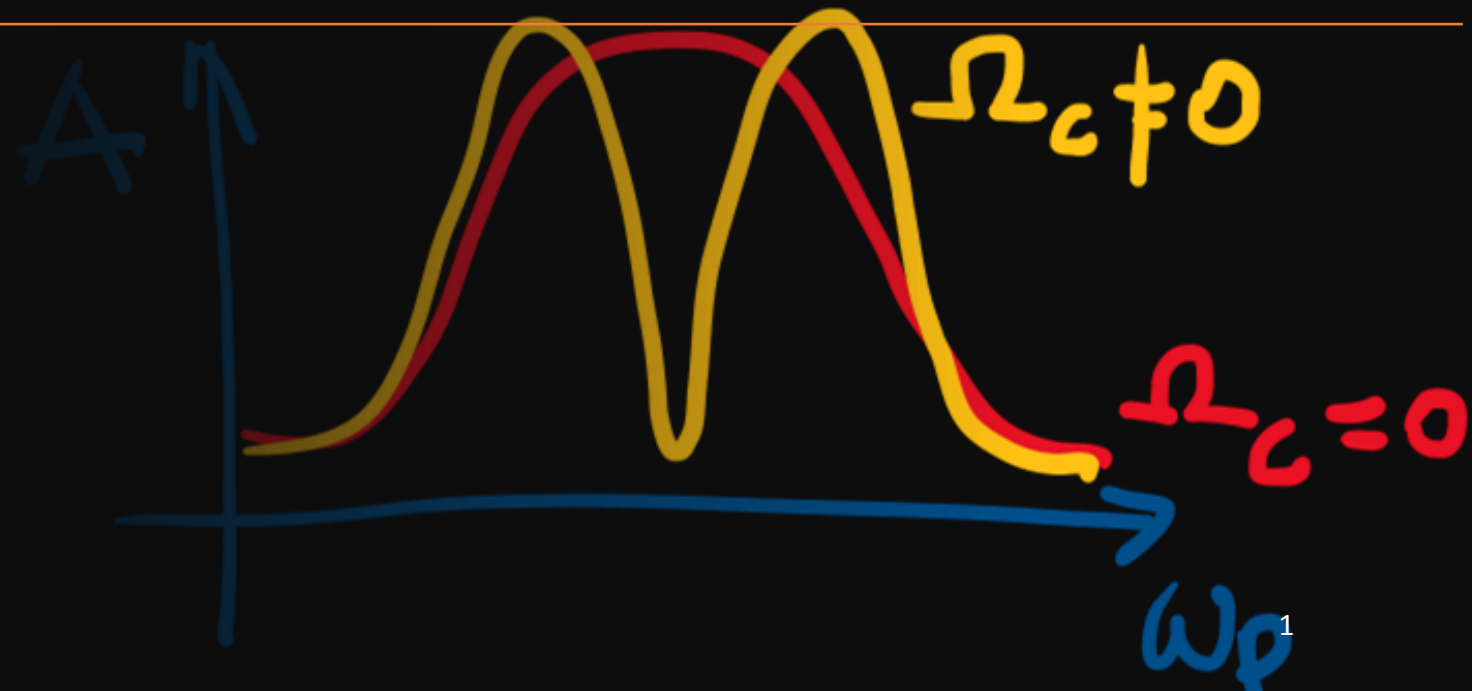




Optica no lineal y ultra-rápida

Clase 9



Sistema de 2 niveles – campo oscilatorio

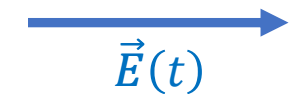
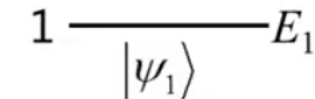
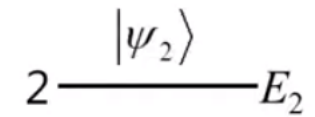
De las ecuaciones (8.22) y (8.23) de la clase pasada teníamos la evolución en el tiempo de los elementos de matriz de la matriz densidad

$$\frac{d}{dt}(\rho_{11} - \rho_{22}) = 2i \frac{\mu_d}{\hbar} E (\rho_{21} - \rho_{21}^*) - \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11} - \rho_{22})_o}{T_1} \quad (9.1)$$

$$\frac{d\rho_{21}}{dt} = -i\omega_{21}\rho_{21} + i \frac{\mu_d}{\hbar} E (\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{\rho_{21}}{T_2}$$

tiempo de relajación de población

tiempo de pérdida de fase



Campo oscilatorio aplicado

$$E(t) = E_0 \cos \omega t = \frac{E_0}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \quad (9.2)$$

Vamos a introducir cantidades lentamente variables que nos van a simplificar el álgebra de este modo:

$$\rho_{21}(t) = \beta_{21}(t) \exp(-i\omega t) ; \quad \rho_{12}(t) = \beta_{12}(t) \exp(i\omega t) \quad (9.3)$$

Sistema de 2 niveles – campo oscilatorio

También vamos a hacer la siguiente aproximación (que es la RWA).

