

MULTIPHOTON QUANTUM OPTICS AND QUANTUM STATES OF HIGHER AND HIGH HARMONICS (HHG) AND (ULTRA-) SUBHARMONICS ((U)SubHG) BY NONCENTROSYMMETRIC AND CENTROSYMMETRIC MEDIA

Peter Krampfl^{1*}

¹ ©2011, xxx, xxx, Germany

*Corresponding author.

E-mail: p.krampfl@t-online.de (P. Krampfl).

Received xxxxxx

Accepted for publication xxxxxx

Published xxxxxx

Abstract

For the exact description of nonlinear quantum optical systems, a nonlinear potential model is proposed and the associated nonlinear analytical expressions are provided. The Liouville equation provides for the matrix elements $\hat{\rho}_{nm}$ a system of coupled differential equations for which there is no solution in analytically closed form. Here, a method is proposed and shown how the quantum mechanical Rayleigh-Schrödinger perturbation calculus can be used to arrive at an analytic solution that can be used to accurately describe the nonlinear electron-multiphoton interaction by multiphoton ionization at the molecular level nonlinear system to look. For the nonlinear classical and quantum mechanical hyperpolarizations analytical solutions can be specified. The obtained nonlinear energy equations were modeled by means of singularities and fulfill the singularity equations in an excellent way.

Zur exakten Beschreibung nichtlinearer quantenoptischer Systeme wird ein nichtlineares Potentialmodell vorgeschlagen und die dazugehörigen nichtlinearen analytischen Ausdrücke bereitgestellt. Die Liouville Gleichung liefert für die Matrixelemente $\hat{\rho}_{nm}$ ein System von gekoppelten Differentialgleichungen, für die es in analytisch geschlossener Form keine Lösung gibt. Hier wird eine Methode vorgeschlagen und gezeigt, wie man mithilfe der quantenmechanischen Rayleigh-Schrödinger Störungsrechnung zu einer analytischen Lösung gelangen kann, mit der es möglich ist die nichtlineare Elektron-Multiphotonenwechselwirkung über Multiphotonenionisation auf molekularer Ebene exakt analytisch zu beschreiben und so in ein an sich verschlossenes nichtlineares System zu schauen. Für die nichtlinearen klassischen und quantenmechanischen Hyperpolarisationen können damit analytische Lösungen angegeben werden. Die erhaltenen nichtlinearen Energiegleichungen wurden mittels Singularitäten modelliert und erfüllen die Singularitätsgleichungen in hervorragender Weise.

Keywords: Kondensierte Materie, Photonik, Nichtlineare Optik, Laser, SBHM, SHG, Hohe Harmonische, sehr Hohe Harmonische, (Ultra)Subharmonische, Quantenmechanik, Multiphotonen- Quantenoptik,

1. INTRODUCTION.

Um die gefundenen Ergebnisse weiter in der Tiefe interpretieren und diskutieren zu können, muss das quantenmechanische Pendant dazu untersucht werden. Dazu ist es notwendig, das quantenmechanische nichtlineare Potentialmodell anzupassen. Dazu wird im nächsten Abschnitt zunächst ein neues Potentialmodell vorgeschlagen.

2. AB- INITIO NONLINEAR QUANTUM OPTICSM POTENTIAL

Photonen können mit den Maxwell- Gleichungen beschrieben werden. Für Elektronen muss die Wellengleichung herangezogen werden. Zunächst wird das Elektron im nichtlinearen Quanten Regime betrachtet. Hierfür muss ein nichtlineares Quanten- Potential entwickelt werden. In nichtdissipativer Umgebung kann dieses Potential mittels einer nichtlinearen Delta Distribution modelliert werden. In Abhängigkeit der Materiesymmetrie des gebundenen Elektrons ergeben sich folgende Potentiale:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{V}}(\tilde{x}) &= -\mathcal{V}_0^{\pm} \delta(\tilde{x}) \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)} \rightarrow \\ \hat{\mathcal{V}}(\tilde{x}) &= -(\mathcal{V}_0^{\pm} + \mathcal{V}^{nl}) \delta(\tilde{x}) \\ &= -\mathcal{V}_0^{\pm} \delta(\tilde{x}) (\tilde{x} + \tilde{x}^{nl}) \end{aligned} \tag{1}$$

mit

$$\mathcal{V}_0^{\pm} > 0, \quad \tilde{x} \in \mathbb{R} \tag{2}$$

Dieses attraktive Delta Potential ist kurzreichweitig. Es beschreibt den nichtlinearen Bindungsanteil des Atoms. Nichtlineare Streulösungen existieren ebenfalls, da das Potential spatial begrenzt ist und gestreute Partikel deren Wellenlängen viel größer sind als die Reichweite des Potentials ebenfalls entstehen können.

Die normierten Eigenfunktionen im nichtlinearen Regime werden damit berechnet zu:

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e} \varphi''(q) - V_0 \delta(q) \varphi(q) = E \varphi(q) \dots\dots\dots \tag{3}$$

3. DENSITY MATRIX FORMALISM - SCHRÖDINGER PICTURE

Die Systemdynamik wird nun mittels Dichtematrixformalismus detailliert beschrieben.

Nachfolgend werden hierzu einige grundlegende Konzepte dargestellt. Darin wird der Zustand des Systems durch den Dichteoperator beschrieben – ein Mitglied der Klasse von positiven Operatoren (C*- Algebra) im Hilbert Raum, welches mit dem mit dem System verbunden ist. Zweckmäßigerweise wird dieser Dichteoperator im Konfigurationsraum definiert:

$$\hat{\rho}(x, x') = \langle x | \hat{\rho} | x' \rangle \tag{4}$$

Während der Zustand des Systems definiert wird durch den Dichteoperator, wird ihre Dynamik beschrieben durch einen Superoperator welcher Operatoren im Hilbert- Raum in andere Operatoren abbildet. Diese Konstruktion definiert einen Hilbert- Raum in welcher die Operatoren Vektoren sind und das Skalarprodukt erklärt ist durch

$$\langle \hat{\rho} \cdot \hat{\mathbf{A}} \rangle = tr \{ \hat{\rho} \hat{\mathbf{A}} \} \tag{5}$$

Observablen die verbunden sind mit einem hermiteschen Operator auf dem Hilbert Raum des Systems sind definiert gemäß:

$$\langle \hat{\mathbf{A}} \rangle = tr \{ \hat{\rho} \hat{\mathbf{A}} \} \tag{6}$$

Die präzisen Zustände sind aufgrund der Wechselwirkung zwischen den Atomen nicht mehr bekannt. In diesem Fall kann der Dichtematrix- Formalismus benutzt werden um das System statistisch zu beschreiben.

