(ii) spektrales Lochbrennen

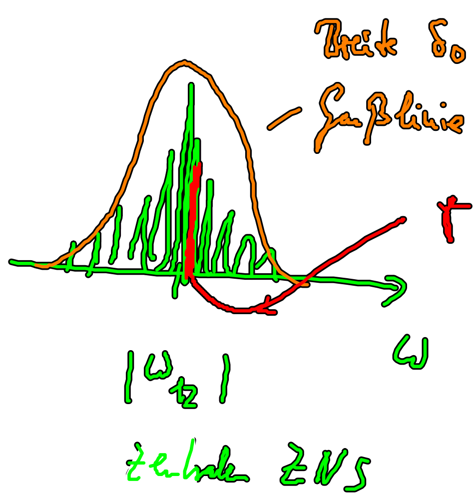
Frage: kann man γ (Dephasierungsrate von ρ_{12}) in einer inhomogenen Verteilung von ZNS bestimmen?

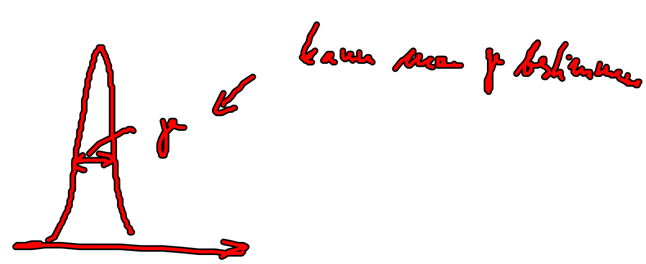
lineares Spektrum aus: $\dot{\rho}_{ij} = -\gamma + i\delta_{ij}\rho_{ij} + \frac{i}{2}\tilde{\Omega}(t)\Delta^0_{ij}$

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

$$\rho_{ij}(\omega) = \frac{i}{2}\tilde{\Omega}(\omega)\frac{\Delta^0_{ij}}{i\omega + \gamma - i\delta_{ij}}$$

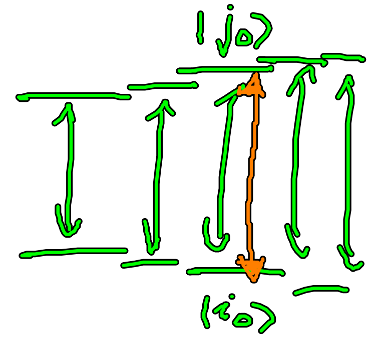
$$\downarrow \; \mathrm{Im}(\chi) = \frac{d^2 n_0}{\varepsilon_0}\sum_{\delta}\frac{\Delta_{ij}\,\gamma}{\gamma^2 + (\omega - \delta_{ij})^2}$$





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

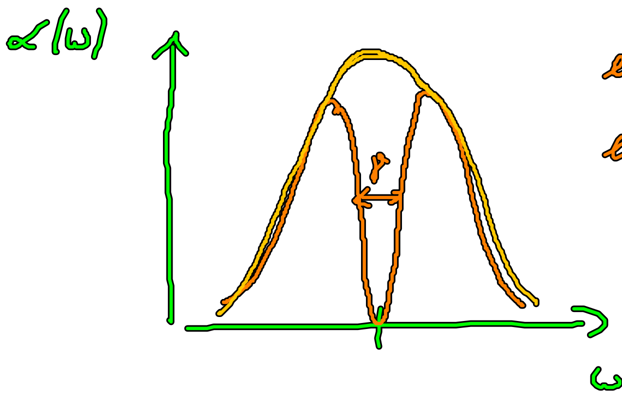
$\downarrow$



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

könnte man $\Delta_{ij}^{0} = 0 \rightarrow \rho_{ii_{00}} = \rho_{jj_{00}}$

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

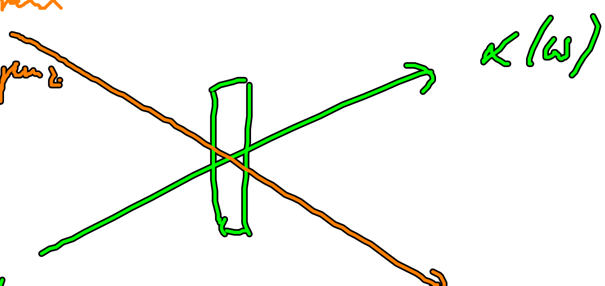


es wird 1 Übergang herausgeschnitten, es entsteht ein spektrales Loch mit der Breite $\approx 2\gamma$

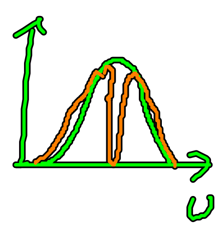
$\rightarrow$ man kann γ bestimmen

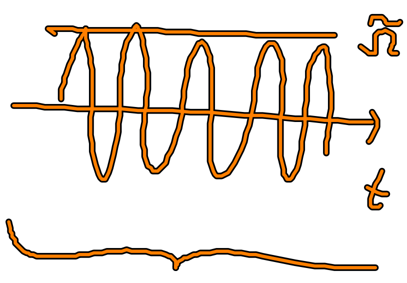
experimentelle Realisierung:

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



Testpuls bestimmt $\alpha(\omega)$





≙ stationärer Grenzfall (siehe 2NS, Fall c: stationäre Lsg.)