Recuerden primero nuestro hamiltoniano de perturbación para el caso de campo estático

$$\hat{H}_p = \begin{bmatrix} 0 & -E\mu_d \\ -E\mu_d & 0 \end{bmatrix}$$

En este caso los elementos de la matriz van a ser $-\mu_d \frac{E_0}{2} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \approx -\mu_d \frac{E_0}{2} e^{-i\omega t}$ (9.4)

La RWA siempre de alguna manera “acompaña” los términos resonantes y los otros los descarta. En (9.4) nos estamos quedando con el (-). Fíjense de la clase pasada ec. (8.23) que ρ_{21} evoluciona como $\exp(-\omega_{21}t)$. Entonces cuando $\omega \approx \omega_{21}$, la parte que oscila con el (-) es mucho mas efectiva que la que oscila con el (+)

Entonces con (9.3) y (9.4) y un poco de álgebra llegamos a las siguientes ecuaciones para población y coherencias:

$$\frac{d}{dt}(\rho_{11} - \rho_{22}) = i \frac{\mu_d}{\hbar} E_0 (\beta_{21} - \beta_{21}^*) - \frac{(\rho_{11} - \rho_{22}) - (\rho_{11} - \rho_{22})_0}{T_1} \quad (9.5)$$

$$\frac{d}{dt}\beta_{21} = i(\omega - \omega_{21})\beta_{21} + i \frac{\mu_d}{2\hbar} E_0 (\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{\beta_{21}}{T_2}$$

Ecuaciones de Bloch

Sistema de 2 niveles – campo oscilatorio

Calculemos ahora el promedio del ensamble del momento dipolar. Recuerden de la clase pasada que:

$$\langle \overline{\mu} \rangle = \mu_d (\rho_{12} + \rho_{21}) \quad (9.6)$$

Reemplazando con (9.3) las expresiones de las coherencias, queda

$$\langle \overline{\mu} \rangle = \mu_d (\beta_{12} \exp(i\omega t) + \beta_{21} \exp(-i\omega t)) \quad (9.7)$$

Y con un poco de algebra y el hecho de que la matriz densidad es hermítica y entonces $\rho_{12} = \rho_{21}^*$ y por lo tanto $\beta_{12} = \beta_{21}^*$

$$\langle \overline{\mu} \rangle = 2\mu_d [\text{Re}(\beta_{21}) \cos \omega t + \text{Im}(\beta_{21}) \sin \omega t] \quad (9.8)$$

Vamos a resolver el estado estacionario, es decir la solución luego de un tiempo largo de aplicado el campo. En ese caso se cumple que la diferencia de población llegó a un estado estacionario, así como las coherencias.



En estado
estacionario

$$d(\rho_{11} - \rho_{22}) / dt = 0$$

$$d\beta_{21} / dt = 0$$

(9.9)



recordar que β_{21} es lentamente variable

Ecuaciones de Bloch. Solución estacionaria

Entonces hay que igualar a cero las ecuaciones de Bloch (9.5) y resolver las dos ecuaciones lineales en las dos variables β_{21} y $\rho_{11} - \rho_{22}$

Definiendo la siguiente cantidad, que tiene unidades de frecuencia,

$$\boxed{\Omega = \mu_d E_o / 2\hbar} \quad (9.10)$$

frecuencia de Rabi
es también una “intensidad óptica”

El resultado es (queda como ejercicio):

$$\rho_{11} - \rho_{22} = (\rho_{11} - \rho_{22})_o \frac{1 + (\omega - \omega_{21})^2 T_2^2}{1 + (\omega - \omega_{21})^2 T_2^2 + 4\Omega^2 T_2 T_1} \quad (9.11)$$

Dif de poblaciones en equilibrio

Dif de poblaciones en estado estacionario

$$\text{Re}(\beta_{21}) = \frac{(\omega_{21} - \omega)\Omega T_2^2 (\rho_{11} - \rho_{22})_o}{1 + (\omega - \omega_{21})^2 T_2^2 + 4\Omega^2 T_2 T_1} \quad \text{Im}(\beta_{21}) = \frac{\Omega T_2 (\rho_{11} - \rho_{22})_o}{1 + (\omega - \omega_{21})^2 T_2^2 + 4\Omega^2 T_2 T_1} \quad (9.12)$$

Ecuaciones de Bloch. Solución estacionaria

Supongamos que tenemos una cantidad grande N de sistemas por unidad de volumen. La diferencia de población por unidad de volumen del estado de menor energía al de mayor energía es:

$$\Delta N = N(\rho_{11} - \rho_{22}) \quad (9.13)$$


Mientras que en equilibrio, o sea con el campo eléctrico apagado es:

$$\Delta N_o = N(\rho_{11} - \rho_{22})_o \quad (9.14)$$

Entonces la ec (9.11) queda:

$$(9.15) \quad \Delta N = \Delta N_o \cdot \frac{1 + \Delta^2 T_2^2}{1 + \Delta^2 T_2^2 + 4\Omega^2 T_2 T_1}$$