$$\hat{\rho}_{nm} = \sum_s p(s) C_m^{s*} C_n^s = \overline{C_m^* C_n} \tag{7}$$

wobei die Quantität $p(s)$ die Wahrscheinlichkeit in klassischer und nicht in quantenmechanischer Hinsicht zu deuten ist, mit der sich das System im Zustand s befindet. Damit reflektiert p(s) unsere Wissenslücke über den aktuellen quantenmechanischen Zustand des Systems, wobei es ist keine Konsequenz von der Sorte der quantenmechanischen Unschärferelation darstellt. Weiters ist C_n^s die Wahrscheinlichkeitsamplitude ($C_m^* =$ Hermitesch zu C_n^s) und $\overline{C_m^* C_n}$ als Durchschnitt über alle möglichen Ensemblezustände mit m, n als Indizes über alle Energieeigenzustände des Ensembles. Auf diesem diskreten

Hilbertraum wird der Dichteoperator als Matrix repräsentiert:
Im Fourierdiskretisierungsschema wird $\hat{\rho}$ dargestellt mit:

$$\hat{\rho} \equiv \{\hat{\rho}_{ij}\} \equiv \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} & \cdots \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} & \cdots \\ \vdots & \vdots & \ddots \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \overline{C_a C_a^*} & \overline{C_a C_b^*} & \overline{C_a C_c^*} & \cdots \\ \overline{C_b C_a^*} & \overline{C_b C_b^*} & \cdots & \cdots \\ \overline{C_c C_a^*} & \vdots & \ddots & \ddots \end{pmatrix} \quad (8)$$

Die Diagonalelemente der Matrix $\rho_{nn} \equiv \langle n | \rho | n \rangle = \langle |b_n|^2 \rangle$ sind hierbei stets reell und stellen die Populationen der Energieeigenzustände $|n\rangle$ dar, während die komplexen Nichtdiagonalelemente $\rho_{mn} \equiv \langle m | \rho | n \rangle = \langle b_m b_n^* \rangle$ die Kohärenzen zwischen den Zuständen n und m darstellen, in der Annahme das $\rho_{nm} \neq 0$ ist, wenn sich das System in einer kohärenten Superposition befindet mit den Energieeigenwerten n und m . Ferner sind die Nichtdiagonalelemente, unter gewissen Umständen, proportional zum induzierten elektrischen Dipolmoment des Atoms. Unter Kopplung des Dichteoperators mit der zeitabhängigen Schrödingergleichung der Wellenfunktion ψ_s gelangt man zur Bewegungsgleichung für die Dichtematrix, der sogenannten Liouville Gleichung oder von Neumann-Gleichung im Schrödingerbild:

$${}^s \dot{\rho}_{nm} = -i\omega_{nm} \rho_{nm} - \frac{i}{\hbar} [\hat{\mathcal{V}}, {}^s \hat{\rho}]_{nm} - \gamma_{nm} ({}^s \rho_{nm} - {}^s \rho_{nm}^{eq}) \quad (9)$$

mit $\hat{\mathcal{V}}$ als Wechselwirkungshamilton, ${}^s \hat{\rho}$ als Dichtematrixoperator im Schrödingerbild. Dabei wurde der Kommutator von $\hat{\mathcal{H}}_0$ und $\hat{\rho}$ mit der Entwicklung $[\hat{\mathcal{H}}, \hat{\rho}]_{nm} = [\hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{V}}(t), \hat{\rho}]_{nm}$ in $\hat{\mathcal{V}}$ überführt. Die dissipative Umgebung wird hinreichend durch den eingeführten phänomenologischen Dämpfungsterm $\gamma_{nm} ({}^s \rho_{nm} - {}^s \rho_{nm}^{eq})$ berücksichtigt, welcher die Relaxation von ρ_{nm} in den Grundzustand ρ_{nm}^{eq} mit der Zerfallsrate γ_{nm} bewirkt.

$$\gamma_{nm} = \frac{1}{T_2} = \frac{1}{2} (\Gamma_n + \Gamma_m) + \gamma_{nm}^{col} \quad (10)$$

Mit der Vakuum- Theorie lässt sich die longitudinale und transversale Relaxation anschreiben mit:

$$\gamma_{\parallel} = \gamma_{nm}^{col} = \gamma \quad (11)$$

und

$$\gamma_{\perp} = \frac{1}{2} \Gamma_{nm} = \frac{1}{2} (\Gamma_n + \Gamma_m) = \frac{1}{2} \gamma \quad (12)$$

Die Zerfallsrate γ_{nm} ist abhängig von der Materiesymmetrie und von der Anzahl der Photonenquanten, welche mit der Materie wechselwirken (Multiphotonen- Materie Wechselwirkung) und ergibt sich aus $\gamma_{nm} \rightarrow \gamma_{nm}^{\alpha, \beta, \alpha \beta}$.

4. KINETICS OF THE DENSITY MATRIX

In diesem Abschnitt wird die nichtlineare molekulare Hyperpolarisation über die Dichtematrix mithilfe des konstruierten nichtlinearen Potentials bestimmt. Dazu soll die Liouville Gleichung betrachtet werden. Diese liefert für die Matrixelemente $\hat{\rho}_{nm}$ ein System von gekoppelten Differentialgleichungen, für die es in analytisch geschlossener Form keine Lösung gibt. Es ist aber möglich, eine Lösung mithilfe der quantenmechanischen Rayleigh- Schrödinger Störungsrechnung zu suchen, welche die Lösung der Eigenwertgleichung als Funktion des Parameters λ ausgibt. Dazu wird die Störung mit $\lambda \in [0, 1] \in \mathbb{R}$ variabel angesetzt:

$$\rho_{nm} = \rho_{nm}^{(0)} + \lambda \rho_{nm}^{(1)} + \lambda^2 \rho_{nm}^{(2)} + \lambda^3 \rho_{nm}^{(3)} + \dots + \lambda^N \rho_{nm}^{(N)} \quad (13)$$

Für $\rho_{nm}^{(0)}$ befindet sich das System im thermodynamischen Gleichgewicht. Substituiert in die von Neumann- Gleichung liefert in der Störungstheorie erster Ordnung sukzessive Näherungen für die $\rho_{nm}^{(N)}$ der Form.

$$\dot{\rho}_{nm}^{(q)} = -i\omega_{nm} \rho_{nm}^{(q)} - \frac{i}{\hbar} [\lambda^q \hat{\mathcal{V}}, \hat{\rho}^{(q-1)}]_{nm} - \gamma_{nm} (\rho_{nm}^{(q)} - \rho_{nm}^{eq}) \quad (14)$$

