

ρ_{12}

$P \sim \delta(\vec r)\, \rho_{12}(t)$

$$\boxed{\simeq \frac{\rho_{12}\left(t - \frac{r}{c}\right)}{r}}$$

wird im Fernfeld nachgewiesen

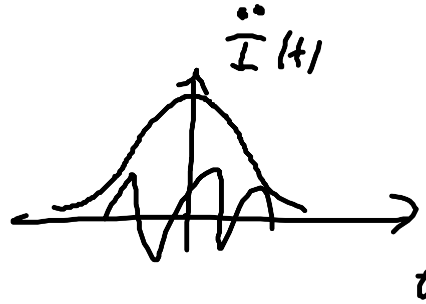
a) optische Gleichrichtg.

$$\rho_{12}^{(2)}\Big|_{OG} = -\frac{i}{\omega_{12}} \int_0^\infty ds\, e^{\overset{\text{schnell}}{(i\omega_{12}} - \gamma) s}\, \overset{\text{langsam}}{\frac{\tilde\Omega^2(t-s)}{2}}$$

$$\approx \frac{\tilde\Omega^2(t)}{2\omega_{12}^2} \sim \tilde E^2(t)$$

Signal ist proportional zur Intensität

$\omega_L \longrightarrow$ Frequenz 0



$\Longrightarrow$ THz Erzeugg.

b) Zweite Harmonische

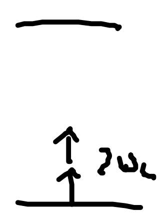
schnell $\qquad\qquad$ $\omega_L \ll |\omega_{12}|$

$$\rho_{12}^{(3)}(t)\Big|_{ZH} = -\frac{i}{\omega_{12}}\int_0^\infty ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\, \tilde{\Omega}^2(t-s)\,\frac{1}{2}\cos(2\omega_L(t-s))$$

$$= \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2\omega_{12}^2}\cos(\underline{\underline{2\omega_L}}\, t)$$

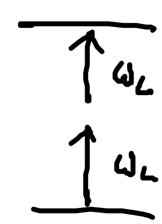
$$E\Big|_{\text{Fernfeld}} \propto \frac{\cos\left(2\omega_L\left(t-\frac{r}{c}\right)\right)}{r}$$

Es wird die eingestrahlte Welle mit ω_L in eine emittierte Welle mit $2\omega_L$ umgewandelt (Erzeugung der zweiten Harmonischen)



c) Zweiphotonabsorption

$|\omega_{12}| \approx 2\omega_L$



ohne Relaxg. (3. Ordng. in $\rho_{12}^{(3)}$)

$$\rho_{12}^{(3)}\Big|_{ZPA} = i\,\frac{\tilde{\Omega}^3(t)}{4\,\omega_{12}\,\omega_L\,\gamma}\, e^{-i\omega_L t} \sim E^3$$

und Wellengleichung. $\Box E = \alpha(E^2) E$

Absorptionskoeffizient wird Intensitätsabhängig

lineare Absorption: (Einphotonabsorption) $I = I_0 e^{-\alpha z} \rightarrow e^{-\alpha z}$

Zweiphotonabsorption: $I = \dfrac{I_0}{1 + \alpha z I_0} \rightarrow \dfrac{1}{z}$