Donde $\Delta = \omega - \omega_{21}$ es el *detuning*

 Esta ecuación nos dice como varía la diferencia de población en el estado estacionario si incidimos con una "intensidad" Ω a frecuencia ω que tiene una separación espectral o *detuning* Δ

Polarización y susceptibilidad

La polarización del sistema, o sea el momento dipolar por unidad de volumen es:

$$P = N \overline{\langle \mu \rangle} = 2 N \mu_d [Re(\beta_{21}) \cos \omega t + Im(\beta_{21}) \sin \omega t] \quad (9.16)$$

$$= \epsilon_0 (\chi' + i\chi'') E + c. c.$$

Parte real e imaginaria de la susceptibilidad

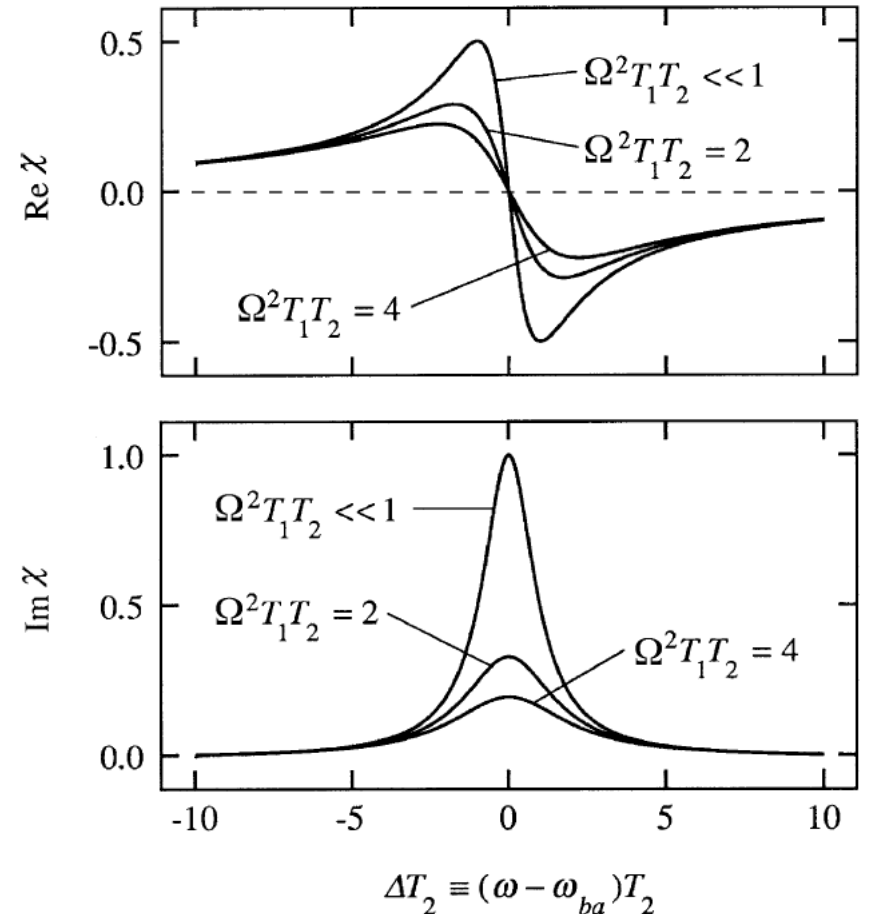
De todas las ecuaciones anteriores y (9.16) entonces podemos tener la expresión para la susceptibilidad:

$$\chi'_{(\omega)} = -\mu_d^2 \frac{T_2 \Delta N_0}{\epsilon_0 \hbar} \cdot \frac{\Delta T_2}{1 + \Delta^2 T_2^2 + 4\Omega^2 T_2 T_1} \quad (9.17)$$

$$\chi''_{(\omega)} = \mu_d^2 \frac{T_2 \Delta N_0}{\epsilon_0 \hbar} \cdot \frac{1}{1 + \Delta^2 T_2^2 + 4\Omega^2 T_2 T_1}$$

depende de E_0^2

χ contiene parte lineal y no lineal dependiendo de la intensidad del campo



Saturación

Sabemos que Ω^2 es proporcional a la intensidad , entonces podemos escribir:


$$4\Omega^2 T_2 T_1 \equiv \frac{I}{I_s} \quad (9.18)$$

 Intensidad de saturación

O sea que si estamos exactamente en resonancia, detuning cero, la parte imaginaria de la susceptibilidad nos queda:

$$(9.19) \quad \chi''(\omega) = A \cdot \frac{1}{1 + \frac{I}{I_s}}$$

Esta ecuación describe la saturación de la absorción que generalmente se ve para láseres de alta intensidad

 A medida que aumentamos la intensidad, la absorción va disminuyendo hasta desaparecer. En ese caso llegamos a la situación en la que la población del estado de mayor energía es igual a la del estado de menor energía, y el proceso de absorber un fotón al estado de mayor energía se equilibra con el proceso de emitir un fotón para el de menor energía por emisión estimulada

