3. Lichtstrahlen in Materie

makroskopische Maxwellgleichungen mit räumlicher Dynamik größer atomarer Skala

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \frac{1}{c^2}\partial_t \vec{E} + \mu_0 \langle \vec{j} \rangle$$
$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\partial_t \vec{B}$$
$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\langle \rho \rangle}{\varepsilon_0}$$
$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0$$

$\underbrace{\langle \rho \rangle}_{\text{Ladungs-dichte}}, \underbrace{\langle \vec{j} \rangle}_{\text{Strom-dichte}}$: räumlich gemittelte Quellen

aus Elektrodynamik: $\langle \vec{j} \rangle = \underbrace{\vec{j}_m}_{\text{makroskopischer Strom}} + \partial_t \underbrace{\vec{P}}_{\text{Polarisationsdichte (Dipoldichte)}} + \mu_0^{-1} \vec{\nabla} \times \underbrace{\vec{M}}_{\text{Magnetisierungs-dichte}}$

$$\langle \rho \rangle = \underbrace{\rho_m}_{\text{makroskopische Ladungsdichte}} - \vec{\nabla} \cdot \vec{P}$$

Wellengleichg. f. $\vec{E}$ durch $\vec{\nabla}\times$ der 2. Maxwellgl.

$$\Box \vec{E} = \underbrace{\mu_0 \partial_t \vec{j}_m + \mu_0 \partial_t^2 \vec{P}}_{\text{Quellterme}} + \underbrace{\partial_t \vec{\nabla}\times\vec{M}}_{\text{typischerweise v. untergeordneter Bedeutg.}} + \cancel{\underbrace{\vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{E})}}$$

∃ im Vakuum wird f. Lichtstrahl exakt analog behandelt wie letzte VL

Bedingg.: Gaußstrahl: $w_0 \gg \lambda$, in Materie: $w_0 > l$, (Absorptions-länge)

j_m, $\vec{P}$ sind Funktion d. opt. Felds $\vec{E}$

$\rightarrow$ selbstkonsistent zu lösen.

$\rightarrow$ gutes Satz v. „paraxialen" Parametern

$\lambda = 500\ \mathrm{nm}$, $l = 1\,\mu\mathrm{m}$, $w_0 = 10\,\mu\mathrm{m}$

Lichtstrahl: $\Box \vec{E}$ analog zu Vakuumfall behandeln

Ansatz: $\tilde{E}(z, \vec{r}_{\parallel}, t)\, e^{i(k_L z - \omega_L t)}$

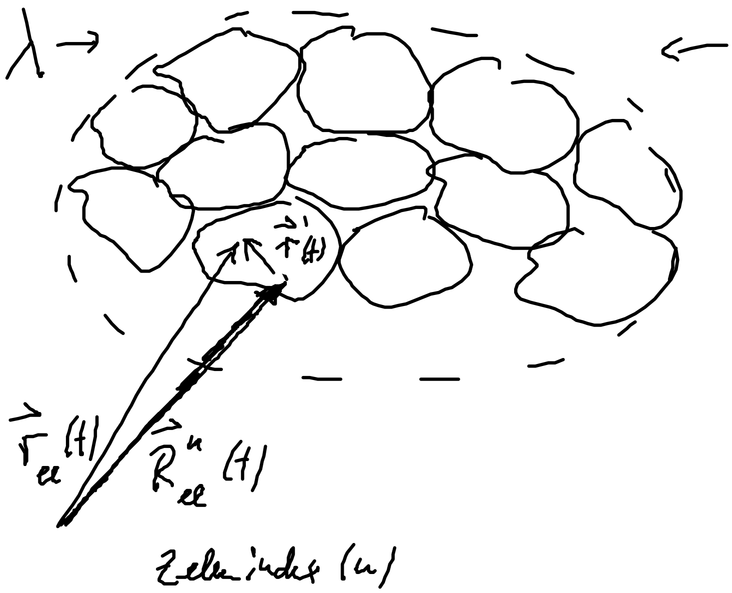
Später: derselbe Ansatz f. Quellen

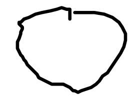
III Einfache Materialmodelle f. makroskopische Optik

1. Klassifizierg. d. Quelle

$\vec r_{el}(t)$: Elektronenkoordinate in Subeinheiten :

- Elementarzelle eines FK
- Moleküle, Sammlg. v. Moleküle





klass. Strom : $\vec j = q\,\dot{\vec r}_{el}(t)\;\delta\left(\vec r - \vec r_{el}(t)\right) \equiv \vec j(\vec r, t)$

noch nicht gemittelt

Zellen beschreibg. einsetzen

$= q\,\dot{\vec R}_{el}(t)\;\delta\left(\vec r - \underline{\vec R_{el}}(t) - \cancel{\vec r\,'(t)}\right)$ $\Longrightarrow$ Änderg. v. $\vec R_{el}(t)$ makroskop. Strom $\vec j_m$

