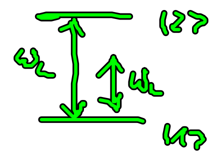
5. Nichtlineare Antwort

verschiedene Unterteilungen mögl., und weit. Feld:



a) resonante Wechselwirkg. Trägerfrequenz d. Lichts $\omega_L \simeq \Delta\omega_{atomar} \simeq \omega_{21}$

nichtresonante Wechselwirkg. — " — $\omega_L \neq \Delta\omega_{atomar} \simeq \omega_{21}$

b) Dielektrika (Atome, Moleküle, AL ...) $\rightarrow$ einzelne Niveaus

Elektronenflüssigkeit (Metalle, Plasmen ...) $\rightarrow$ kontinuierliche Niveaus

Grauzonen!

c) Störungstheorie in Feld $\vec{p} = \sum \alpha_n \vec{E}^n$

nichtstörungstheoretisch $\vec{p} = \vec{p}(\vec{E})$ als geschlossene Fkt.

Ziel: Formulierg. der Dipoldichte als Fkt. des E-Felds (nichtlinear)

+ Lichtausbreitung über Wellengleichung

Reihenfolge
- Niveausysteme (Atome)

  Zweiniveau, Dreiniveau, Vielniveau $\rightarrow$ Resonanz. $\rightarrow$ Nichtresonanz
- Elektronenflüssigkeiten $\rightarrow$ Resonanz $\rightarrow$ Nichtresonanz

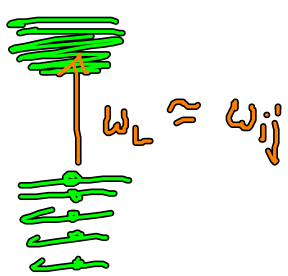
5.1. Nichtlinearitäten von Niveausystemen

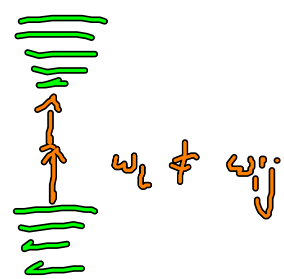
$$\vec{P} = \vec{P}(\rho_{ij})$$

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

Rabifrequenz $\qquad \Omega_{im} = \dfrac{\vec{E}(t)\cdot\vec{d}_{im}}{\hbar}$

resonant $\qquad\qquad$ **nichtresonant**





nach dem E-Feld:

→ es liegen „echte" Elektronbesetzg. ρ oben $\neq 0$ vor

→ liegen keine Elektronbesetzg vor, bei diesen E-Erhaltg. wird durch mehr Photonen wiederhergestellt

5.11. Resonante Nichtlinearitäten

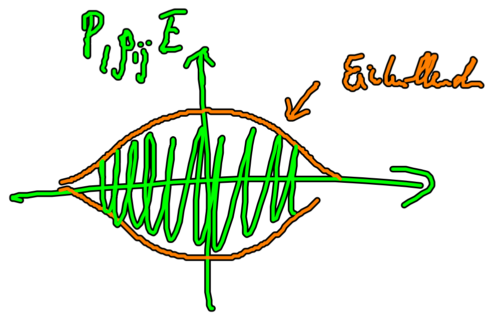
Rotating Wave Approximation (RWA) – Drehwellennäherung

$$\rho_{ij} = \tilde{\rho}_{ij}(t)\,\underbrace{e^{i\omega_{ij} t}} \longrightarrow \tilde{\rho}_{ij}(t)\, e^{-i\omega_L t}$$

f. $\omega_{ij} < 0$ (j, i)

lt. DM-Gleichung liegt diese Frequenz vor

langsame Amplitude, Theorie hier für ist im optischen Bereich ausreichend:



viel Oszillationen unter der Einhüllenden

RWA: a) $\omega_{ij} \simeq \omega_L$!

Voraussetzung. b) $\Omega, \Gamma, \gamma \ll \omega_{ij}$

Pulsdauer $\tau^{-1} \ll$

Quellterm: treibt an

$$\dot{\rho}_{ij} = i\omega_{ij}\rho_{ij} + X(t),$$ einsetzen:

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ij}(t) = i\underbrace{(\omega_{ij} + \omega_L)}_{\approx 0}\tilde{\rho}_{ij}(t) + \underbrace{X(t)\,e^{i\omega_L t}}_{\text{langsam, soll sein}}$$

$\omega_{ij} < 0$

Schwache Frequenz indiziert

$\delta_{ij} \hat{=}$ Detuning

Verstimmung.