Saturación

Sabemos que Ω^2 es proporcional a la intensidad, entonces podemos escribir:

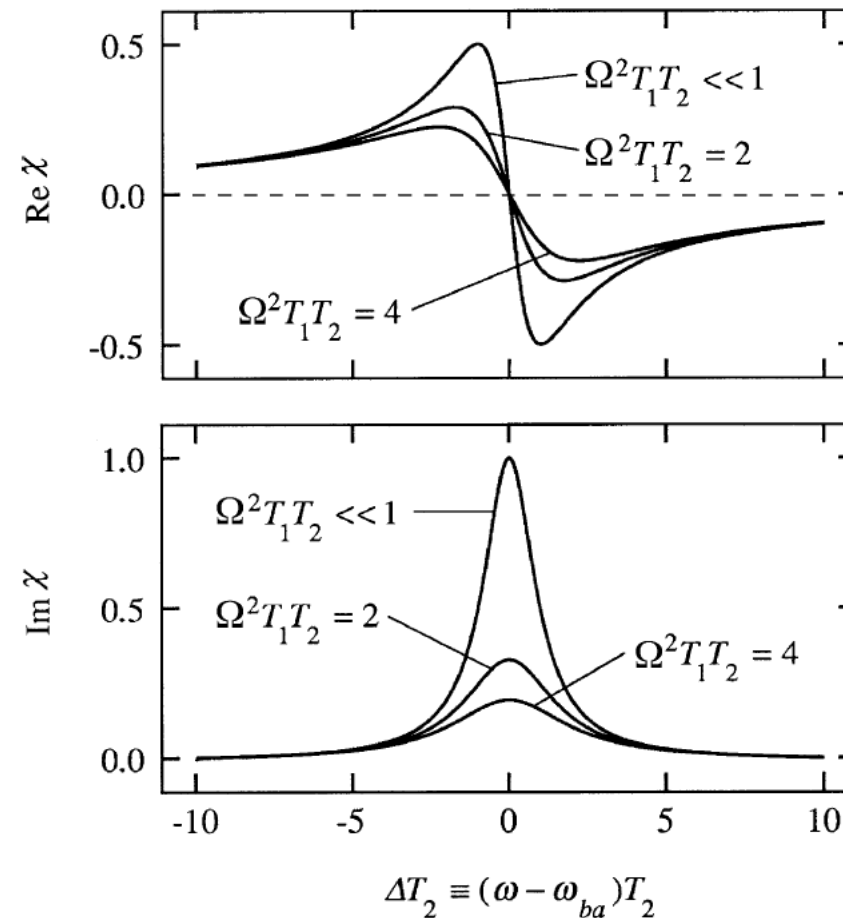
$$4\Omega^2 T_2 T_1 \equiv \frac{I}{I_s} \quad (9.18)$$

Intensidad de saturación

O sea que si estamos exactamente en resonancia, detuning cero, la parte imaginaria de la susceptibilidad nos queda:

$$(9.19) \quad \chi''(\omega) = A \cdot \frac{1}{1 + \frac{I}{I_s}}$$

Aun con potencias altas las formas de línea son las usuales, solo que se ensanchan (y eventualmente se acercan a cero). Ese comportamiento se llama ensanchamiento por potencia



Tratamiento perturbativo

Hasta ahora mostramos la solución de un problema “sencillo” y calculamos la respuesta tanto lineal como no lineal. En problemas mas complejos la solución exacta no es posible aun usando el formalismo de la matriz densidad. De manera que se puede usar como es usual la teoría de perturbaciones.

Empezamos escribiendo la (8.13) de la clase pasada para la evolución temporal de la matriz densidad, la análoga a la ec de Schroedinger con funciones de onda

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\rho, \hat{H}]$$

En componentes

$$\frac{\partial \rho_{mn}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\rho, \hat{H}]_{mn} \quad (9.20)$$

Y también podemos generalizar la aproximación de tiempos de relajación, incluyéndola en (9.20)

$$\frac{\partial \rho_{mn}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\rho, \hat{H}]_{mn} - \gamma_{mn} (\rho_{mn} - \rho_{mno}) \quad (9.21)$$

tasa (*rate*) de relajación, inverso al tiempo

valor de equilibrio de ρ_{mn}

Tratamiento perturbativo

Se propone entonces una expansión del tipo

$$\rho_{nm} = \rho_{nm}^{(0)} + \lambda \rho_{nm}^{(1)} + \lambda^2 \rho_{nm}^{(2)} + \dots \quad (9.22)$$

Y se reemplazan en (9.21) los elementos de matriz de la perturbación como $H_{pnm} = \lambda H_{pmn}$

Entonces (9.22) tiene que ser solución de (9.21) para todo $\lambda^{(i)}$, para lo cual los coeficientes de todos los órdenes de $\lambda^{(i)}$ deben cumplir las ecuación (9.21) separadamente

