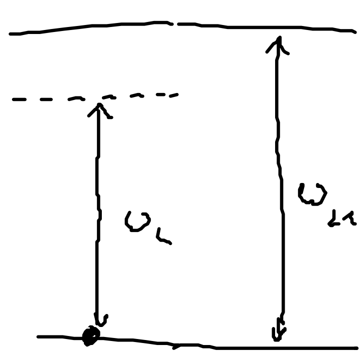
1.2. Nichtlinearität in schwach nichtresonanten Zweiniveausystemen

nichtresonante Anregung mit Puls $\delta_{12} = \omega_L - \omega_{21} \neq 0$

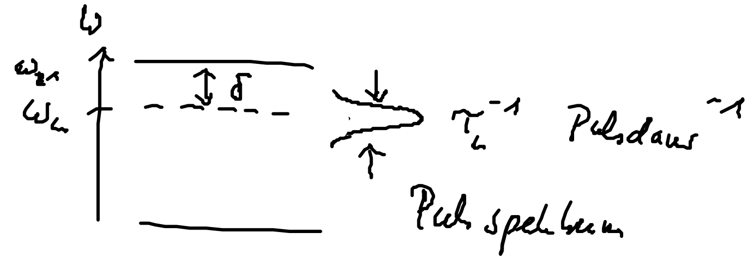


} noch im rotating wave Bereich, „nahresonant“ $\frac{\delta_{12}}{\omega_L} \ll 1$

$$\dot{\tilde{\rho}}_{12} = i\delta_{12}\tilde{\rho}_{12} + \frac{i}{2}\tilde{\Omega}_{21}\Delta - \gamma\tilde{\rho}_{12}$$

$$\dot{\Delta} = -i\left(\tilde{\Omega}_{21}\tilde{\rho}_{21} - \tilde{\Omega}_{12}\tilde{\rho}_{12}\right)$$

Kleiner Parameter: $\boxed{\varepsilon = \frac{1}{\tau_L \cdot \delta_{12}}}$



$$\varepsilon = \frac{\tau_L^{-1}}{\delta_{12}} \ll 1$$

Pulsspektrum um ω_L schmal gegen Verstimmung δ_{12}

$$\tilde{\rho}_{12} = \frac{i}{2}\int^{t} dt'\, e^{i\delta_{12}(t-t')}\,\Delta(t')\,\tilde{\Omega}_{21}(t')$$

$-\infty$

löst Dgl. $\dot{\tilde{\rho}}_{12}$ $\qquad$ $\delta_{12} \to \delta$

$$s = t - t'$$

$$\tilde{\rho}_{12}(t) = \frac{i}{2} \int_0^\infty ds\, e^{i\delta s} \underbrace{\tilde{\Omega}_{21}(t-s)}_{\text{bekannt}} \underbrace{\Delta(t-s)}_{\text{unbekannt}}$$

δ, τ_L sind im Integral, Taylorreih bzgl. s

$$= \frac{i}{2} \int_0^\infty ds\, e^{i\delta s} \sum_n \frac{1}{n!} (-s)^n \left(\tilde{\Omega}_{21} \Delta\right)_t^{(n)}$$

$$= \frac{i}{2} \sum_n \frac{1}{n!} \int_0^\infty ds\, (-s)^n e^{i\delta s} \underbrace{\left(\tilde{\Omega}_{21} \Delta\right)_t^{(n)}}_{\text{pro Ableitg.}}$$

$$\underbrace{\delta s \equiv x \quad \frac{(-x)^n}{\delta^n} \qquad \left(\frac{1}{\tau_L}\right)^n}_{\varepsilon^n}$$

Entwicklg. in s^n ist Entwicklg in ε $\qquad$ $i\delta \to i\delta - \gamma$

<u>Nullte Ordng:</u>

$$\tilde{\rho}_{12}^{(0)} = \frac{i}{2} \Delta(t) \Omega(t) \underbrace{\int_0^\infty ds\, e^{(i\delta - \gamma)s}}$$

$$\frac{e^{(i\delta-\mu)s}}{i\delta}\Big|_0^\infty = -\frac{1}{i\delta}$$

$$\tilde{\rho}_{12}^{(0)} = \frac{\Delta(t)}{2\delta}\,\tilde{\Omega}_{21}(t)$$

$$\dot{\Delta}^{(0)} = \underbrace{-i\left(\tilde{\Omega}_{21}\,\tilde{\rho}_{21}^{(0)} - \Omega_{12}\,\tilde{\rho}_{12}^{(0)}\right) - c.c.}$$

$$\dot{\Delta}^{(0)} = 0$$

erster Term der Reihe bringt kein Beitrag

<u>n=1 Term aus Reihe:</u>

$$\rho_{12}^{(1)} = \frac{i}{2}\underbrace{\int_0^\infty ds\,(-s)\,e^{(i\delta-\mu)s}}_{\text{einfach}}(\Delta\Omega)'_t$$