Mit $\lambda^0 = 0$ und $\lambda^1 = 1$ erhalten wir die analytischen Ausdrücke N-ter Ordnung.

$$\dot{\rho}_{nm}^{(0)} = -i\varpi_{nm}\rho_{nm}^{(0)} - \gamma_{nm}(\rho_{nm}^{(0)} - \rho_{nm}^{eq}) \quad (15)$$

$$\dot{\rho}_{nm}^{(1)} = -i\varpi_{nm}\rho_{nm}^{(1)} - \frac{i}{\hbar}[\mathcal{V}, \hat{\rho}^{(0)}]_{nm} - \gamma_{nm}(\rho_{nm}^{(1)} - \rho_{nm}^{eq}) \quad (16)$$

$$\dot{\rho}_{nm}^{(2)} = -i\varpi_{nm}\rho_{nm}^{(2)} - \frac{i}{\hbar}[\mathcal{V}, \hat{\rho}^{(1)}]_{nm} - \gamma_{nm}(\rho_{nm}^{(2)} - \rho_{nm}^{eq}) \quad (17)$$

$$\dot{\rho}_{nm}^{(3)} = -i\varpi_{nm}\rho_{nm}^{(3)} - \frac{i}{\hbar}[\mathcal{V}, \hat{\rho}^{(2)}]_{nm} - \gamma_{nm}(\rho_{nm}^{(3)} - \rho_{nm}^{eq}) \quad (18)$$

⋮

$$\dot{\rho}_{nm}^{(N)} = -i\varpi_{nm}\rho_{nm}^{(N)} - \frac{i}{\hbar}[\mathcal{V}, \hat{\rho}^{(N-1)}]_{nm} - \gamma_{nm}(\rho_{nm}^{(N)} - \rho_{nm}^{eq}) \quad (19)$$

Die erste Gleichung beschreibt die Zeitentwicklung des Systems in Abwesenheit von irgendeinem externen optischen Feld. Die stationäre Lösung erhalten wir mit $\rho_{nm}^{(0)} = \rho_{nm}^{eq}$, wobei $\rho_{nm}^{eq} = 0$ für $m \neq n$. Zur Lösung des nichtlinearen quantenoptischen Problems ist die nachfolgend formulierte nichtlineare Eigenwertgleichung zu lösen

$$\begin{aligned} \varphi''(q) + k^2(q)\varphi(q) &= 0 \\ \varphi''(q) + k^2(q)\varphi(q) + \alpha[\varphi(q)]^2 \mp \beta[\varphi(q)]^3 &= 0 \end{aligned} \quad (20)$$

bzw. unter Berücksichtigung der Wärmeverluste einer dissipativen Orbitalresonanzwechselwirkung mit Photonen

$$\begin{aligned} \varphi''(q) + 2\gamma\varphi'(q) + k^2(q)\varphi(q) + \alpha[\varphi(q)]^2 \\ \mp \beta[\varphi(q)]^3 &= 0 \end{aligned} \quad (21)$$

wobei gilt:

$$k^2(q) = 2m/\hbar^2 (E \pm \delta E - V(q)) \quad (22)$$

das heißt k enthält nun ein regelrechtes Energiespektrum, ein diskretes in Quantensystemen. Die exakten molekularen

Hyperpolarisierbarkeiten und Suszeptibilitäten können über die Dichtematrix bestimmt werden. Dieses Verfahren ist leicht auf beliebig hohe Ordnungen anwendbar. Die Dichtematrix im Falle der 2. Ordnung auf der Basis des atomaren 3-Niveausystems mit den Zuständen $|g\rangle$, $|l\rangle$, $|e\rangle$ können wir schreiben:

$$[\hat{\mathcal{L}}^{l,s}, \hat{\rho}^{(q)}]_{eg} = -\sum_l (\boldsymbol{\mu}_{el}\rho_{lg}^{(q)} - \rho_{el}^{(q)}\boldsymbol{\mu}_{lg}) \cdot \tilde{\mathbf{E}}(t') \quad (23)$$

für monochromatische photonische Felder wählen wir $\hat{\rho}^{(1)}$; $q = 2$ und finden keine aktivierten nichtlineare Effekte:

$$\begin{aligned} [\hat{\mathcal{L}}^{l,s}, \hat{\rho}^{(1)}] = & -\hbar^{-1} \sum_{\nu} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{\nu\nu}^{(0)}) \times \sum_{pq} \frac{[\hat{\boldsymbol{\mu}}_{m\nu}\mathbf{E}(\varpi_q)][\hat{\boldsymbol{\mu}}_{\nu m}\mathbf{E}(\varpi_p)]}{(\varpi_{lm} - \varpi_p) - i\gamma_{lm}} e^{-i(\varpi_p + \varpi_q)t} \\ & + \hbar^{-1} \sum_{\nu} (\rho_{\nu\nu}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \times \sum_{pq} \frac{[\hat{\boldsymbol{\mu}}_{\nu m}\mathbf{E}(\varpi_q)][\hat{\boldsymbol{\mu}}_{m\nu}\mathbf{E}(\varpi_p)]}{(\varpi_{m\nu} - \varpi_p) - i\gamma_{m\nu}} e^{-i(\varpi_p + \varpi_q)t} \end{aligned} \quad (24)$$

Hierbei ergibt sich die Charakteristik eines linearen Systems, da ein einzelnes eingestrahletes Feld, egal wie stark es mit dem Atom wechselwirken kann, keine nichtlinearen Effekte aktiviert. Dazu ist ein zweites separates Feld zwingend erforderlich. Im Falle von Multiphotonenionisation mit mehr als einem Photon erhalten wir nichtlineare Effekte welches durch folgendes entwickelte Integral berücksichtigt wird in Form von.

$$\rho_{nm}^{(2)} = e^{-(i\varpi_{nm} + \gamma_{nm})t} \int_{-\infty}^t dt' \frac{-i}{\hbar} [\hat{\mathcal{L}}^{nl,s}(t'), \hat{\rho}^{(1)}]_{nm} e^{(i\varpi_{nm} + \gamma_{nm})t'} \quad (25)$$