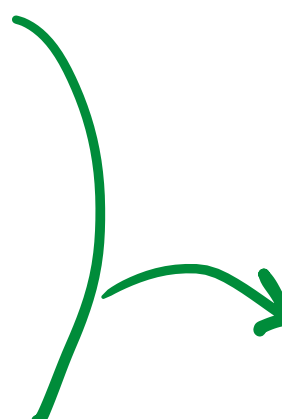
Queda un set de ecuaciones de este tipo:

$$\dot{\rho}_{nm}^{(0)} = -i\omega_{nm} \rho_{nm}^{(0)} - \gamma_{nm} (\rho_{nm}^{(0)} - \rho_{mno}) \quad (9.23)$$

$$\dot{\rho}_{nm}^{(1)} = -i (\omega_{nm} + \gamma_{nm}) \rho_{nm}^{(1)} - i\hbar^{-1} [\widehat{H}_p, \hat{\rho}^{(0)}]_{nm}$$

$$\dot{\rho}_{nm}^{(2)} = -i (\omega_{nm} + \gamma_{nm}) \rho_{nm}^{(2)} - i\hbar^{-1} [\widehat{H}_p, \hat{\rho}^{(1)}]_{nm}$$

etc..



Estas ecuaciones ahora se pueden integrar en forma directa

Tratamiento perturbativo

En el Boyd (cap 3) tienen las soluciones para las ecuaciones (9.23) para interacción dipolar y campo oscilante

Para la susceptibilidad lineal da:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \sum_n \frac{N f_{na} e^2}{2\epsilon_0 m \omega_{na}} \left[\frac{1}{(\omega_{na} - \omega) - i\gamma_{na}} + \frac{1}{(\omega_{na} + \omega) + i\gamma_{na}} \right] \quad (9.24)$$

$$\simeq \sum_n f_{na} \left[\frac{N e^2 / \epsilon_0 m}{\omega_{na}^2 - \omega^2 - 2i\omega_{na}\gamma_{na}} \right].$$

f_{na} es lo que se llama la fuerza del oscilador (oscillator strength)

$$f_{na} = \frac{2m\omega_{na} |\mu_{na}|^2}{3\hbar e^2}$$

Tiene formalmente la misma pinta que la expresión clásica pero contiene mas de una transición y además permite calcular la fuerza del oscilador

Y la de segundo orden

$$\begin{aligned}
 \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_p + \omega_q, \omega_q, \omega_p) = & \frac{N}{2\epsilon_0\hbar^2} \sum_{lmn} (\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \\
 & \times \left\{ \frac{\mu_{ln}^i \mu_{nm}^j \mu_{ml}^k}{[(\omega_{nl} - \omega_p - \omega_q) - i\gamma_{nl}][(\omega_{ml} - \omega_p) - i\gamma_{ml}]} \right. \\
 & + \frac{\mu_{ln}^i \mu_{nm}^k \mu_{ml}^j}{[(\omega_{nl} - \omega_p - \omega_q) - i\gamma_{nl}][(\omega_{ml} - \omega_q) - i\gamma_{ml}]} \\
 & + \frac{\mu_{ln}^j \mu_{nm}^i \mu_{ml}^k}{[(\omega_{nm} + \omega_p + \omega_q) + i\gamma_{nm}][(\omega_{ml} - \omega_p) - i\gamma_{ml}]} \\
 & \left. + \frac{\mu_{ln}^k \mu_{nm}^i \mu_{ml}^j}{[(\omega_{nm} + \omega_p + \omega_q) + i\gamma_{nm}][(\omega_{ml} - \omega_q) - i\gamma_{ml}]} \right\} \tag{9.25}
 \end{aligned}$$

Y los términos de orden superior, con cada vez más álgebra

Oscilaciones de Rabi

Se puede consultar sección 6.5 del Boyd

$$\langle \tilde{\mu} \rangle = \mu_{ab} \frac{\Omega}{\Omega'} \left[\frac{-\Delta}{2\omega'} e^{-i\omega t} + \frac{1}{4} \left(\frac{\Delta}{\Omega'} - 1 \right) e^{-i(\omega + \Omega')t} + \frac{1}{4} \left(\frac{\Delta}{\Omega'} + 1 \right) e^{-i(\omega - \Omega')t} \right] + \text{c.c.}$$