$$= \frac{i}{2\delta^2}(\Delta\Omega)'_t \qquad \mu\to 0$$

$$\dot{\Delta}^{(1)} = -i\left(\tilde{\Omega}_{21}\,\tilde{\rho}_{21}^{(1)} - \tilde{\Omega}_{12}\,\tilde{\rho}_{12}^{(1)}\right)$$

$$= -\frac{1}{2\delta^2}\left(\tilde{\Omega}_{21}\,\underset{\dot{\Delta}^{(0)}=1}{\underset{\|}{(\tilde{\Omega}_{12}\Delta)'}} + \tilde{\Omega}_{12}\,(\tilde{\Omega}_{21}\,\underset{\rho^{(0)}=1}{\underset{\uparrow}{\Delta}})'\right)$$

$$= -\frac{1}{2\delta^2}\,\frac{\partial}{\partial t}|\tilde{\Omega}_{12}|^2$$

$$\Delta^{(1)} = 1 - \frac{|\tilde{\Omega}_{12}|^2}{2\,\delta^2}$$

Konst. als Anfgs.beding.

nichtlinearer Beitrag

linear in $\tilde{\rho}_{12}^{(0)}(t) = \dfrac{\Delta^{(1)}\,\Omega_{21}}{2\delta}$

$$\to \tilde{\rho}_{12} = \left(1 - \frac{|\Omega_{12}|^2}{2\delta^2}\right)\frac{\tilde{\Omega}_{21}}{2\delta}$$

$$\tilde{\rho}_{12}\Big|_{\substack{\text{schwache}\\ \text{Verstimmung}}} = \underbrace{\tilde{\rho}_{12}\Big|_{\text{linear}}}_{\frac{\tilde{\Omega}_{21}}{2\delta}} + \underbrace{\tilde{\rho}_{12}\Big|_{\text{nichtlinear}}}_{-\frac{1}{4\delta^3}|\tilde{\Omega}_{12}|^2\,\tilde{\Omega}_{21}}$$

<u>Bemerkungen</u>:

a) der nichtlin. Term geht mit $\underline{|\tilde{E}|^2}\,\tilde{E}$ ~ Dipoldichte

<u>Kerr-Nichtlinearität</u>

b) Kerr-NL ist reell in $\tilde{\rho}_{12}$

nichtlinearer Brechzahleffekt:

modifiziert die Brechzahl d. Mediums mit Intensität

<u>Brechzahl:</u> $n = n_0 + n_2 |\tilde{E}|^2$ (später)

$\uparrow$ üblich

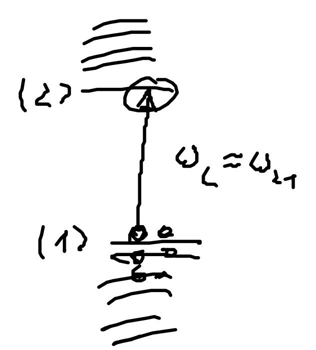
c) man spricht v. instantaner NL,

weil $\tilde{\rho}_{12}(t)$ proportional $|\tilde{E}(t)|^2$

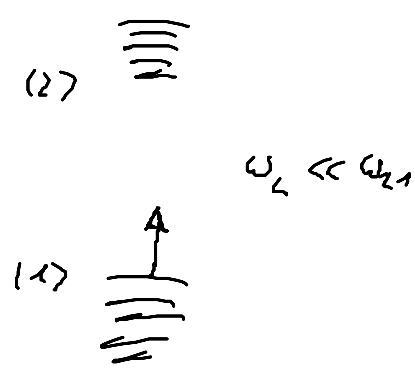
zur „selben" Zeit

1.3. Nichtresonante Nichtlinearitäten

<u>bisher</u>



jetzt



<u>Resonanz:</u>

- Rabioszillation
- Kerr-NL

RWA nicht mehr erfüllt:

$e^{i\omega_L t + i\omega_{21} t}$ weggelassen

Vgl. $e^{-i\omega_L t + i\omega_{21} t}$ mitgenommen kann man nicht mehr unterscheiden

Modellsystem : ZNS

statisch Dipole $\vec{d}_{11}, \vec{d}_{22}$, verschwindet in RWA, jetzt ernst nehmen !