5. MULTIPHOTONIC QUANTUM OPTICS N.Z.S. & Z.S. MATTER

Um die aktivierten Nichtlinearitätsprozesse zu berücksichtigen müssen wir das atomare System unter Berücksichtigung des effektiven nichtlinearen Potentials formulieren. Dazu wird der nichtlineare Hamiltonoperator der Form $\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{V}}(t)^{nl}$ mit einer zeitlich periodischen Störung der Form $\hat{\mathcal{V}}(t) = \hat{\boldsymbol{\mu}} \cdot \sum_{\xi} \mathbf{E}(\varpi_{\xi}) e^{-i\varpi_{\xi}t} + c.c. = \hat{\boldsymbol{\mu}} \cdot \mathbf{E}(\varpi_p) e^{-i\varpi_p t} + \mathbf{E}(\varpi_q) e^{-i\varpi_q t} + c.c.$ zugrunde gelegt. Die Korrektur der nichtlinearen Energieeigenwerte nichtentarteter Niveaus beliebiger Ordnung erfolgt mit

$$|E_n^{(p)}\rangle = \sum_m \int |E_m^{(0)}\rangle \frac{\langle E_m^{(0)} | \hat{\mathcal{H}}^{b,nl} | E_n^{(p-1)} \rangle}{E_n^{(0)} - E_m^{(0)}} - \sum_{j=1}^p E_n^{(j)} \sum_{m \neq n} \int |E_m^{(0)}\rangle \frac{\langle E_m^{(0)} | E_n^{(p-j)} \rangle}{E_n^{(0)} - E_m^{(0)}}$$

mit $E_n^{(0)} = \hbar\omega(n + \frac{1}{2})$, wobei für die Berechnung der nichtlinearen Korrektur des Zustandes nichtentarteter Niveaus

$$|\psi_n^{(korrr)}\rangle = |\phi_n\rangle + \sum_{p \neq n} \sum_i \frac{|\langle \phi_p^i | \hat{\mathcal{H}}^{s,nl} | \phi_n \rangle|^2}{E_n^{(0)} - E_p^{(0)}} |\phi_p^i\rangle + \mathcal{O}(\lambda^2)$$

zugrundegelegt wird. Unter Berücksichtigung des Störterms mit $\hat{q}^m = \sqrt{2}^{-m} (\hat{a}^\dagger + \hat{a})^m$ mit \hat{a}^\dagger als Vernichtungs- und \hat{a} als Erzeugungsoperator lässt sich mithilfe der Kommutatortheorie der nichtlineare Hamiltonoperator für zentro- und nichtzentrosymmetrische Materie anschreiben gemäß:

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_1^{s}(\tilde{x})^{nl,s} &= \frac{1}{2} m_e \omega_0^2 \tilde{q}^2 + \frac{1}{3} m_e \alpha \tilde{q}^3, \\ \hat{\mathcal{H}}_1^{b}(\tilde{x})^{nl,b} &= \frac{1}{2} m_e \omega_0^2 \tilde{q}^2 - \frac{1}{4} m_e \beta \tilde{q}^4 \end{aligned} \quad (26)$$

und

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_0^s &= -\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{d^2}{dq^2} + \frac{1}{2} m_e \omega_0^2 \tilde{q}^2 \equiv \hbar\omega(\hat{n} + \frac{1}{2}) = (\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2}), \\ \hat{\mathcal{H}}_0^b &= -\frac{\hbar^2}{2m_e} \frac{d^2}{dq^2} - \frac{1}{4} m_e \beta \tilde{q}^4 \equiv \hbar\omega(\hat{n} + \frac{1}{2}) = (\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2}) \end{aligned} \quad (27)$$

mit

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_1^s &= \frac{\lambda \alpha m_e}{3 \cdot 2^{3/2}} (\hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger) \\ &= \frac{\lambda \alpha m_e}{3 \cdot 2^{3/2}} (\hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger - \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger + (1 + \hat{a}^\dagger \hat{a}) \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{a} (1 + \hat{a}^\dagger \hat{a})) \\ &= \frac{\lambda \alpha m_e}{3 \cdot 2^{3/2}} (\hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger - \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{a} + \hat{a} + \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a}) \\ &= \frac{\lambda \alpha m_e}{3 \cdot 2^{3/2}} (\hat{a}^{\dagger 3} + \hat{a}^3 + 3(\hat{n} \hat{a} + \hat{a} \hat{n}) + 3\hat{n} \hat{a}^\dagger) \end{aligned} \quad (28)$$

wobei die Kommutatorrelationen $[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = 1$, $[\hat{n}, \hat{a}] = -\hat{a}$, $[\hat{n}, \hat{a}^\dagger] = \hat{a}^\dagger$ genutzt wurden. Die Korrektur der nichtlinearen Energieeigenwerte nichtentarteter Niveaus in zweiter Ordnung erfolgt mittels nichtlinearem Hamiltonoperator

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_1^{s,nl} &= \frac{\lambda \alpha m_e}{3 \cdot 2^{3/2}} \{ \langle n-1 | \hat{\mathcal{H}}_1^{s,nl} | n \rangle, \langle n+1 | \hat{\mathcal{H}}_1^{s,nl} | n \rangle, \langle n-3 | \hat{\mathcal{H}}_1^{s,nl} | n \rangle, \langle n+3 | \hat{\mathcal{H}}_1^{s,nl} | n \rangle \} \\ &+ \frac{\lambda \alpha m_e}{16} \{ \langle n-4 | \hat{\mathcal{H}}_1^{s,nl} | n \rangle, \langle n+4 | \hat{\mathcal{H}}_1^{s,nl} | n \rangle \} \end{aligned} \quad (29)$$

und nichtlinearer Orbitaldeformation

$$\begin{aligned} \langle \phi_i | \hat{q}^{nl} | \phi_i \rangle &= \left(\frac{\hbar}{2m_e \omega} \right)^{3/2} \{ \langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger | n \rangle + \langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle + \langle n | \hat{a} \hat{a}^\dagger | n \rangle + \langle n | \hat{a} \hat{a} | n \rangle + \langle n | \hat{a} \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle + \langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle \} \\ &= \left(\frac{\hbar}{2m_e \omega} \right)^{3/2} \{ \langle n | \hat{a}(\hat{a}-1) | n \rangle + \langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle + \langle n | \hat{a}(\hat{a}+1) | n \rangle + \langle n | (\hat{a}+1)(\hat{a}+2) | n \rangle + \langle n | (\hat{a}+1)\hat{a} | n \rangle + \langle n | \hat{a} | n \rangle \} \end{aligned} \quad (30)$$