$+\, q\,\dot{\vec r}\,'(t)\;\delta\left(\vec r - \underline{\vec R_{el}}\cancel{(t)} - \cancel{\vec r\,'(t)}\right)$ $\Longrightarrow$ Änderg. der Koordinate in Zelle $\hat{=}$ makroskop. Dipoldichte $\vec P$

makroskop. Optik f. Bewegg. der El

$\lambda \gg \underline{R_{el}} \gg r'$

Quantisierung d. Quelle: $\dot{\vec{R}}_{el}, \dot{\vec{r}}'$ → Impulse

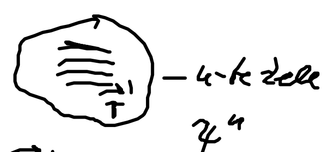
Strom in QM

$$\dot{\vec{r}} \Longrightarrow \vec{j} = \frac{q}{2m}\psi^*(\vec{r},t)\,\frac{\hbar}{i}\vec{\nabla}_r\,\psi(r,t) + h.a.$$

$$\vec{j}_m = \frac{q}{2m_{eff}}\psi_m^*(\vec{r},t)\,\frac{\hbar}{i}\vec{\nabla}_r\,\psi_m(\vec{r},t) + h.a.$$

bewegliche Ladg. ($\vec{j}_m$)

m_{eff}: effektive Teilchenmasse d. Objekte die sich zwischen Zellen bewegen

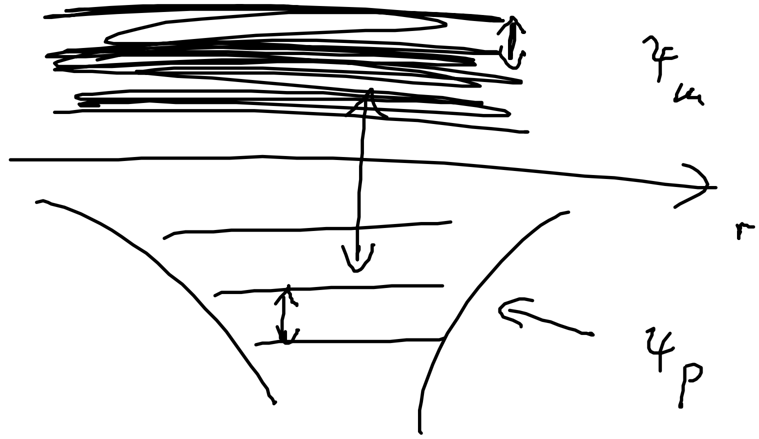


$$\vec{j}_p = \frac{d}{dt}\sum_n \overbrace{\int d\vec{r}'\,q\,\psi_p^{n*}(\vec{r}',t)\,\vec{r}'\,\psi_p^n(\vec{r}',t)}^{\text{Erwartungswert d. Dipols}}\cdot\underbrace{\delta(\vec{r}-\vec{R}_{el}^n)}_{\text{Orte d. Dipole}}$$

n-te Zelle: m. mikroskop. Mittelg.

gebundene Ladg. in Zellen

alle Zellen summiert

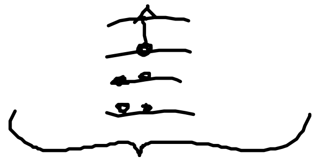


2. Beschreibg. d. quantisierten Quelle

$\psi_m,\ \psi_p\ (\vec{r},t)$ und genügen Schrödingergleichg.

$$i\hbar\,\partial_t\,\psi_{m/p}(\vec{r},t) = \underline{H}\,\psi_{m/p}(\vec{r},t)$$

$$H = \underbrace{T + V_{Kern}}_{\substack{\text{1 El in Kernpotential} \\ \text{z.B. Hartree-Fock Orbitale}}} \underbrace{- q\,\vec{r}_{el}(t)\cdot\vec{E}(\vec{r}_{el},t)}_{\text{Dipol-H}}$$



H_0

naive Herleitg.

$$H_{ww} = q\,\phi \,, \quad \text{mit } \phi = -\vec{r}_{el} \cdot \vec{E}(\vec{r}_{el}, t)$$

