(ii) spektrales Lochbrennen

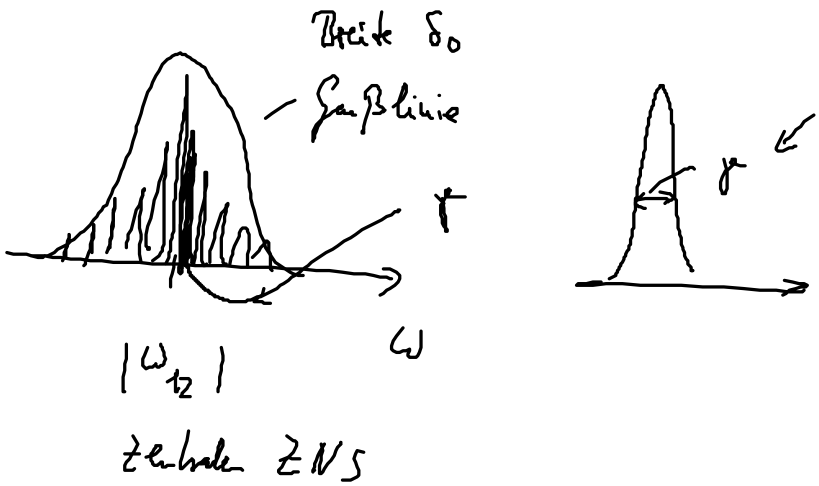
Frage: kann man γ (Dephasierungsrate von ρ_{12}) in einer inhomogenen Verteilung von ZNS bestimmen?

linear Spektrum aus: $\dot{\rho}_{ij} = -\gamma + i\delta_{ij}\rho_{ij} + \frac{i}{2}\tilde{\Omega}(t)\Delta^0_{ij}$

$\rho_{ii} = 1,\ \rho_{jj} = 0$

$$\rho_{ij}(\omega) = \frac{i}{2}\tilde{\Omega}(\omega)\frac{\Delta_{ij}}{i\omega + \gamma - i\delta_{ij}}$$

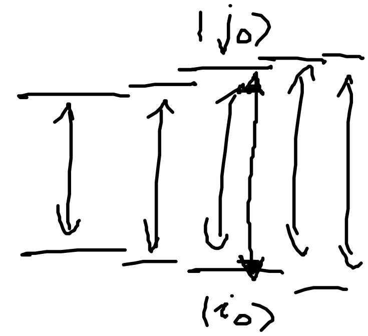
$$\downarrow \quad \mathrm{Im}(\chi) = \frac{d^2 n_0}{\varepsilon_0}\sum_{\delta}\frac{\Delta_{ij}\,\gamma}{\gamma^2 + (\omega - \delta_{ij})^2}$$



kann man γ bestimmen

$$\Delta_{ij}^0 = \rho_{ii} - \rho_{jj} \Big|_{\text{linear Optik}} = 1 \quad \forall \text{ Übergänge}$$

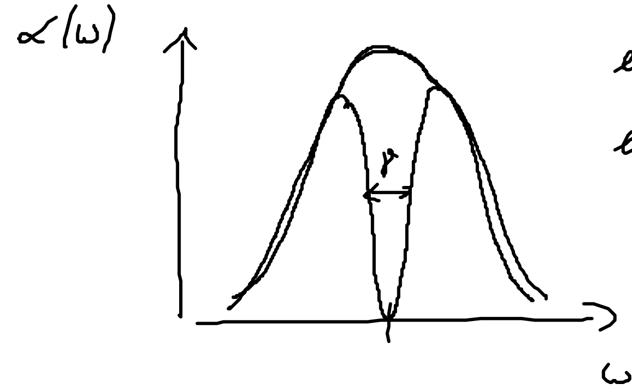
$\downarrow$



Annahme: für einen Übergang $\delta_{ij} = 0$

könnte man $\Delta_{ij}^0 = 0 \rightarrow \rho_{ii_0} = \rho_{jj_0}$

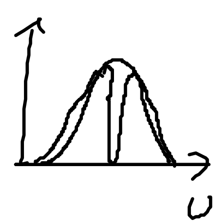
dann würde man folgendes $\alpha(\omega) \sim \mathrm{Im}\,\chi$ erhalten:



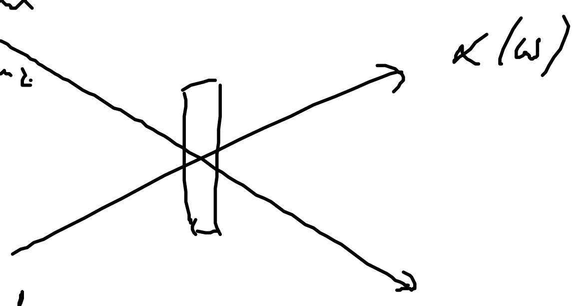
es wird 1 Übergang herausgeschnitten, es entsteht ein spektrales Loch mit der Breite $\approx 2\gamma$

$\rightarrow$ man kann γ bestimmen

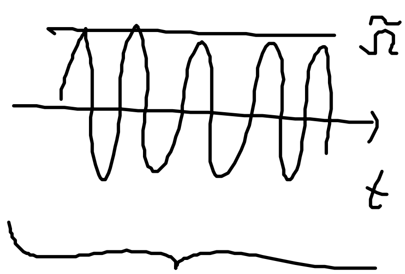
<u>experimentelle Realisierung:</u>



Pumpstrahl mit Frequenz $\delta_{ij} = 0$



Testpuls bestimmt $\alpha(\omega)$



≙ stationärer Grenzfall (siehe ZNS, Fall c: stationäre Lsg.)

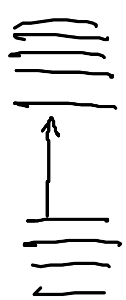
$I_{Pump} \simeq \tilde{\Omega}^2 \to$ groß

$\to \Delta_{j_0 j_0} = 0$

Das ist ein Beispiel bei dem man im Rahmen der NLO an mehr Information als mit linearer Optik gelangt.

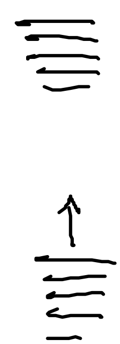
5.12. Nichtresonante Nichtlinearitäten

<u>bisher</u>:



$\omega_L \approx \omega_{ij}$

<u>jetzt</u>



$\omega_L < \omega_{ij}$ $(\ll)$

Multiphotonabsorption
Höhere Harmonische
Optische Gleichrichtg.

<u>Modellsystem</u>: Zweiniveausystem, jetzt darf man <u>keine</u> RWA (Drehwellennäherg.) machen.

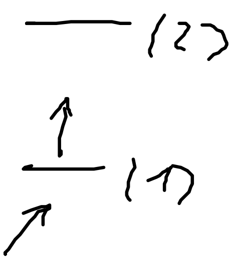
früher RWA: $\cancel{e^{i2\omega_L t}}$ gegen 1 für Zweiphotonabsorption

2. Harmonische, ...

muß man alle Schwingg. mitnehmen

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

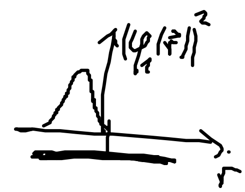
statische Dipolmomente in Materialien ohne Inversionssymmetrie



statische Dipol d_{11}

$$\Omega_{21} = \frac{d_{21} E(t)}{\hbar}$$

$$\Omega_{11} = \frac{d_{11} E(t)}{\hbar} \qquad \text{analog } d_{22}$$



$\Downarrow$

$d_{11} \neq 0$

$= \int d^3 \varphi_1(r) \vec{r}$

Zweiphotonprozesse schon in einfachster Näherung

$$\Delta = \Delta_0 = 1$$

Die gebrochene Inversionssymmetrie führt zu einer Nichtlinearität 2. Ordng.: $\rho_{12}(\Omega_{11} - \Omega_{22}) \Longrightarrow$ 2. Ordng.

$\sim \tilde{\Omega}$

Wenn man Δ auch mitrechnet bekommt man

Dreiphotonabsorption, 3. Harmonische.

reelles Feld $\Omega_{21} = \Omega(t)$

$\delta\Omega = (d_{22} - d_{11}) \frac{E(t)}{\hbar}$

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

formale Lösung von ρ_{12}:

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

<u>0-te Ordnung:</u> $\rho_{12}^{(0)} = 0, \quad \Delta^{(0)} = \Delta_0 = 1$

$|2\rangle$

$|1\rangle$

<u>1.-te Ordnung:</u>

$$\rho_{12}^{(1)}(t) = i \int_{-\infty}^{t} dt' \, e^{(i\omega_{12} - \gamma)(t-t')} \underbrace{\Omega(t')}_{\text{schwingt } \omega_L \ll |\omega_{12}|} \Delta_0^{=1}$$

$$\approx i \int_0^{\infty} ds \, e^{(i\omega_{12} - \gamma)s} \, \Omega(t - \cancel{s}) \Delta_0$$

weil Ω langsam schwingt gegen ω_{12}

(kann man besser machen, hier aber nur Prinzip)

$$\frac{\partial \Omega}{\partial t} < \Omega \omega_{12}$$

$$\rho_{12}^{(1)}(t) = \frac{-1}{i\omega_{12} - \gamma} \Omega(t)$$ folgt direkt dem Feld

2.-te Ordng.

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

$$\frac{1}{i\omega_{12} - \gamma} \int_0^\infty ds \, e^{(i\omega_{12} - \gamma)s} \overbrace{\underbrace{\delta\Omega(t-s)\Omega(t-s)}_{E^2(t-s)}}^{\hat{\Omega}^2(t)}$$

$$E^2(t) = \tilde{E}^2(t) \cos^2(\omega_L t) = \hat{\tilde{E}}^2(t) \left(\underbrace{\frac{1}{2}}_{\substack{\text{gar kein} \\ \text{Frequenz (a)}}} + \frac{1}{2} \cos(\underbrace{2\omega_L t}_{\text{doppelte Frequenz (b)}}) \right)$$

(i) Frequenzverdopplung und optische Gleichrichtung

a) optische Gleichrichtung

b) Frequenzverdopplung (2. Harmonische)

wie könnte man solch Signal beobachten?

klassische Elektrodynamik

$$\vec{E}(\vec{r},t) \propto \int d^3r' \, \frac{\ddot{\vec{P}}\left(\vec{r}', t - \frac{|\vec{r}-\cancel{\vec{r}'}|}{c}\right)}{|\cancel{\vec{r}'}-\vec{r}|} \propto \underbrace{\ddot{\rho}_{12}\left(t-\frac{r}{c}\right)}_{\text{Dynamik bestimmt Fernfeldemission}}$$

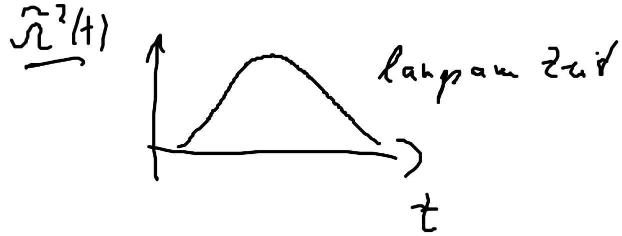
Fernfeld genähert

$|\vec{r}'| \ll |\vec{r}|$

a) optische Gleichrichtung

$$\rho_{12}^{(2)}\Big|_{OG} = -\frac{1}{(i\omega_{12}-\gamma)^2}\,\frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2} \underset{\gamma\to 0}{\simeq} \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2\omega_{12}^2}$$

$\tilde{\Omega}^2(t) \simeq$ Intensitätseinhüllende



$$\ddot{\rho}_{12}\Big|_{OG} \propto \ddot{\tilde{\Omega}}^2(t)$$

die emittierte Frequenz ist nicht optisch, sondern wird durch $I(t)$ bestimmt.

⟹ Erzeugg. von THz Wellen (meV)

Aus einem optischen Puls wird ein „statisches" Feld gemacht ≙ optische Gleichrichtung

b) Zweite Harmonische (Frequenzverdopplung)

$$\rho_{12}^{(2)}(t)\Big|_{FV} = -\frac{1}{(i\omega_{12}-\gamma)^2}\,\tilde{\Omega}^2\,\frac{\cos(2\omega_L t)}{2} = \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2\omega_{12}}\cos(2\omega_L t)$$

$\cos(2\omega_L t)$ $\qquad\qquad$ $\gamma \to 0$

$\delta \to 0$

im Fernfeld wird die Welle:

$$E\Big|_{Fernfeld} \propto \ddot{\rho}_{12}\left(t-\frac{r}{c}\right) \propto \cos\left(2\omega_L\left(t-\frac{r}{c}\right)\right)$$

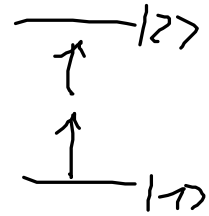
Im Fernfeld findet man eine Welle der doppelten Frequenz