Mit der zugrundegelegten Distribution $\langle m | n \rangle = \delta_{mn}$ ergibt sich aufgrund der Kommutatorsymmetrie eine verschwindende Korrektur in erster Näherung für Oberflächen. Somit ergeben sich keine Energie- und auch keine Zustandskorrekturen für Oberflächen in der Näherung kleiner Größen erster Ordnung weil gilt:

$$|\psi_n^{(1)}\rangle = |\phi_n\rangle + \sum_{m \neq n} |\psi_m^{(0)}\rangle \frac{\langle \psi_m^{(0)} | \hat{\mathcal{H}}^{s,nl} | \psi_n^{(0)} \rangle}{E_n^{(0)} - E_m^{(0)}} = \sum_{m \neq n} |\psi_m^{(0)}\rangle \frac{\langle m | \hat{\mathcal{H}}^{s,nl} | n \rangle^{(0)}}{E_n^{(0)} - E_m^{(0)}} \quad (31)$$

mit

$$\langle m | \hat{\mathcal{H}}^{s,nl} | n \rangle^{(0)} = \frac{\alpha \hbar}{6\omega} \sqrt{\left(\frac{\hbar}{2m_e \omega} \right)^3} \langle m | (\hat{a}^2 + \hat{a}^{\dagger 2}) | n \rangle^{(0)} \quad (32)$$

folgt zudem

$$\begin{aligned} |\psi_n^{(1)}\rangle &= \frac{\alpha \sqrt{\hbar}}{12\sqrt{2}\sqrt{m_e}\sqrt{\omega^5}} \{ (x_{n,n-2}^3) \sqrt{n(n-1)} + (x_{n,n+2}^3) \sqrt{(n+1)(n+2)} \} \\ &= \frac{\alpha \sqrt{\hbar} \sqrt{\omega^{-5}}}{12\sqrt{2}\sqrt{m_e}} \{ \sqrt{n(n-1)} |n-2\rangle^{(0)} - \sqrt{(n+1)(n+2)} |n+2\rangle^{(0)} \} \end{aligned} \quad (33)$$

$$\begin{aligned} |^{(0)}\langle m | \hat{\mathcal{H}}^{s,nl} | n \rangle^{(0)}|^2 &= \frac{\alpha^2 \hbar}{288m_e \omega^5} \{ n(n-1)(n-2)(x_{n,n-2}^3)^2 + (n+1)(n+2)(n+3)(x_{n,n+2}^3)^2 \} \\ |^{(0)}\langle m | \hat{\mathcal{H}}^{s,nl} | n \rangle^{(0)}|^2 &= \frac{\alpha^2 \hbar}{288m_e \omega^5} \{ n(n-1)(n-2)|n-3\rangle^{(0)} + (n+1)(n+2)(n+3)|n+3\rangle^{(0)} \} \end{aligned} \quad (34)$$

Die Energiekorrektur für nichtzentrosymmetrische Materie ergibt sich damit in 2. Näherung kleiner Größen zu:

$$E_n^{(korrr)s} = E_n^{(0)} + E_n^{(2)s} = \hbar\omega(n + \frac{1}{2}) + \frac{\alpha^2}{288m_e \omega^6} \{ 2n^3 + 3n^2 + 13n + 6 \} \quad (35)$$

6. NONLINEAR QUANTUM SUSCEPTIBILITY BY N.Z.S. MATTER

Integration unter Berücksichtigung von zwei Fourierkomponenten liefert

$$\rho_{nm}^{(2)} \equiv \sum_{\nu} \sum_{pq} \left(e^{-i(\varpi_p + \varpi_q)t} \right) \times \mathcal{K}_{nm\nu} \quad (36)$$

mit

$$\begin{aligned} \mathcal{K}_{nm\nu} &= \left\{ \frac{(\hat{\rho}_{mm}^{(0)} - \hat{\rho}_{\nu\nu}^{(0)})}{\hbar^2} \frac{[\hat{\mathbf{m}}_{\nu\nu} \mathbf{E}(\varpi_q) + c.c.][\hat{\mathbf{m}}_{\nu m} \mathbf{E}(\varpi_p)]}{[(\varpi_{nm} - \varpi_p - \varpi_q - \Xi) - i\gamma_{nm}][(\varpi_{\nu m} - \varpi_p) - i\gamma_{\nu m}]} \right. \\ &\left. - \frac{(\hat{\rho}_{\nu\nu}^{(0)} - \hat{\rho}_{mm}^{(0)})}{\hbar^2} \frac{[\hat{\mathbf{m}}_{\nu m} \mathbf{E}(\varpi_q) + c.c.][\hat{\mathbf{m}}_{\nu\nu} \mathbf{E}(\varpi_p)]}{[(\varpi_{nm} - \varpi_p - \varpi_q - \Xi) - i\gamma_{nm}][(\varpi_{\nu m} - \varpi_p) - i\gamma_{\nu m}]} \right\} \end{aligned} \quad (37)$$

wobei in Abhängigkeit ihrer Kristallsymmetrie gilt:

$$\begin{aligned} \delta\mathcal{E} &= \Xi = \varpi_{nl}^{\alpha,\beta\pm,\alpha\beta\pm} \\ &= \hbar \left\{ \varpi_{\alpha,\beta\pm,\alpha\beta\pm}^{(2)} + \dots + \varpi_{\alpha,\beta\pm,\alpha\beta\pm}^{(n-1)} + \varpi_{\alpha,\beta\pm,\alpha\beta\pm}^{(n)} \right\} \end{aligned} \quad (38)$$

Damit kann man sofort auf ihre jeweils zugehörigen charakteristischen Energiekorrekturen in Abhängigkeit ihrer Materiesymmetrie und der Ordnung der Multiphotonen-Materie Wechselwirkung schließen mit

$$\delta\mathcal{E} = \Xi = \hbar \varpi_{nl}^{\alpha\beta\pm} = \hbar \left\{ \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(2)} + \dots + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n-1)} + \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)} \right\}$$

Diese Modellbildung berücksichtigt die notwendige Forderung, dass erst durch Multiphotonenionisation unter Beteiligung von mindestens 2 Photonen sich eine Korrektur ergibt und dadurch nichtlineare Effekte aktiviert werden. Damit ist es möglich die rein an der Oberfläche erzeugten Materieantworten von denen des Bulks selektiv zu unterscheiden, was bislang nicht möglich war. Damit lässt sich die exakte nichtlineare molekulare Suszeptibilität 2. Ordnung der Summenfrequenzzeugung und Differenzfrequenzzeugung in analytischer Form für ein Ensemble unabhängiger Moleküle der Dichte N in Dipolnäherung, auf einfache Weise mit den Eigenfunktionen $\langle m |$ und den zugehörigen Eigenwerten E_m berechnen und mit Feynman-Diagrammen graphisch darstellen. Das Ergebnis beschreibt in dieser Formulierung ein dreistufiges atomares AtomSystem über alle Populationsdifferenzen der Zustände m und n über v für die nichtlineare Suszeptibilität in dissipativer Umgebung.