$$\Omega = \mu_d E_o / 2\hbar$$

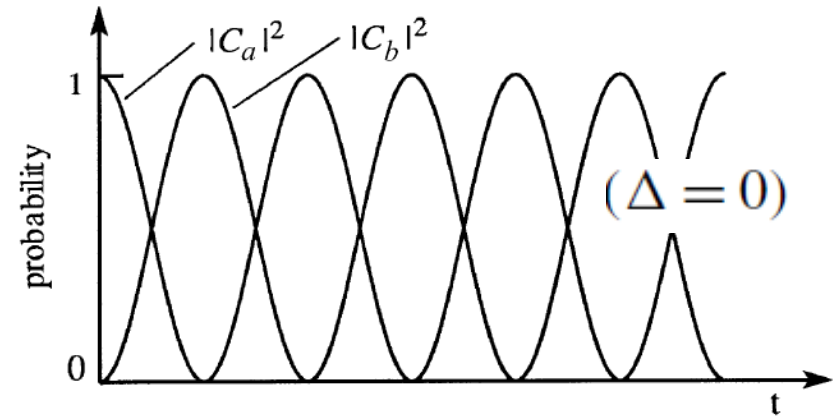
Frecuencia de Rabi

$$\Omega' = (|\Omega|^2 + \Delta^2)^{1/2}$$

Frecuencia de Rabi generalizada

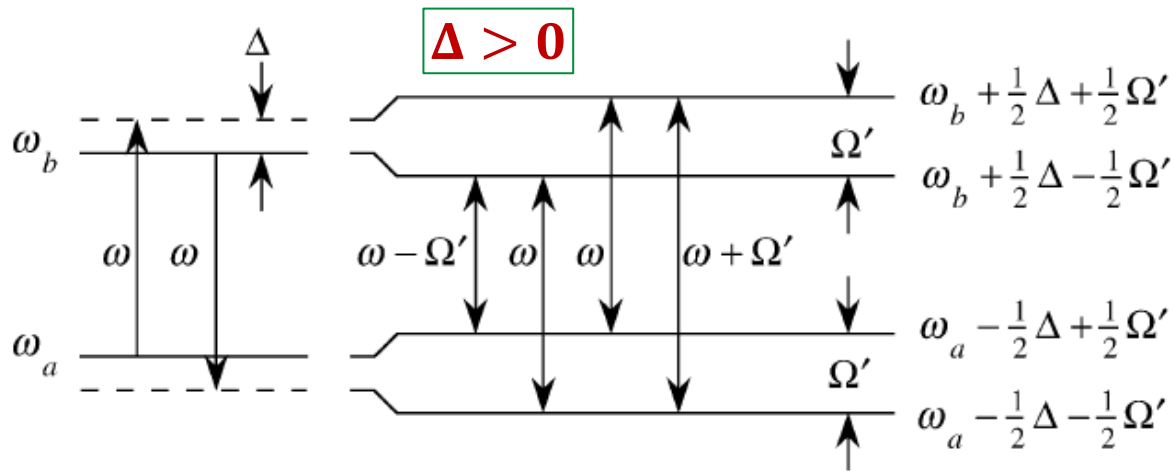
El momento dipolar no solo oscila a ω (si el detuning no es cero) sino también a las "side bands" $\omega + \Omega'$ y $\omega - \Omega'$

Es la solución del sistema de 2 niveles acoplado a un campo tan intenso (intenso significa rápido, o sea antes de que el sistema pierda coherencia) que puede remover cierta población del estado fundamental y llevarla al estado excitado. No se agrega decaimiento, no es estado estacionario



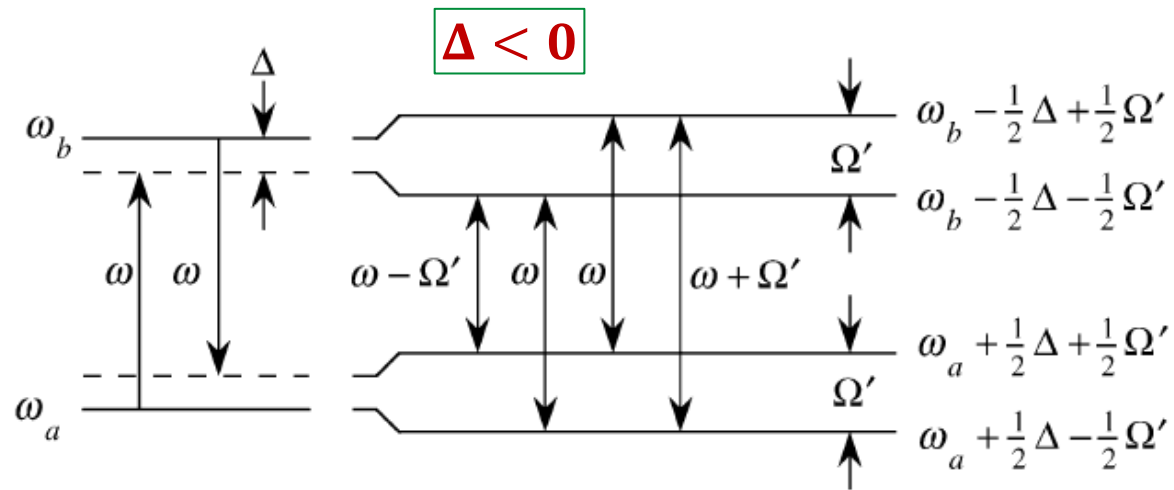
Para ver este efecto el *daphasing* tiene que ser despreciable. La existencia de estas oscilaciones depende de la coherencia del sistema. Si esta coherencia se destruye rápidamente, las oscilaciones no existen y es imposible generar inversión de población en un sistema de 2 niveles