Optische Frequenz entfallen

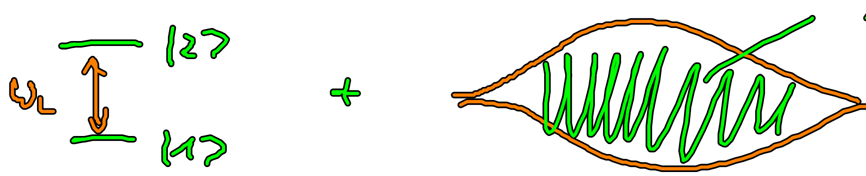
$$\tilde{X}\, e^{-i\omega_L t} \underbrace{e^{i\omega_L t}}$$

mitgenommen wenn langsam

$$\tilde{X}\, e^{+i\omega_L t} e^{+i\omega_L t} \to e^{2i\omega_L t}$$

$$\rho_{ij} \sim \underbrace{\int^t dt'\, e^{2i\omega_L t'}}_{\text{Kleiner Beitrag, mittelt sich raus}} \cdot \text{langsam}$$

5.11.1. Zweiniveausysteme



am Ort d. Dipols

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

Ansatz

$\Omega_{ii} = 0$ d.h. kein permanentes Dipolmoment

dazugeschrieben

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

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

$$\dot{\rho}_{22} = + \qquad -\Gamma(\rho_{22} - \rho^0_{22})$$

Anwendung der RWA

$$\rho_{12} = \tilde{\rho}_{12}(t)\, e^{-i\omega_L t}$$

$$\Omega_{12} = \frac{1}{2}\tilde{\Omega}_{12}(t)\, e^{i\omega_L t} + \frac{1}{2}\tilde{\Omega}^*_{12}(t)\, e^{-i\omega_L t}$$

komplex, weil später dafür Wellengleich. aufgeschrieben (komplexe Wellengleichg.)

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

mitnehmen

$e^{2i\omega_L t} \to$ weglassen

$$\dot{\tilde{\rho}}_{12} = i\delta_{12}\tilde{\rho}_{12} - \frac{i}{2}\tilde{\Omega}_{21}(\rho_{11} - \rho_{22}) - \gamma\tilde{\rho}_{12}$$

langsame Einhüllendengleichg. f. die Übergangsamplitude

analog: Besetzungen: $\rho_{11}, \rho_{22} \to$ von sich langs. Größen, denn $\omega_{11}, \omega_{22} = 0$

$\to$ auf rechter Seite: nur langsame Amplituden

$$\dot{\rho}_{11} = -\frac{i}{2}\left(\tilde{\Omega}_{21}\tilde{\rho}_{21} - \tilde{\Omega}_{12}\tilde{\rho}_{12}\right) - \Gamma(\rho_{11} - \rho_{11}^0)$$

$$\dot\rho_{22} = +\frac{i}{2} \qquad\qquad\qquad\qquad - \Gamma\left(\rho_{22}-\rho_{22}^{0}\right)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{11} = -\frac{d}{dt}\rho_{22} \quad , \text{wenn } \Gamma \to 0$$

$$\rightsquigarrow \rho_{11}+\rho_{22} = 1 \quad \to \rho_{11}(\rho_{22})$$

a) Ultrakurzzeitregime $\tau \ll \gamma^{-1}, \Gamma^{-1}$

Pulsdauer extrem kurz gegen alle Materialkonstanten

b) Ratengleichungsregime $\tau \gg \gamma^{-1}$

$\tau \ll \Gamma^{-1}$

Pulsdauer lang gegen Dekohärenzzeit

falls $\Gamma = 0$, $\gamma \neq 0$ → „pure dephasing"

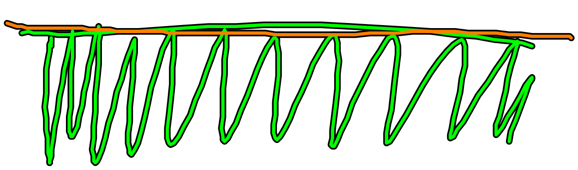
„reine Dekohärenz"

$\gamma \gg \Gamma$

Phasenzerstörungsprozesse in ρ_{12} sind immer effektiver als Elektronentransfer u. Besetzung.

c) stationäres Regime $\tau \gg \gamma^{-1}, \Gamma^{-1}$

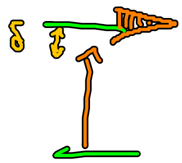
Sehr langer Puls, bzw. Konstanter Puls



$\tilde\Omega$ = konst

d) Verstimmung. – adiabatisches Folgeregime

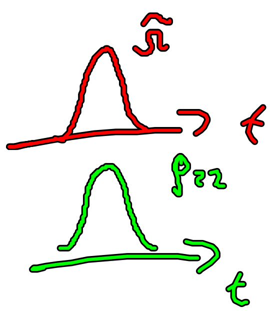
$\delta \neq 0$



$\delta \gg \gamma, \Gamma, \tau^{-1}$

Dynamik wird d. Amplitude d. Pulses versklavt

$\rho_{12}, \rho_{22} \longrightarrow \sim E, E^3$



a) Ultrakurzzeitregime

$\delta_{12} = 0$, Keine Relaxation $\gamma, \Gamma \to 0$

// $\dot{\tilde\rho}_{12} = +\frac{i}{2}\tilde\Omega_{21}\underbrace{(\rho_{11} - \rho_{22})}$