$$\begin{aligned} \chi_{ij}^{(2)}(\varpi_p + \varpi_q, \varpi_q, \varpi_p) &= \frac{N}{\hbar^2} \sum_{nm} \\ &\times \left\{ \left(\hat{\rho}_{nm}^{(0)} - \hat{\rho}_{nm}^{(0)} \right) \frac{[\hat{\mu}_{nm}^i][\hat{\mu}_{nm}^j][\hat{\mu}_{nm}^k]}{[(\varpi_{nm} - \varpi_p - \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{nm}][(\varpi_{nm} - \varpi_p) - i\gamma_{nm}]} \right. \\ &\left. - \left(\hat{\rho}_{nm}^{(0)} - \hat{\rho}_{nm}^{(0)} \right) \frac{[\hat{\mu}_{nm}^i][\hat{\mu}_{nm}^j][\hat{\mu}_{nm}^k]}{[(\varpi_{nm} - \varpi_p - \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{nm}][(\varpi_{nm} - \varpi_p) - i\gamma_{nm}]} \right\} \end{aligned} \quad (39)$$

Um die vollständigen Terme zu erhalten wird hierbei eine Summation über alle Zustände (Kopplungen, Anfangswerte) durchgeführt und die intrinsische Permutationssymmetrie berücksichtigt. Für den Fall unterschiedlicher Einstrahlungsfrequenzen $\varpi_p \neq \varpi_q$ erhalten wir mit den antiresonanten Beiträgen 4 Terme für die Summenfrequenzzeugung (SFG) und 4 Terme der Differenzfrequenzzeugung (DFG).

$$\begin{aligned} \chi_{ij}^{(2)}(\varpi_p + \varpi_q, \varpi_q, \varpi_p) &= -\frac{N}{2! \hbar^2} \sum_{eig} \left(\hat{\rho}_{ee}^{(0)} - \hat{\rho}_{ee}^{(0)} \right) \\ &\times \left\{ \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} - \varpi_p - \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} - \varpi_p) - i\gamma_{ge}]} \right. \\ &+ \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} - \varpi_p - \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} - \varpi_q) - i\gamma_{ge}]} \\ &+ \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} + \varpi_p + \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} + \varpi_p) + i\gamma_{ge}]} \\ &\left. + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} + \var�_p + \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} + \varpi_q) + i\gamma_{ge}]} \right\} \end{aligned} \quad (40)$$

$$\begin{aligned} \chi_{ij}^{(2)}(\varpi_p + \varpi_q, \varpi_q, \varpi_p) &= -\frac{N}{2! \hbar^2} \sum_{eig} \left(\hat{\rho}_{ee}^{(0)} - \hat{\rho}_{ee}^{(0)} \right) \\ &\times \left\{ \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} - \varpi_p - \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} + \varpi_p) + i\gamma_{ge}]} \right. \\ &+ \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} - \varpi_p - \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} + \varpi_q) + i\gamma_{ge}]} \\ &+ \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} + \varpi_p + \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} - \varpi_p) - i\gamma_{ge}]} \\ &\left. + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{ei}^j][\hat{\mu}_{ge}^k]}{[(\varpi_{ge} + \varpi_p + \varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{ge}][(\varpi_{ge} - \varpi_q) - i\gamma_{ge}]} \right\} \end{aligned} \quad (41)$$

Die analytischen Ausdrücke für die Suszeptibilität lassen sich in dem 3 Zustands- System interpretieren. Es wechselwirken nur die Energieniveaus a , b und c merklich mit dem optischen Feld. Das angelegte Feld mit der Frequenz ϖ_1 ist nahe der Resonanzstelle, des $a \rightarrow b$ Übergangs. Das angelegte Feld mit der Frequenz ϖ_2 ist nahe der Resonanzstelle des $b \rightarrow c$ Übergangs und die generierte Feldfrequenz $\varpi_3 = \varpi_1 + \varpi_2$ ist nahe der Resonanzstelle des $c \rightarrow a$ Übergangs. Die generierte Intensität ist umso intensiver besser die resonanten Nennerfunktionen mit den atomaren Zuständen übereinstimmen. Wir erhalten Summationsterme über die Populationen. Die Terme werden dabei / in Abhängigkeit der Populationen ausgedrückt, und berücksichtigen dabei, dass nur der Grundzustand besetzt ist, d. h. $\rho_{nm}^{(0)} = \rho_{nm}^{(0)} = 0$ mit $\rho_{ll}^{(0)}$ als die Besetzungszahl des Grundzustandes l , μ_{mn}^i das Matrixelement der i -ten Komponenten des Dipoloperators zwischen den Zuständen n und m , die einen energetischen Abstand von $\hbar\varpi_{nm} = E_n - E_m$ haben. Die Kohärenz zwischen den beiden Zuständen zerfällt mit der phänomenologischen Dämpfungskonstanten Γ_{nm} . Für den Spezialfall identischer optischer Einstrahlungsfrequenzen $\varpi_p = \varpi_q$ erhalten wir die Ausdrücke für die Frequenzvervielfachungen und den optischen Gleichanteil DC. Für SHG und DC erhalten wir in Abhängigkeit der Populationsdifferenzen die analytischen Ausdrücke:

SHG

$$\chi_{kji}^{(2)}(2\varpi_q, \varpi_q, \varpi_q) = -\frac{N}{2\hbar^2} \sum_{eig} (\hat{\rho}_{ee}^{(0)} - \hat{\rho}_{gg}^{(0)}) \times \left\{ \begin{aligned} & \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{el}^j][\hat{\mu}_{lg}^k]}{[(\varpi_{eg} - 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{eg}][(\varpi_{lg} - \varpi_q) - i\gamma_{lg}]} \\ & + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{el}^k][\hat{\mu}_{lg}^j]}{[(\varpi_{eg} - 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{eg}][(\varpi_{lg} - \varpi_q) - i\gamma_{lg}]} \\ & + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^j][\hat{\mu}_{el}^i][\hat{\mu}_{lg}^k]}{[(\varpi_{lg} + 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{lg}][(\varpi_{eg} + \varpi_q) + i\gamma_{eg}]} \\ & + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^j][\hat{\mu}_{el}^k][\hat{\mu}_{lg}^i]}{[(\varpi_{lg} + 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{lg}][(\varpi_{eg} + \varpi_q) + i\gamma_{eg}]} \end{aligned} \right\} \quad (42)$$

