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.e. nichtlineare Funktion von $E(t)$

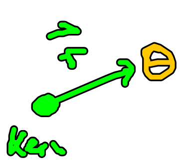
ist klassisch mechanisch durch nichtlineare Oszillatormodelle oder quantenmechanisch durch Dynamik der Wellenfunktion der Elektronen im Atom bestimmt (systematischer Zugang)

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

$|n\rangle$: atomare Eigenzustände z.B. H-Atom

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

$$H = \underset{\text{Atom}}{H_0} - q\vec{r}\cdot\vec{E}(t)$$

E an der Stelle d. Dipols

$$\underbrace{\phantom{-q\vec{r}\cdot\vec{E}}}_{\hat{=}\, q\phi} \quad \text{und} \quad -\nabla\phi = \vec{E}$$

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

1) einsetzen
2.) mit $\langle m|$ multiplizieren
3) Orthog. benutzen, $H_0|n\rangle = E_n|n\rangle$, $\hbar E_m = \omega_m$

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

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

Koeffizientengleichg. zu lösen:

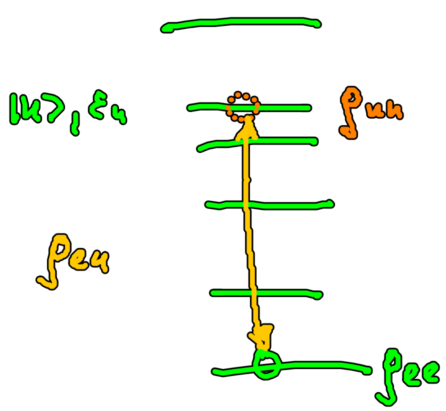
in Dipolnäherung sind also $c_n^*(t)c_m(t)$

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

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

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

($\hat{=}$ Dichtematrixgleichungen)



viele atomare Niveaus

$n = 1$ bis N

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

ρ_{en} : Übergangswahrscheinlichkeitsamplitude von e nach n (Interferenz)

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.

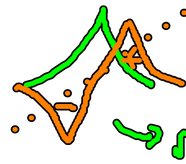
2.) Zweiniveausystem $l = 1,\ m = 2$

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

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

$$\vec d_{12} = \vec d_{21} = \vec d = \text{reell}$$

$\vec d_{11}$ und $\vec d_{22} \neq 0$

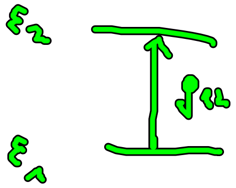


→ sonst 0

z.B. an Oberfläche $\neq 0$

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

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



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

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

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

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

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

<u>Bemerkung:</u> völlig analog zu Lasergleichungen

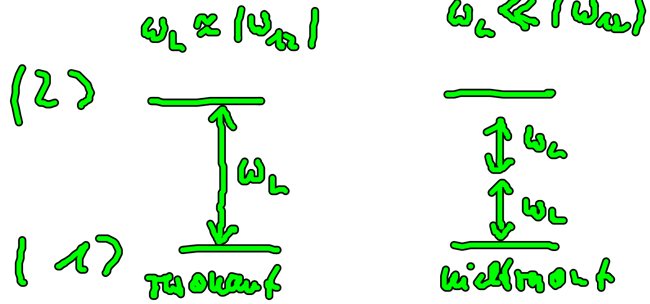
Anfangsbedingung (vor E-Feld anschalten)

$\rho_{22} = 0$

$\rho_{11} = 1$

$\rho_{12} = 0$

3. Nichtresonante Nichtlinearitäten



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

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

($|\vec{d}_{12}| = |\vec{d}_{21}| = d$
nehme $\vec{d} \parallel \vec{E}$ an
analog $\vec{d}_{11}, \vec{d}_{22}$

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

<u>von Neumann-Reihe f. ZNS:</u> Feld bei $-\infty$ ausgeschaltet

Dämpfg. d. Oszillators
$\dot{\rho}_{12} = i\omega_{12}\rho_{12} - \gamma\rho_{12}$

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

inhomogene Lösung

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

die rechte Seite sind von ρ_{12}, Δ selbst abhängig
(nur implizite Lösung)
aber: Iteration zugänglich f. Störung Ω, $\omega(t)$