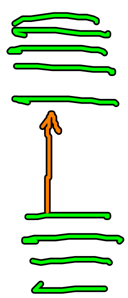
$I_{pump} \simeq \tilde{\Omega}^2 \to$ groß

$\to \Delta_{ij} = 0$

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

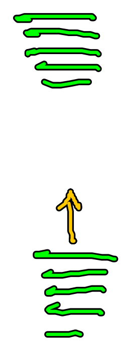
5.12. Nichtresonante Nichtlinearitäten

bisher:



$\omega_L \approx \omega_{ij}$

jetzt



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

Multiphotonabsorption

Höhere Harmonische

Optische Gleichrichtg.

Modellsystem: Zweiniveausystem, jetzt darf man keine RWA (Drehwellennäherg.) machen.

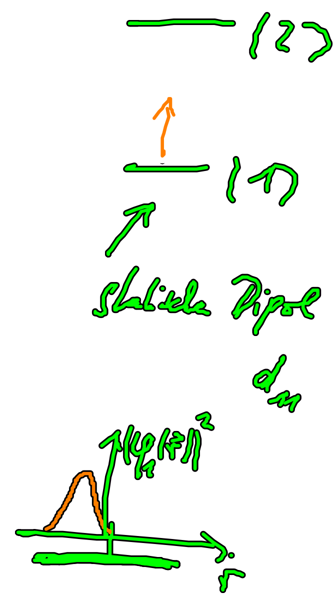
früher RWA: $\cancel{e^{i2\omega_L t}}$ gegen 1 für Zweiphotonabsorption

2. Harmonische, ...

muß man alle Schwingg.

mitnehmen

$$\dot{\rho}_{12} = (i\omega_{12} - \gamma)\rho_{12} + i\underbrace{(\Omega_{11} - \Omega_{22})}_{\substack{\text{statische Dipolmomente} \\ \text{in Materialien ohne} \\ \text{Inversionssymmetrie}}}\rho_{12} + i\Omega_{21}(t)\Delta$$



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

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

$\Downarrow$

$$d_{11} \neq 0$$

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

Zweiphotonprozesse schon in einfachster Näherung

$$\Delta = \Delta_0 = 1$$

Die gebrochene Inversionssymmetrie führt zu einer

Nichtlinearität 2. Ordnung: $\rho_{12}(\Omega_{11} - \Omega_{22}) \Longrightarrow$ 2. Ordng.

$\sim \tilde{\Omega}$

Wenn man Δ auch mitrechnet bekommt man

Dreiphotonabsorption, 3. Harmonische.

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

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

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

formale Lösung von ρ_{12}:

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

$\rho_{12}^{(0)}$

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

$|2\rangle$

$|1\rangle$

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

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

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

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.

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

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

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

(i) Frequenzverdopplung und optische Gleichrichtung

a) optische Gleichrichtung

b) Frequenzverdopplung (2. Harmonische)

wie könnte man solch Signal beobachten?

klassische Elektrodynamik

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

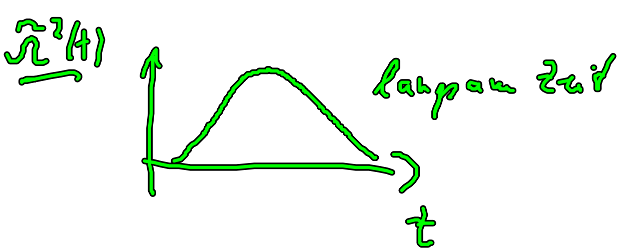
Fernfeld genähert

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

a) optische Gleichrichtung

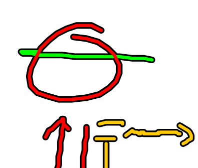
$$\rho_{12}^{(2)}\Big|_{OG} = -\frac{1}{(i\omega_{12} - \gamma)^2} \, \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2} \underset{\gamma \to 0}{\simeq} \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2\omega_{12}^2}$$

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



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

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



$\Longrightarrow$ Erzeugg. von THz Wellen (meV)

Aus einem optischen Puls wird ein „statisches" Feld gemacht $\hat{=}$ optische Gleichrichtung

b) Zweite Harmonische (Frequenzverdopplung)

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

$\cos(2\omega_L t)$

$\varsigma \to 0$

$\gamma \to 0$

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 $\quad 2\omega_L \approx |\omega_{12}|$ $\quad$ $|2\rangle$, $|1\rangle$

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

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

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

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

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

$2\omega_L \approx |\omega_{12}|$ $\quad$ $|2\rangle$, $|1\rangle$

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

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

-2

$-1 \rightarrow \omega_1 - \omega_2$

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

Beitrag zur 2. Harmonischen

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

ohne Rechnung

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

3. Ordnung im Feld:

Absorption

Wellengleichung f. langsame Amplitude:

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

(Vorgriff)

Quelle (ρ_{12})

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

β ist ein Konstante

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

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

2 Photon absorption

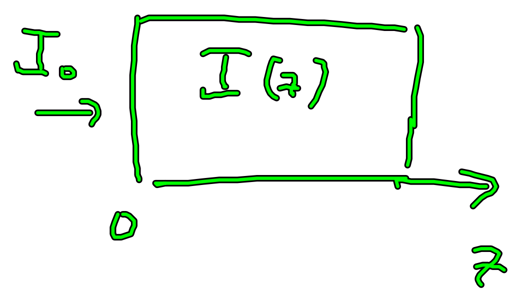
$$\partial_\xi I(t) = -2\beta I^{2}(t) \quad , \quad \xi = z$$

$\Big(= -\hat{\beta} I$ für Lambert Beer gesetz:

$$I = I_0\, e^{-\hat{\beta} z} \Big)$$

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

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



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

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: $I_0 = I_0(t)$