DC

$$\chi_{kji}^{(2)}(0, \varpi_q, \varpi_q) = -\frac{N}{2\hbar^2} \sum_{eig} (\hat{\rho}_{ee}^{(0)} - \hat{\rho}_{gg}^{(0)}) \times \left\{ \begin{aligned} & \frac{[\hat{\mu}_{ge}^k][\hat{\mu}_{el}^j][\hat{\mu}_{lg}^i]}{[(\varpi_{le} - 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{le}][(\varpi_{ge} + \varpi_q) + i\gamma_{ge}]} \\ & + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^j][\hat{\mu}_{el}^i][\hat{\mu}_{lg}^k]}{[(\varpi_{le} - 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) - i\gamma_{le}][(\varpi_{ge} + \varpi_q) + i\gamma_{ge}]} \\ & + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{el}^j][\hat{\mu}_{lg}^k]}{[(\varpi_{el} + 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{el}][(\varpi_{lg} - \varpi_q) - i\gamma_{lg}]} \\ & + \frac{[\hat{\mu}_{ge}^k][\hat{\mu}_{el}^i][\hat{\mu}_{lg}^j]}{[(\varpi_{el} + 2\varpi_q - \varpi_\alpha^{(2)}) + i\gamma_{el}][(\varpi_{lg} - \varpi_q) - i\gamma_{lg}]} \end{aligned} \right\} \quad (43)$$

wobei die antiresonanten Beiträge mitberücksichtigt wurden. Diese analytischen Ausdrücke zeigen keinen resonanten Übergang, sondern zerfallen in den Grundzustand. Dies kann im Mittel als Fluktuationen um den Grundzustand herum interpretiert werden.

Für die Grundzustandsenergie wird damit insgesamt gefunden:

$$\hat{\mathcal{L}}_0 > 0, \quad \tilde{x} \in \mathbb{R} \quad (44)$$

d. h. dies entspricht dem linearen Fall.

Für höhere Näherungen ergeben sich für die angeregten Zustände Energiekorrekturen, beispielsweise für SHG angegeben, in der Form:

$$\chi_{kji}^{(2)}(2\varpi_q, \varpi_q, \varpi_q) \propto -\frac{N}{2\hbar^2} \sum_{eig} (\hat{\rho}_{ee}^{(0)} - \hat{\rho}_{gg}^{(0)}) \times \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{el}^j][\hat{\mu}_{lg}^k]}{[(\varpi_{eg} - 2\varpi_q + \varpi_{\alpha,SHG}^{(8)}) - i\gamma_{eg}][(\varpi_{lg} - \varpi_q + \varpi_{\alpha,GHG}^{(8)}) - i\gamma_{lg}]} \quad (45)$$

$$\chi_{kji}^{(2)}(2\varpi_q, \varpi_q, \varpi_q) \propto -\frac{N}{2\hbar^2} \sum_{eig} (\hat{\rho}_{ee}^{(0)} - \hat{\rho}_{gg}^{(0)}) \times \frac{[\hat{\mu}_{ge}^i][\hat{\mu}_{el}^k][\hat{\mu}_{lg}^j]}{[(\varpi_{eg} - 2\varpi_q + \Delta E_{SHG}) - i\gamma_{eg}][(\varpi_{lg} - \varpi_q + \Delta E_{GHG}) - i\gamma_{lg}]}$$

Für höhere Näherungen ergeben sich für die angeregten Zustände positive Energiekorrekturen der Form:

$$E = \mathcal{E}_0 + \hbar \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)}$$

$$E = \mathcal{E}_0 + NLO - CORRECTION - COEFFICIENTS \quad (46)$$

$$= -\mathcal{V}_0^{\hat{}} \delta(\tilde{x}) \tilde{x} (\varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)}) = -\mathcal{V}_0^{\hat{}} \delta(\omega) \varpi_{\alpha\beta\pm}^{(n)}$$

Daraus erkennt man sofort, dass die Orts- bzw. Impulsunschärfe durch die nichtlineare Energiekorrektur näher bestimmt werden kann.

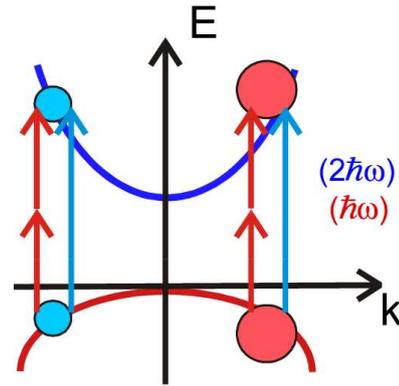


Abbildung 1 zeigt die schematische die asymmetrische Anregung für ein Zwei-Band-System. Die Stärke sowie Richtung der Asymmetrie lassen sich über die Phasenbeziehungen zueinander kohärent kontrollieren.

Aufgrund der Anregung des Systems mit zwei kohärenten Quellen mit den Zentralfrequenzen ω und 2ω werden durch Interferenzphänomene asymmetrische Verteilungen im k -Raum erzeugt. Es kann jetzt angenommen werden, dass durch nichtlineare Skewnesseffekte diese Asymmetrie verursacht wird. Der zu berücksichtigende Asymmetriegrad sowie deren Orientierung lassen sich über die Phasenverschiebung der kohärenten Laserpulse kontrollieren. Der Skewnessbeitrag entspricht dabei dem Energieunterschied wie er beim Übergang vom Gas über die Flüssigkeit zum und Festkörper auftritt. Die Skewnessdifferenz entspricht dabei der aufzubringenden notwendigen Energie zur Umordnung zum Feststoff und zeigt dass hierfür Energiezufuhr durch Dotierung notwendig ist. Im nichtlinearen Regime befindet es sich im höher energetischen Zustand. Betrachtet man die Zustände in solchen Bändern, so ergeben sich im nichtlinearen Regime im Vergleich zu linearen Systemen signifikante Unterschiede wie in Abb. 6 anschaulich dargestellt.

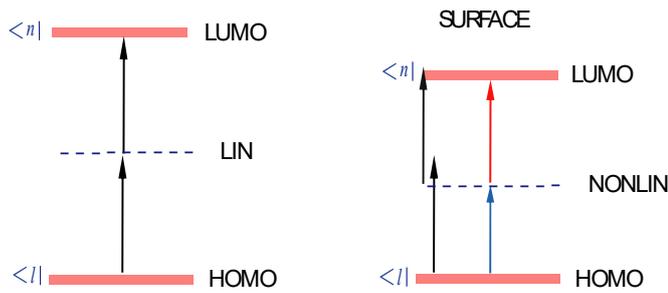


Abbildung 2 zeigt die HOMO und LUMO Grenzzustände / Grenzorbitale für lineare (links) und nichtlineare nichtzentrosymmetrische Systeme (rechts). In nichtlinearen Systemen ist jeweils abhängig von der Materiesymmetrie eine im Vergleich zum linearen System niedrigerer HOMO Zustand für nichtzentrosymmetrische Materie zu erwarten.