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

$$\dot{\Delta} = -i\,2\,(\Omega_{12}\,\rho_{12} - \Omega_{12}\,\rho_{21})$$

formale Lösung d. Gl.

$$\rho_{12}(t) = i \int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{(i\omega_{12} - \gamma)(t-t')} \big(\underbrace{\omega(t')\rho_{12}(t')}_{\substack{\text{proportional zu } E^2 \\ \text{in niedrigster Ordnung}}} + \underbrace{\Omega(t')\Delta(t')}_{\substack{\text{prop. } E \\ \text{in niedrigster Ordnung}}} \big)$$

0. Ordnung (kein E-Feld)

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

1. Ordnung (lineare Optik)

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

$$= i \int_{0}^{\infty} ds\; e^{(i\omega_{12} - \gamma)s}\, \underbrace{\Omega(t-s)}\,\Delta^{(0)}$$

Puls langsam

gegen $e^{i\omega_{12} s}$ $\quad \omega_L \ll \omega_{12}$

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

$$\rho_{12}^{(1)} = \frac{-i}{i\omega_{12}-\gamma}\, \Omega(t)$$

$P(t) = \varepsilon_0 \chi E(t)$

folgt dem anregend Licht analog

<u>2. Ordng.</u> (quadratisch NL)

linksseitig $+\int ds$

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

$$\cancel{+ \frac{-i}{i\omega_{12}-\gamma}\, \Omega(t)}$$

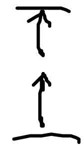
linear (nicht diskutiert)

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

$$\overset{!}{=} \rho_{12} \text{ (optische Gleichrichtg., Frequenzverdopplg)} \quad (i)$$

$$+ \rho_{12} \text{ (Zweiphotonabsorption)} \quad (ii)$$

2 Fälle (i), (ii)

$\omega_L \ll \omega_{21}$ $\qquad$ $2\omega_L = \omega_{21}$ 

in $\omega(t)$ $\Omega(t)$ tritt E^2 auf:

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

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

Nullfreq. $\qquad$ doppelte Frequenz

$$\rho^{(2)}(t)\Big|_{ul} = -\frac{i}{\omega_{12}}\int_0^\infty ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\,\tilde{\Omega}^2(t-s)\cdot$$

$$\cdot\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos(2\omega_L(t-s))\right)$$

$$\tilde{\Omega}^2 \equiv \tilde{E}^2(t)\, d_{12}(d_{11}-d_{22})$$

(a) $\qquad$ (b) $\qquad$ (c)

SHG $\omega_{21} \gg \omega_L$ $\qquad$ TPA $\omega_{21} = 2\omega_L$

a) optische Gleichrichtg. (OG)

$$\rho^{(2)}(t)\Big|_{OG} \approx -\frac{i}{\omega_{12}}\int_0^\infty ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s}\,\tilde{\Omega}^2(t)$$

$$= \frac{1}{\omega_{12}^2} \cdot \frac{\tilde{\Omega}^2(t)}{2}$$

optisch Feld richtig, es entsteht ein statischen Feld über Quelle $\rho^{(2)}$ in Maxwellgl.

Kein optische Frequenz in Signal!

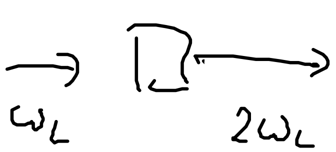
b) Frequenzverdopplg. (SHG)

wieder $\varsigma = 0$ ist Quelle d. Integrals

weil $\omega_{21} \gg \omega_L$

$$\rho_{12}^{(2)}(t)\Big|_{SHG} = \frac{\tilde{\Omega}(t)^2}{2\omega_{12}^2} \cos(2\omega_L t)$$

Dipoldichte oszilliert mit $2\omega_L$



sieht man in Abstrahlg. d. Probe:

Fernfeld

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

$$\vec{P} \sim \rho_{12}^{(2)}(t)$$

→ $\vec{E} \sim$ Kugelwelle mit doppelter Frequenz

Resonanzterm v. $e^{\pm i}$ der cos-Fkt

↓

c/ Zweiphotonabsorption

$$\rho_{12}^{(2)}\Big|_{TPA} = \frac{1}{i\omega_{12}} \underline{\tilde{\Omega}}^2(t) \int ds\, e^{(i\omega_{12}-\gamma)s} \frac{1}{4} e^{-i2\omega_L(t-s)}$$

↗ sowieso langsam

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

$\omega_{21} = 2\omega_L$

ist in Resonanz

$$= -\frac{\underline{\tilde{\Omega}}^2(t)}{4i\,\omega_{12}\,\gamma} e^{-i2\omega_L t}$$

↓

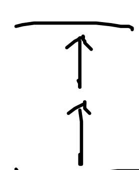
wieder SHG

3. Ordnung nötig:

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

↗ imaginär

ist TPA-Prozeß



$$\frac{\partial}{\partial z}\tilde{E} = i\alpha\tilde{P} = -\beta\tilde{E}^3$$

$$\boxed{\frac{\partial}{\partial z} I = -\beta_2 I^2}$$

2 Photon absorption $I(z) = \dfrac{I(z=0)}{1+\beta_2 I(z=0)\, z}$

$$\boxed{\frac{\partial}{\partial z} I = -\beta_1 I}$$

1 Photon absorption $I(z) = e^{-\beta_1 z} I(z=0)$

Für Vielphotonabsorption gilt nicht das Lambert-Beer-Gesetz, sondern u. a. Potenzgesetze $\frac{1}{z}$

1

2