$\omega_L \longrightarrow [\;] \xrightarrow{2\omega_L}$ „Frequenzverdopplung"

Emission der zweiten Harmonischen

<u>bisher</u>: $\omega_L \ll |\omega_{12}|$

(ii) Zweiphotonabsorption $\quad 2\omega_L \approx |\omega_{12}|$



$$\rho_{12}^{(2)} = \frac{1}{(i\omega_{12}-\gamma)} \int_0^\infty ds\; e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\; \underline{\delta\Omega(t-s)\,\Omega(t-s)}$$

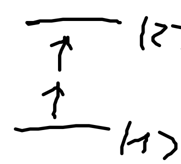
Terme heraussuchen, die mit $e^{-i2\omega_L(t-s)}$

aus $\cos(2\omega_L t)$ kommt das:

$\cos(2\omega_L t) = \frac{1}{2}\left(e^{i2\omega_L t} + e^{-i2\omega_L t}\right)$

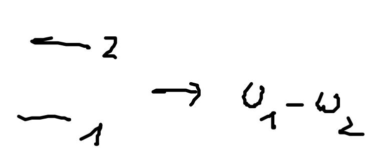
$$= \frac{1}{(i\omega_{12}-\gamma)} \int_0^\infty ds\, e^{(\underline{\underline{i\omega_{12}}}-\gamma)s}\; \underline{\frac{1}{4}\tilde{\Omega}^2(t-\cancel{s})\, e^{\underline{\underline{-i2\omega_L(t-s)}}}}$$

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



$$= \frac{1}{(i\omega_{12}-\gamma)} \underbrace{\int_0^\infty ds\; e^{-\gamma s}}_{\frac{1}{\gamma}}\; \frac{1}{4}\tilde{\Omega}^2(t)\; e^{-i2\omega_L t}$$

$\omega_{12} + 2\omega_L = 0$



$$\rho_{12}^{(2)}\Big|_{ZPA} = \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{4i\omega_{12}\gamma}\; e^{-i2\omega_L t}$$

Beitrag zur 2. Harmonischen

eigentlich $e^{-i\omega_L t}$ nötig → noch 1 Ordnung höher

ohne Rechnung.

3. Ordnung im Feld:

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

Absorption

Wellengleichung f. langsame Amplitude:

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} \tilde{\Omega}(t) = i\alpha \, \tilde{\rho}_{12} \qquad \text{(Vorgriff)}$$

Quelle (ρ_{12})

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} \tilde{\Omega}(t) = -\beta \, \tilde{\Omega}^3(t)$$

β ist eine Konstante

$$\tilde{\Omega}(t) \frac{\partial}{\partial \zeta} \tilde{\Omega}(t) = -\beta \, \tilde{\Omega}^4(t)$$

$$\frac{1}{\xi}\,\partial_\xi \underbrace{\tilde\Omega^2(t)}_{} = -\beta\,\tilde\Omega^4(t)$$

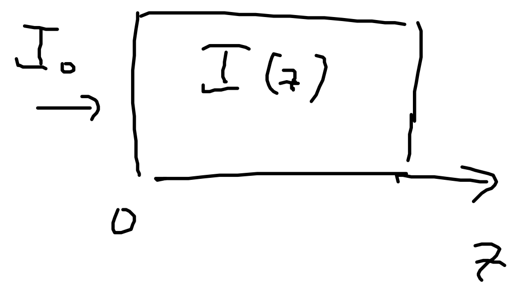
2 Photon absorption

$$\partial_\xi\, I(t) = -2\beta\, I^{2}(t) \quad , \quad \xi = z$$

$$\left(= -\tilde\beta\, I \quad \text{für Lambert Beer gesetz:} \quad I = I_0\, e^{-\hat\beta z} \right)$$

$$\frac{dI}{I^2} = -2\beta\, dz$$

$$-\left(\frac{1}{I} - \frac{1}{\underbrace{I(z=0)}_{I_0}}\right) = -2\beta z$$



$$\boxed{I = \frac{I_0}{1+2\beta z I_0}} \qquad \boxed{I = I_0\, e^{-\tilde\beta z}}$$

Die Dynamik der Ein und Zweiphotonabsorption ist deutlich verschieden, insbesondere hängt bei ZPA die Lösg. ab von I_0 und ist ein Potenzgesetz $z \to \infty: \frac{1}{z}$.

Wenn Puls: $I_0 = I_0(t)$