<u>0. Näherung:</u>

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

1. Ordnung im E-Feld
„lineare Optik"

<u>1. Näherung</u>

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

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

2. Näherung:

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

$$\left.\begin{array}{l} \text{in } \rho_{12}^{(1)} \sim \Omega \\ \quad\ \rho_{12}^{(2)} \sim \omega \end{array}\right\} \begin{array}{l} E \\ E \end{array}\Bigg\} \ E^2 \quad \text{quadratisch im } E\text{-Feld!}$$

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

$(s = t-t')$

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

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

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

in ω und Ω steht $E(t)$

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

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

Zweiter harmonischer in der Zweiphoton Absorption

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

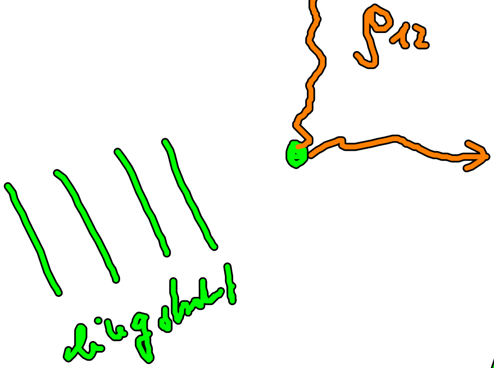
optische Gleichrichtung

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

Detektion im Fernfeld

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

ρ_{12}



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

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

wird im Fernfeld dann gemessen

a/ optische Gleichrichtg.

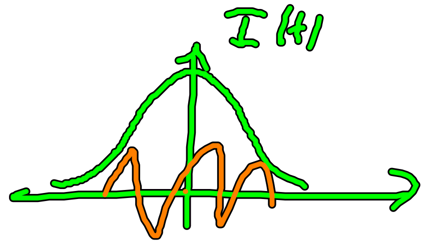
$$\rho_{12}^{(2)}\Big|_{OG} = -\frac{i}{\omega_{12}} \int_0^\infty ds\, \overset{\text{schnell}}{e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}}\; \overset{\text{langsam}}{\frac{\tilde\Omega^2(t-\cancel{s})}{2}}$$

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

Signal ist proportional zur Intensität

$\omega_L \rightarrow$ Frequenz 0

$\ddot I(t)$



$\Longrightarrow$ THz Erzeugg.

b) Zweite Harmonische

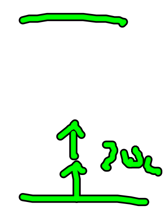
schnell $\qquad\qquad$ $\omega_L \ll |\omega_{12}|$

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

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

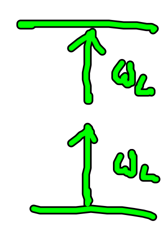
$$E\Big|_{\text{Fernfeld}} \propto \frac{\cos\left(2\omega_L\left(t-\frac{r}{c}\right)\right)}{r}$$

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

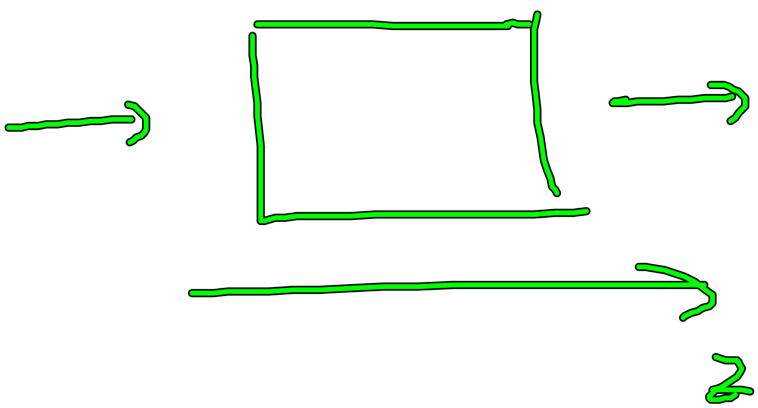
$$\rho_{12}^{(3)}\Big|_{2PA} = i\,\frac{\tilde{\Omega}^3(t)}{4\,\omega_{12}\,\omega_L\,\gamma}\, e^{-i\omega_L t} \sim E^3$$

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

Absorptionskoeffizient wird Intensitätsabhängig

lineare Absorption: (Einphotonabsorption) $\overline{I} = \overline{I}_0 e^{-\alpha z} \rightarrow e^{-\alpha z}$

Zweiphotonabsorption: $\overline{I} = \dfrac{\overline{I}_0}{1 + \alpha z \overline{I}_0} \rightarrow \dfrac{1}{z}$



$e^{-\alpha z}$

$\dfrac{1}{z}$