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}_{el}\phi = \underline{\underline{\vec{E}(r_{el}, t)}} - \vec{r}_{el} \cdot \underline{\underline{\vec{\nabla}_{el}\vec{E}(\vec{r}_{el}, t)}}$$

$$\underline{\underline{\sim \vec{B}}}$$

Eigenfkt v. H_0 : $\hat{=}$ $\begin{cases} m: \ \frac{1}{\sqrt{V}}\, e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} & \text{freie Teilchen} \\ p: & \text{Atomorbital} \end{cases}$

entwickle $\vec{P}(\vec{r}, t)$ und $\vec{j}_m(\vec{r}, t)$ nach Eigenfktion v. H_0:

$$\psi_p(\vec{r}, t) = \sum_i c_i(t)\, \varphi_i(\vec{r})$$

↑ Eigenfkt. v. H_0

$$\psi_m(\vec{r}, t) = \sum_k c_k(t)\, \frac{1}{\sqrt{V}}\, e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$$

a) Dipoldichte $\vec{P}(\vec{r}, t)$

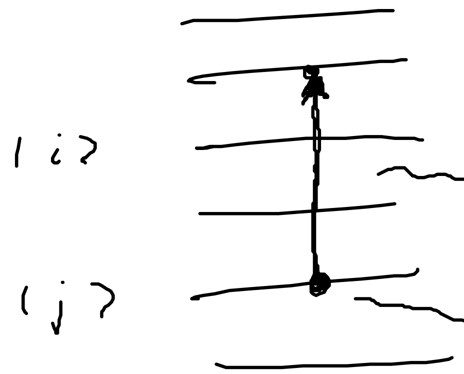
$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_n \langle \psi_p^n | q\vec{r}\,' | \psi_p^n \rangle\, \delta(\vec{r} - \vec{R}_{el}^n)$$

↑ Zelle

Entwicklg. nach φ_i einsetzen

$$= \sum_n \sum_{ij} \underbrace{\langle \varphi_i^n | q\vec{r}\,' | \varphi_j^n \rangle}_{\substack{\vec{d}_{ij}^{\,n} \\ \text{Dipolmatrix}}} \ \underbrace{c_i^*(t)\, c_j(t)}_{\substack{\text{Dynamik d. Dipols} \\ = \rho_{ij}(t)}} \ \delta(\vec{r} - \vec{R}_{el}^n)$$

n-te Zelle



ρ_{ij} Übergangswahrscheinlichkeitsamplitude $i \to j$

ρ_{ii} Besetzungswahrscheinlichkeit d. Zustands $|i\rangle$

am Ort $\vec{R}^n_\alpha$

$c_i^* c_j = \rho_{ij}$ kann als Dichtematrix interpretiert werden

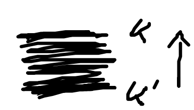
$\vec{d}^{\,n}_{ij}$ = Dipolmatrixelemente, enthalten Auswahlregeln am Ort n.

b) Stromdichte j_n

$$\vec{j}_n = \frac{q}{2}\, \Psi_n^* \frac{\vec{p}}{m_{eff}} \Psi_n(\vec{r},t) + cc.$$

$$= \frac{q}{2} \sum_{\vec{k},\vec{k}'} \frac{1}{V}\, e^{-i\vec{k}'\cdot\vec{r}}\, \frac{\hbar \vec{k}}{m_{eff}}\, e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \cdot \underline{\underline{c_{k'}^* c_k(t)}} + cc.$$

Übergang zw. Eigenzuständen



$$\vec{k}' - \vec{k} = \vec{Q}$$

$$\frac{\vec{k}' + \vec{k}}{2} = \vec{q}$$

$$\rho_{ij} = c_i^* c_j = \rho_{ij}$$

lokal

$$\ddot{u}A \quad = \frac{q}{V} \sum_{q,Q} e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{r}} \frac{\hbar \vec{q}}{m_{eff}} \rho_{q+\frac{Q}{2}\, q-\frac{Q}{2}}$$

$$\vec{J}_m = \frac{q}{V} \sum_{q} \frac{\hbar \vec{q}}{m_{eff}} \rho_{q}(\vec{r}) \Longrightarrow$$ mittelt mit $\rho_q(\vec{r})$ über alle $\frac{\hbar\vec{q}}{m}$ Geschwindigkeit am Ort $\vec{r}$

Eigenverteilg. : $$\underbrace{\rho_{\vec{q}}(\vec{r})}_{} \equiv \sum_{Q} e^{-i\vec{Q}\cdot\vec{r}} \rho_{q+\frac{Q}{2}\, q-\frac{Q}{2}}$$

Verteilg. d. Wellenzahlen am Ort $\vec{r}$
(Geschwindigkeiten)

Achtg. kann i.a. nicht als Wahrscheinlichkeitsverteilg. interpretiert (Unschärfe!)

