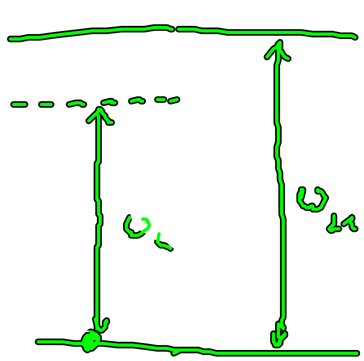
# 1.2. Nichtlinearität in schwach nichtresonanten Zweiniveausystemen

nichtresonante Anregung mit Puls $\delta_{12} = \omega_L - \omega_{21} \neq 0$



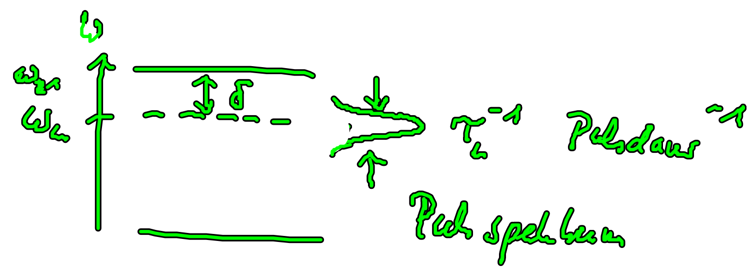

} auch im rotating wave Bereich, „nahresonant"

$$\frac{\delta_{12}}{\omega_L} \ll 1$$

$$\dot{\tilde\rho}_{12} = i\delta_{12}\tilde\rho_{12} + \frac{i}{2}\tilde\Omega_{21}\Delta - \gamma\tilde\rho_{12}$$

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

Kleiner Parameter: $\boxed{\varepsilon = \frac{1}{\tau_L \cdot \delta_{12}}}$




$$\varepsilon = \frac{\tau_L^{-1}}{\delta_{12}} \ll 1$$

Pulsspektrum um $\omega_L$ schmal gegen Verstimmung $\delta_{12}$

$$\tilde\rho_{12} = \frac{i}{2}\int^t dt'\, e^{i\delta_{12}(t-t')}\,\Delta(t')\,\tilde\Omega_{21}(t')$$

$-\infty$

Löst Dgl. $\dot{\tilde{\rho}}_{12}$ $\qquad \delta_{12} \to \delta$

$$s = t - t'$$

$$\tilde{\rho}_{12}(t) = \frac{i}{2} \int_0^\infty ds \, e^{i\delta s} \underbrace{\tilde{\Omega}_{21}(t-s)}_{\text{bekannt}} \underbrace{\Delta(t-s)}_{\text{unbekannt}}$$

$\delta, T_L$ sind im Integral, Taylorentw. bzgl. $s$

$$= \frac{i}{2} \int_0^\infty ds \, e^{i\delta s} \sum_n \frac{1}{n!} (-s)^n \left(\tilde{\Omega}_{21} \Delta\right)_t^{(n)}$$

$$= \frac{i}{2} \sum_n \frac{1}{n!} \int_0^\infty ds \, (-s)^n e^{i\delta s} \underbrace{\left(\tilde{\Omega}_{21} \Delta\right)_t^{(n)}}_{\text{pro Ableitg.}}$$

$\delta s \equiv x$

$$\underbrace{\left(\frac{-x}{\delta^n}\right)^n \qquad \left(\frac{1}{T_L}\right)^n}_{\varepsilon^n}$$

Entwicklg. in $s^n$ ist Entwicklg in $\varepsilon$ $\qquad i\delta \to i\delta - \gamma$

**Nullte Ordnung!**

$$\tilde{\rho}_{12}^{(0)} = \frac{i}{2} \Delta(t) \Omega(t) \underbrace{\int_0^\infty ds \, e^{(i\delta - \gamma)s}}$$

$$\frac{e^{(i\delta-\gamma)s}}{i\delta}\Big|_0^\infty = -\frac{1}{i\delta}$$

$$\tilde\rho_{12}^{(0)} = \frac{\Delta(t)}{2\delta}\,\tilde\Omega_{21}(t)$$

$$\dot\Delta^{(0)} = -i\left(\tilde\Omega_{21}\,\tilde\rho_{21}^{(0)} - \Omega_{12}\,\tilde\rho_{12}^{(0)}\right)$$

$$\underbrace{- c.c.}$$

$$\dot\Delta^{(0)} = 0$$

erster Term der Reihe bringt kein Beitrag

n=1 Term der Reihe:

$$\rho_{12}^{(1)} = \frac{i}{2}\underbrace{\int_0^\infty ds\,(-s)\,e^{(i\delta-\gamma)s}}_{\text{einfach}}(\Delta\Omega)'_t$$

$$= \frac{i}{2\delta^2}(\Delta\Omega)'_t \qquad \gamma\to 0$$

$$\dot\Delta^{(1)} = -i\left(\tilde\Omega_{21}\,\tilde\rho_{21}^{(1)} - \tilde\Omega_{12}\,\tilde\rho_{12}^{(1)}\right)$$