Δ Inversion (Besetzungszahldifferenz)

// $\underbrace{(\rho_{11} - \rho_{22})}_{\Delta}^{\cdot} = -i(\tilde\Omega_{21}\tilde\rho_{21} - \tilde\Omega_{12}\tilde\rho_{12})$

reelles Feld angenommen $\tilde\Omega_{ij} = \hat\Omega$

Ansatz: $\rho_{12} = i\rho$

Amplitude $\dot{\rho} = \frac{1}{2}\tilde{\Omega}\Delta$, Inversion $\dot{\Delta} = -i\tilde{\Omega}(-2i\rho) = -2\tilde{\Omega}\rho$

$\tilde{\Omega} = \tilde{\Omega}(t)$ Puls!

neue Koordinate: $\theta = \int_{-\infty}^{t} dt'\,\tilde{\Omega}(t') = \theta(t)$, $\dot{\theta} = \tilde{\Omega}(t)$

$\left(\frac{d}{dt} \to \frac{d}{d\theta}\frac{d\theta}{dt}\right)$

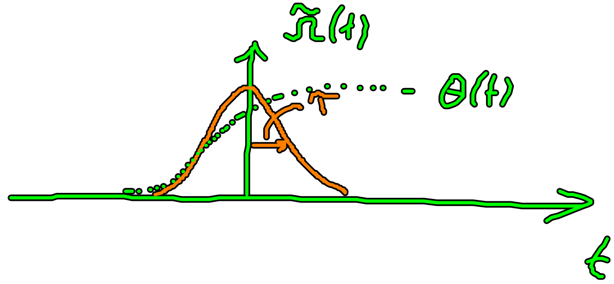
$\rho' = \frac{1}{2}\Delta$, $\Delta' = -2\rho$, $\;' : \partial_\theta$

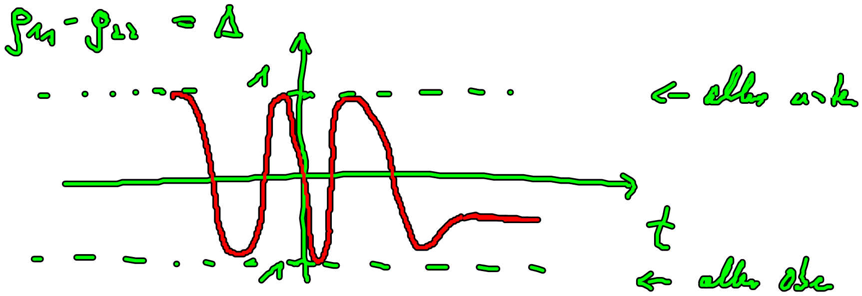
$\Delta'' = -2\rho' = -\Delta$

zu lösen: $\Delta'' = -\Delta \to \Delta = \cos\left(\theta = \int_{-\infty}^{t} dt'\,\tilde{\Omega}(t')\right)$

$\Delta(t=-\infty) = 1$

$$\rho_{12} = \frac{i}{2}\sin\underbrace{\left(\int_{-\infty}^{t} dt'\,\tilde{\Omega}(t')\right)}_{\text{nichtlinear!}} \to \frac{\partial}{\partial\xi}\Omega \sim \sin\left(\int_{-\infty}^{t}\Omega(t')dt'\right)$$





Rabioszillation : aufgrund d. (Fermioncharakters) der Elektronen :

bekommt man $\rho_{11}, \rho_{22} : [0,1]$

→ Wechselspiel v. induzierter Absorption und Emission

(ersten Teil läuft vor)

macht Sinn wegen d. Kosinus von $\Theta = 0\pi, \frac{\pi}{2}, \pi, 2\pi$ Pulse zu sprechen

und $\Theta = \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \, \tilde{\Omega}(t')$

↗ Pulsflächen

$\frac{\pi}{2}$ - Puls : $\Delta = 1 \rightarrow \Delta = 0 \Longrightarrow \rho_{11} = \rho_{22}$ $= \frac{1}{2}$ gleichverteilt

π - Puls : $\Delta = 1 \rightarrow \Delta = -1 \Longrightarrow$ alle nach oben $\rho_{22} = 1$