Oscilaciones de Rabi



Lo interesante de este efecto es que por la presencia del campo intenso se modifica el espectro del sistema

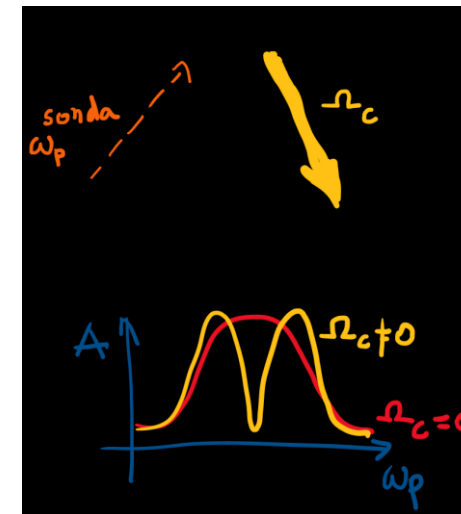
Hay 4 frecuencias de oscilación y los niveles atómicos cambian dinámicamente, por eso se conoce también como efecto Stark dinámico o AC. El sistema sufre un “splitting” de niveles por efecto del campo externo.



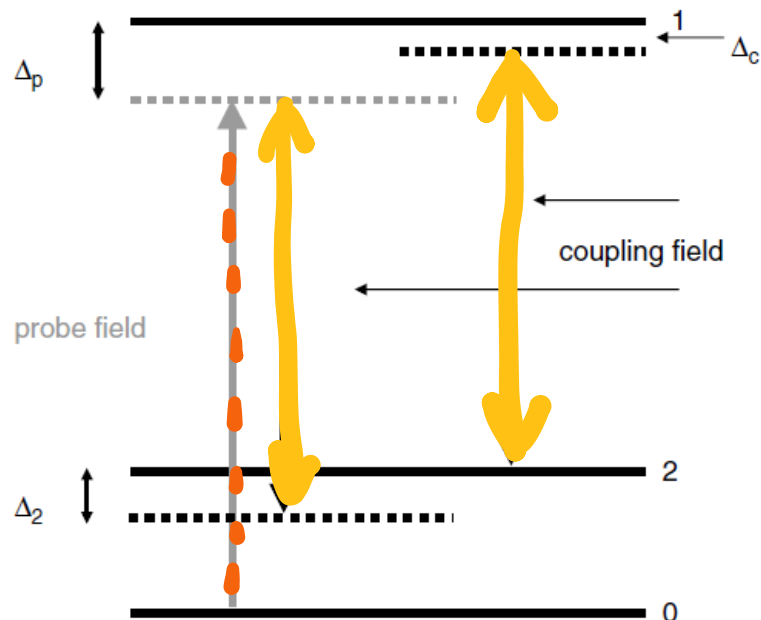
Transparencia inducida electromagnéticamente (EIT)

Se induce con un laser una modificación en la respuesta óptica de un medio atómico, debido a la interferencia cuántica. De esta manera se elimina la absorción y refracción a la frecuencia de resonancia de una transición.

La pregunta es, se puede hacer transparente un medio opaco? Respuesta: sí, con otro laser, potente. Va a haber 2 campos Ω_c y ω_p , el primero de acople muy intenso y el segundo de sonda, débil.



Para analizar este efecto se necesita considerar un esquema de 3 niveles



- El estado 2 tiene la misma paridad que el estado 0 (transiciones prohibidas). Ambos están acoplados al estado 1 que tiene paridad opuesta.
- El campo de acople Ω_c se sintoniza cerca de ω_{12}
- El campo de sonda ω_p escanea las propiedades de la transición 0-1 en presencia de Ω_c
- Se definen parámetros de detuning: $\Delta_p = \omega_{10} - \omega_p$, $\Delta_c = \omega_{12} - \Omega_c$ y $\Delta_2 = \Delta_p - \Delta_c = \omega_{20} - (\omega_p - \Omega_c)$