$$= -\frac{1}{2\delta^2}\left(\tilde\Omega_{21}\big(\tilde\Omega_{12}\Delta\big)' + \tilde\Omega_{12}\big(\tilde\Omega_{21}\Delta\big)'\right)$$

$$\Delta^{(0)} = 1 \qquad \Delta^{(0)} = 1$$

$$= -\frac{1}{2\delta^2}\frac{\partial}{\partial t}|\tilde{\Omega}_{12}|^2$$

$$\Delta^{(1)} = 1 - \frac{|\tilde{\Omega}_{12}|^2}{2\delta^2}$$

Konst. als Anfangsbeding.

niedrigster Beitrag

linear ist $\tilde{\rho}_{12}^{(0)}(t) = \frac{\Delta^{(1)}\Omega_{21}}{2\delta}$

$$\rightarrow \tilde{\rho}_{12} = \left(1 - \frac{|\tilde{\Omega}_{12}|^2}{2\delta^2}\right)\frac{\tilde{\Omega}_{21}}{2\delta}$$

$$\tilde{\rho}_{12}\Big|_{\substack{\text{schwache}\\ \text{Verstimmung}}} = \underbrace{\tilde{\rho}_{12}\Big|_{\text{linear}}}_{\frac{\tilde{\Omega}_{21}}{2\delta}} + \underbrace{\tilde{\rho}_{12}\Big|_{\text{nichtlinear}}}_{-\frac{1}{4\delta^3}|\tilde{\Omega}_{12}|^2\tilde{\Omega}_{21}}$$

**Bemerkungen:**

a) der nichtlineare Term geht mit $|\tilde{E}|^2\tilde{E}$ ~ Dipoldichte

**Kerr-Nichtlinearität**

b) Kerr-NL ist reell in $\tilde{\rho}_{12}$

nichtlinearer Brechzahleffekt:

moduliert die Brechzahl d. Mediums mit Intensität

**Brechzahl:** $n = n_0 + n_2 |\tilde{E}|^2$ (später)

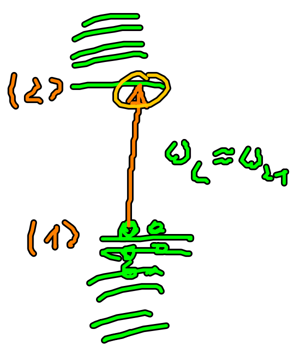
$n_0$: üblich

c) man spricht v. instantaner NL, weil $\tilde{\rho}_{12}(t)$ proportional $|\tilde{E}(t)|^2$

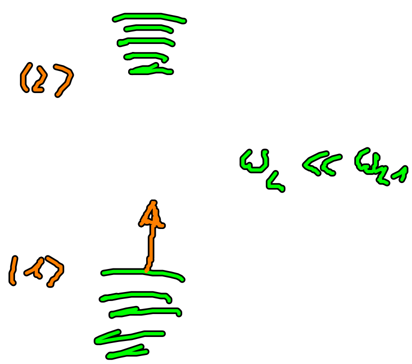
zur selben Zeit

## 1.3. Nichtresonante Nichtlinearitäten

**bisher**




**jetzt**




**Resonanz:**
- Rabioszillation
- Kerr-NL

RWA nicht mehr erfüllt:

$e^{i\omega_L t + i\omega_{21} t}$ weggelassen

Vgl. $e^{-i\omega_L t + i\omega_{21} t}$ mitgenommen kann man nicht mehr unterscheiden

## Modellsystem: ZNS

statische Dipole $\vec{d}_{11}, \vec{d}_{22}$, verschwinden in RWA, jetzt ernst nehmen!

$$\dot{\rho}_{12} = \Big(-i\omega_{12} + i\underbrace{\overbrace{(\Omega_{22}-\Omega_{11})}}_{\omega(t)}\Big)\rho_{12} + i\Delta\underbrace{\Omega_{21}(t)}_{\Omega(t)}$$

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

## formale Lösung d. Gl.

$$\rho_{12}(t) = i\int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)(t-t')}\Big(\underbrace{\omega(t')\rho_{12}(t')}_{\text{proportional zu } E^2 \text{ in niedrigster Ordnung}} + \underbrace{\Omega(t')\Delta(t')}_{\text{prop. } E \text{ in niedrigster Ordnung}}\Big)$$

## 0. Ordnung (kein E-Feld)

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

## 1. Ordnung (lineare Optik)

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

$$= i\int_{0}^{\infty} ds\; e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\,\underbrace{\Omega(t-s)}\,\Delta^{(0)}$$