2π - Puls : $\Delta = 1 \rightarrow \Delta = 1 \Longrightarrow$ ein voller Zyklus

b) Rategleichungen: Sättigungseffekt

$\delta_{12} = 0, \quad \gamma \gg \tilde{\Omega}, \quad \partial_t \rho_{12} \ll \gamma$

↑ Phasenrelaxation

Abklingen von $\vec{P}, \tilde{\rho}_{12}$

$$\cancel{\dot{\rho}_{12}} + \gamma \rho_{12} = \frac{i}{2} \hat{\Omega}_{21} \Delta \longrightarrow \rho_{12} = \frac{i}{2} \frac{\Omega_{21} \Delta}{\gamma}$$

stationäre Lsg.

einsetzen

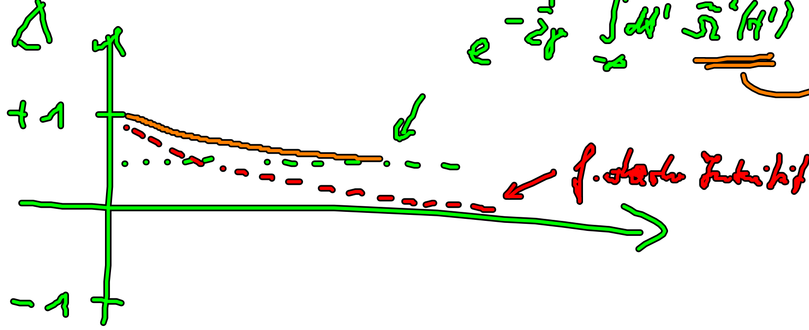
$$\dot{\Delta} = -\frac{i}{2} \left(\hat{\Omega}_{21} \hat{\rho}_{21} - \hat{\Omega}_{12} \hat{\rho}_{12} \right) = -\frac{1}{2} |\Omega_{12}|^2 \frac{\Delta}{\gamma}$$

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

Die Dipoldichte folgt dem Feld $\rho_{12} \sim \Omega \Delta$ (vorher a) $\rho_{12} \sim \sin \int dt' \Omega(t')$)

Feld

Die Inversion wird gesättigt:



$$e^{-\frac{1}{2\gamma} \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \, \underline{\tilde{\Omega}^2(t')}}$$

→ Anregung ist proportional zu Energie

$$\int dt' \, I(t') = \int dt' \, |\tilde{\Omega}|^2(t')$$

↑ Intensität

man kann die ZNS nicht in diesen

Linien umbesetzen, da maximal

Erreichbar ist $\Delta = 0$, also gleichbesetzg.

Sättigg: System kann nicht in eine Inversion $\Delta < 0$ getrieben werden

für Vollbeset. : $\rho_{12} = \frac{i}{2} \frac{\Omega_{21}}{\gamma} e^{-\frac{1}{2\gamma} \int_{-\infty}^{t} dt' |\tilde{\Omega}_{12}(t')|^2 dt'}$

c) stationäres Regime

$\dot{\rho}_{12} = 0, \; \dot{\Delta} = 0$ suche die stationäre Lösung

$\partial_t \ll \Gamma, \gamma$

stationär: $\rho_{12} = \frac{i}{2} \frac{\Omega_{21} \Delta}{\gamma}, \quad \Gamma(\Delta - \Delta_0) = -\frac{1}{2} |\Omega_{12}|^2 \frac{\Delta}{\gamma}$

nach Δ umstellen, in ρ_{12} einsetzen

$$\rightarrow \quad \Delta = \frac{\Delta_0}{\left(1 + |\tilde{\Omega}_{12}|^2 / 2\gamma\Gamma\right)}$$

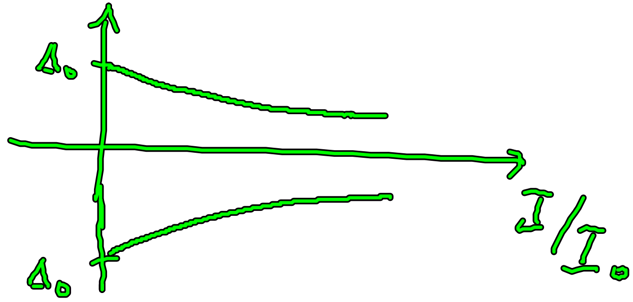
$$\rho_{12} = \frac{i}{2\gamma} \Omega_{21} \frac{\Delta_0}{\left(1 + |\Omega_{12}|^2 / 2\gamma\Gamma\right)}$$

$$I / I_0 = \frac{|\Omega_{12}|^2}{2\gamma\Gamma}$$

nichtlinear

I_0 : Sättigungsintensität $= 2\gamma\Gamma$

Δ



durch die Wahl der Intensität kann man die Inversion im ZNS einstellen, Testfeld findet dann eine verminderte / erhöhte Inversion.