3. Dichtematrixgleichg. f. Dipoldichte und Strom

benötigen $\rho_{nm} = \rho_{nm}(\vec{E}(\vec{r},t))$

zur selbstkonsistenten Beschreibung nötig

$$i\hbar |\dot{\Psi}\rangle = H |\Psi\rangle \quad , H = H_0 + H_{WW}$$

Ψ : Entwicklg. über $\{\varphi_n\}$ einsetzen : $\ddot{u}A$

$$\rho_{em} = c_e^*(t)\, c_m(t)$$

$$\dot{\rho}_{em} = i(\omega_e - \omega_m)\rho_{em} - i\sum_n \left(\Omega_{en}^* \rho_{nm} - \Omega_{mn}\rho_{en}\right)$$

$$\omega_e = \frac{\varepsilon_e}{\hbar} \qquad \varepsilon_e : \rightarrow \quad H_0 \varphi_e = \varepsilon_e \varphi_e$$

$$\Omega_{en} \equiv \text{Rabifrequenz} \equiv \frac{\langle \varphi_e | H_{WW} | \varphi_n \rangle}{\hbar}$$

3.1. Ergänzungen zu den Dichtematrixgleichungen

nötig Prozesse jenseits v. H_{WW} zu beschreiben

- Dissipation (Teilchen, Energie) $\Rightarrow$ an Umgebung
- Pumpe v. System (Zufuhr v. Energie) $\Rightarrow$ an Umgebung

phänomenologische Zusatzterme:

Bsp.: $$\dot{\rho}_{nn}\Big|_{\text{Relaxation}} = -\Gamma_n \left(\rho_{nn} - \mathring{\rho}_{nn}\right)$$

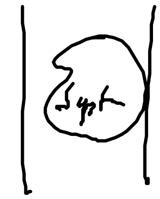
Rate die System auf $\mathring{\rho}_{nn}$ bringt

nur dieser Term macht folgendes:

$$\rho_{nn}(t) = \left(1 - e^{-\Gamma_n t}\right)\mathring{\rho}_{nn} + e^{-\Gamma t}\rho_{nn}(0)$$

Beginn bei 0

$$\rho_{nn}(t) \xrightarrow[t\to\infty]{} \rho^0_{nn}$$

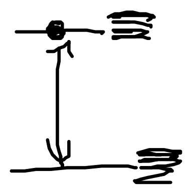


ρ^0_{nn} = kanon. / mikrokan. Verteilg (T,μ)

ungestg.

<u>Übergänge</u>

$$\dot\rho_{nm}\Big|_{\text{Dekohärenz}} = -\gamma_{nm}\,\rho_{nm}$$



Rate die gem. Interferenz unterdrückt

<u>Lsg.</u> $\rho_{nm}(t) = \rho_{nm}(0)\, e^{-\gamma_{nm} t}$

zerstört Kohärenz

3.2. Dipoldichte: Bewegungsgl.

suchen: $\rho^{(n)}_{\ell m}$ Ort

Dipol oszillation

übg am Ort $\vec{R}_n$

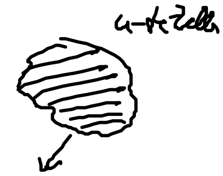
zwischen Zustand ℓ, m

$$\dot\rho^{n}_{em} = i\,\omega^{n}_{em}\,\rho^{n}_{em} - i\sum_{n'}\left(\Omega^{n}_{en'}\,\rho^{n}_{n'm} - \Omega^{n}_{mn'}\,\rho^{n}_{en'}\right)$$

f. jede Ortspkt.

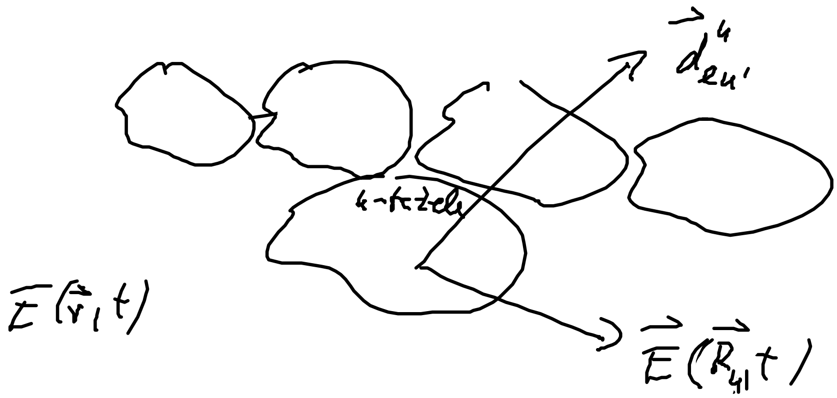
$(\omega_e - \omega_m)$

Zustände



$$\hbar\,\Omega^{n}_{en'} = \underbrace{\int d^3r\; \varphi^{*n}_{e}(\vec r)\; q\vec r\; \varphi^{n}_{n'}(\vec r)}\cdot \vec E(\vec r)$$

$$= \vec d^{\,n}_{en'}\cdot \vec E(\vec R^{n}_{d})$$



<u>Bsp</u> 2. Niveausystem:

$|2\rangle$

$|1\rangle$