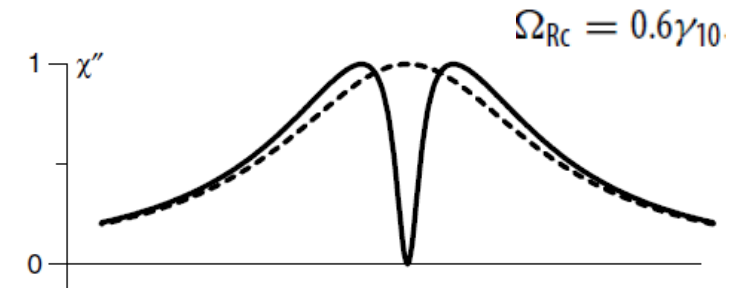
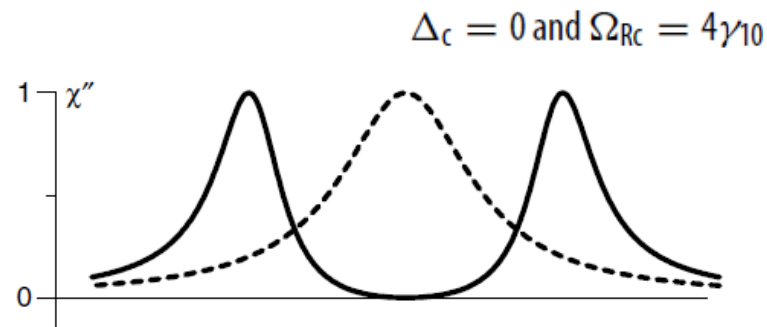
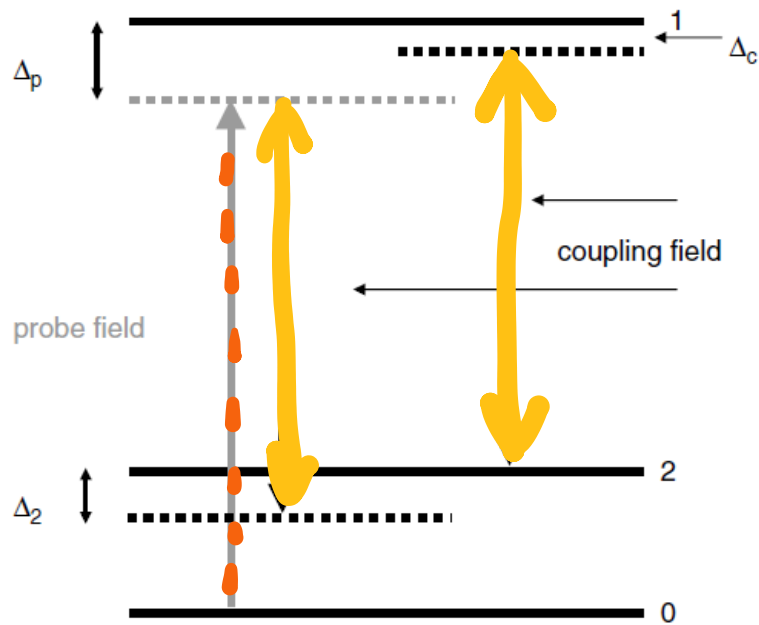
Transparencia inducida electromagnéticamente (EIT)

Hay que escribir 9 ecuaciones para la matriz densidad de este sistema de 3 niveles (con relajacion), 3 para los elementos diagonales y 6 para los no diagonales, pero las importante son 2, las de ρ_{01} y ρ_{02} . Luego de escribir la polarización y extraer la susceptibilidad queda:

$$\chi' = \frac{N |\mu_{01}|^2}{\hbar \epsilon_0 \gamma_{10}} \left[\frac{\gamma_{10} \Delta_p (\Delta_p^2 - (\frac{1}{2} \Omega_{RC})^2)}{|D|^2} \right]$$

$$\chi'' = \frac{N |\mu_{01}|^2}{\hbar \epsilon_0 \gamma_{10}} \left[\frac{\Delta_p^2 \gamma_{10}^2}{|D|^2} \right]$$

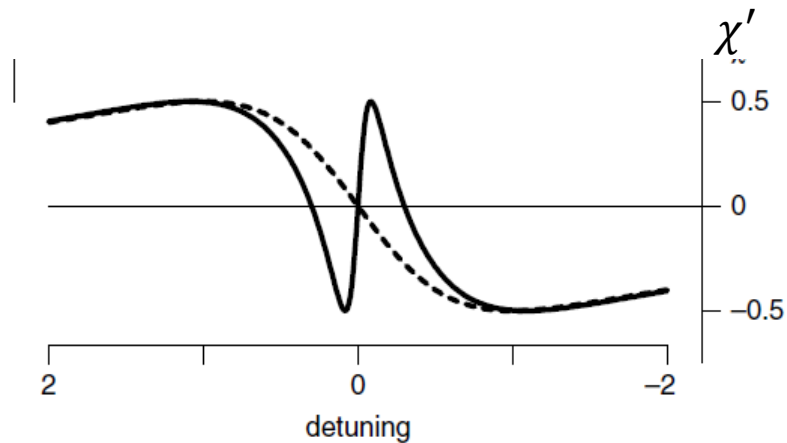
con $|D|^2 = ((\frac{1}{2} \Omega_{RC})^2 - \Delta_p^2)^2 + \Delta_p^2 \gamma_{10}^2$. acá Ω_{RC} es la frec de Rabi



----- sin campo de acople
 ————— con campo de acople

Transparencia inducida electromagnéticamente (EIT)

La otra cosa interesante que pasa es una drástica reducción de la velocidad de grupo en la resonancia, para eso hay que mirar χ'



----- sin campo de acople
———— con campo de acople

$$v_{\text{group}} = \frac{c}{n + \omega \frac{dn}{d\omega}}$$

varia rápido en la resonancia
 $\Rightarrow v_g \rightarrow 0$

luz lenta

Libro New, sección 9.7

y paper M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J.P. Marangos, Rev. Mod. Phys., 77 (2005) 633.