Puls langsam gegen $e^{i\omega_{12} s}$ $\quad \omega_L \ll \omega_{12}$

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

$$\rho_{12}^{(1)} = \frac{-i}{i\omega_{12}-\gamma}\, \Omega(t)$$

$P(t) = \varepsilon_0 \chi E(t)$

folgt dem anregenden Licht analog

linear $+ \int ds$

<u>2. Ordnung.</u> (quadratisch NL)

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

$$+ \cancel{\frac{-i}{i\omega_{12}-\gamma}}\, \Omega(t)$$

linear (nicht diskutieren)

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

$\overset{!}{=}$ $\rho_{12}$ (optische Gleichrichtung, Frequenzverdopplung) (i)

$+ \rho_{12}$ (Zweiphotonabsorption) (ii)

2 Fälle (i), (ii)

$\omega_L \ll \omega_{21}$ $\qquad$ $2\omega_L = \omega_{21}$

in $\omega(t)$ $\Omega(t)$ tritt $E^2$ auf:

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

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

Nullfreq. $\qquad$ doppelte Frequenz

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

$$\tilde{\Omega}^2 \equiv \tilde{E}^2(t)\, d_{12}(d_{11}-d_{22})$$

a $\qquad$ b $\qquad$ c

SHG $\qquad$ TPA

$\omega_{21} \gg \omega_L$ $\qquad$ $\omega_{21} = 2\omega_L$

a) optische Gleichrichtg. (OG)

$$\rho^{(2)}(t)\Big|_{OG} \approx -\frac{i}{\omega_{12}}\int_0^\infty ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\,\tilde{\Omega}^2(t)$$

$$= \frac{1}{\omega_{12}^2} \cdot \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2}$$

optisches Feld nichtig, es entsteht ein statisches Feld über Quelle $\rho^{(2)}$ in Maxwellgl.

Kein optische Frequenz im Signal!

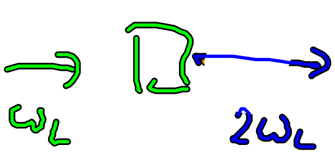
## b) Frequenzverdopplg. (SHG)

wieder $S = 0$ ist Quelle d. Zeitentwicklg.

und $\omega_{21} \gg \omega_L$

$$\rho_{12}^{(2)}(t)\Big|_{SHG} = \frac{\tilde{\Omega}(t)^2}{2\,\omega_{12}^2} \cos(2\omega_L t)$$

Dipoldichte oszilliert mit $2\omega_L$




sieht man in Abstrahlg. d. Probe: Fernfeld

$$\vec{E}(\vec{r},t) = -\frac{\mu_0}{4\pi} \int d^3r' \, \frac{\ddot{\vec{P}}\left(\vec{r}\,', t - \frac{|\vec{r} - \cancel{\vec{r}\,'}|}{c}\right)}{|\vec{r} - \cancel{\vec{r}\,'}|}$$

$$\vec{P} \sim \rho_{12}^{(2)}(t)$$

→ $\vec{E}$ ~ Kugelwelle mit doppelter Frequenz

Resonanzterm v. $e^{\pm i}$ der cos-Fkt

## c) Zweiphotonenabsorption

$$\rho_{12}^{(2)}\Big|_{TPA} = \frac{1}{i\omega_{12}}\,\tilde{\Omega}^2(t)\int ds\; e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\,\frac{1}{4}\,e^{-i2\omega_L(t-s)}$$

sowieso langsam

$\omega_{12} = -2\omega_L$

$\omega_{21} = 2\omega_L$

ist in Resonanz

$$= -\frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{4i\,\omega_{12}\,\gamma}\,e^{-i2\omega_L t}$$

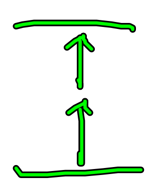
wieder SHG

3. Ordnung nötig:

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

imaginär

ist TPA-Prozeß



$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{E} = i\alpha \tilde{P} = -\beta \tilde{E}^3$$

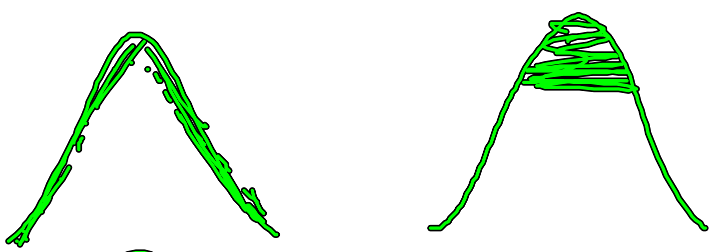
$$\boxed{\frac{\partial}{\partial z} I = -\beta_2 I^2}$$

2 Photon absorption $I(z) = \dfrac{I(z=0)}{1+\beta_2 I(z=0) z}$

$$\boxed{\frac{\partial}{\partial z} I = -\beta_1 I}$$

1 Photon absorption $I(z) = e^{-\beta_1 z} I(z=0)$

Für Vielphotonabsorption gilt nicht das Lambert-Beer-Gesetz, sondern u. a. Potenzgesetz $\frac{1}{z}$



① ②