7. NONLINEAR QUANTUM SUSZEPTIBILITY BY N.Z.S. AND Z.S. MATTER

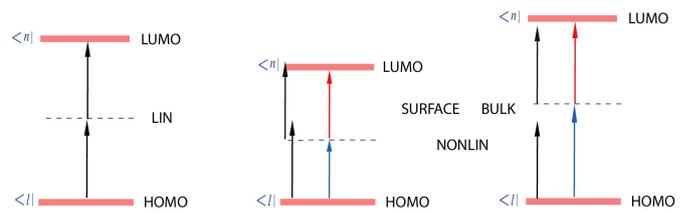


Abbildung 3 zeigt die HOMO und LUMO Grenzzustände / Grenzorbitale für lineare (links) und nichtlineare Systeme (Mitte und rechts). In nichtlinearen Systemen ist jeweils abhängig von der Materiesymmetrie eine im Vergleich zum linearen System niedrigerer HOMO Zustand für nichtzentrosymmetrische und zentrosymmetrische Materie und höherer HOMO- Zustand für Bulkmaterialien erhöhter Löcherkonzentration zu erwarten.

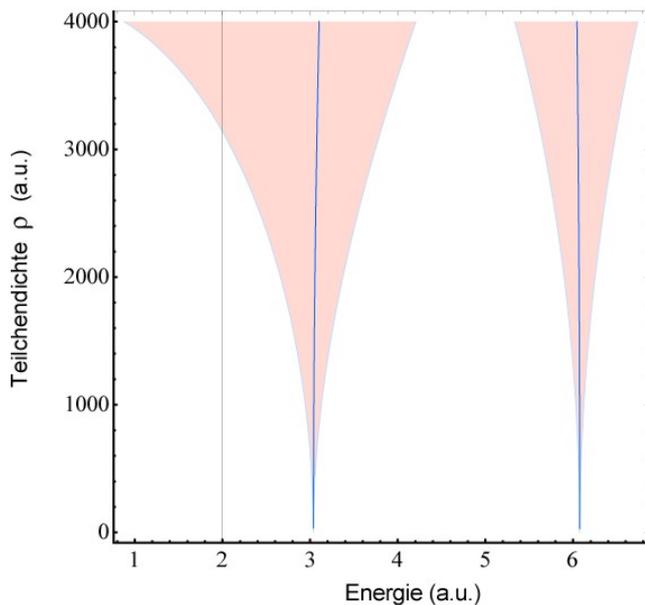


Abbildung 4 zeigt die Nichtlinearen Singularitäten der Quantenpunkte nach Multiphotonenwechselwirkung bis zu kleinen Größen 8.- ter Ordnung. Für N.Z.S. Materie ergibt sich Frequenzverschiebung zu niederen Frequenzen und für Z.S. Materie ist dieser Effekt noch stärker ausgeprägt, wenn man das System unabhängig von α betrachtet. Dabei entsprechen die Singularitätskurven negativer Skewness der Photonenwechselwirkung mit solvatisierten Elektronen und Oberflächenbindungselektronen. Mit zunehmender Energie werden die stabilen Singularitätsbereiche sehr schnell schmal.

8. HEISENBERG'S UNCERTAINTY PRINCIPLE

Betrachtet man in diesem Zusammenhang das klassische Pendant dazu, so ergibt sich mit dem aus der Quantenmechanik bekannte Heisenbergsche Unschärferelationsprinzip mit $\delta p \delta x \geq \hbar$ dasselbe Korrekturprinzip. Bezogen auf das elektromagnetische Feld kann diese zur Beziehung $\delta P \delta Q \geq \hbar$ umgeschrieben werden. Dabei ist die Amplitude durch den Ortsvektor Q und die Phase durch P gekennzeichnet. Im Unschärfeprodukt $\delta P \delta Q$ lässt sich δP oder $\omega \delta Q$ auf Kosten der jeweils anderen Variablen reduzieren. Die verbleibende Unschärfe lässt sich mithilfe der nichtlinearen Korrekturfaktoren modellieren. Das Heisenberg'sche Unschärfeproblem, der Unmöglichkeit der gleichzeitigen Bestimmung von Ort und Impuls eines Teilchens, lässt sich damit umgehen. Dadurch ist es nicht nur möglich die Form des Unschärfebereichs weiter zu manipulieren und einzuschränken, sondern gänzlich in Abhängigkeit der nichtlinearen Ordnung nichtlinear zu approximieren. Die Amplitude im Impulsraum bleibt auch bei nichtlinearer Verschiebung erhalten. Wird die Amplitude konstant gehalten, so lässt sich die Phase, welche sich analog der Singularitätskurven verschiebt, nichtlinear modellieren. Mithilfe der entwickelten Formeln der verbesserten nichtlinearen Modellbildung kann man die Unschärferelation zwischen Impuls und Ort beschreiben. Die entwickelten Formeln heben die Unschärferelation auf.

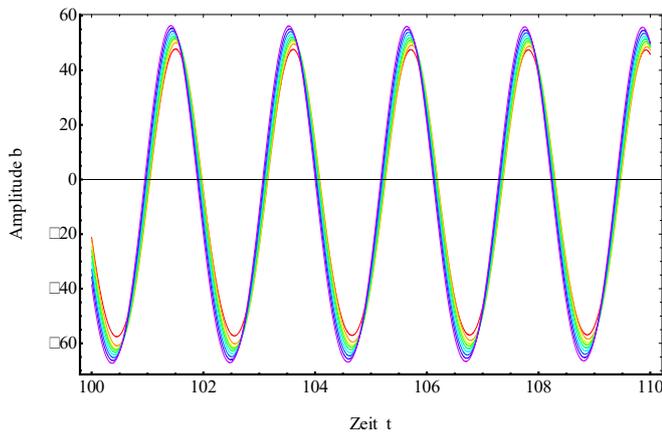


Abbildung 5 zeigt die Entwicklung der Wellenfunktion an Oberflächen in der Zeitdomäne in Abhängigkeit der Nichtlinearität. Die Nichtlinearität variiert mit $\delta=0.001$ wobei die Kurve kleinster Amplitude und größter relativer Phasenverschiebung die höhere Nichtlinearität aufweist. Es sind deutlich die minimalen auseinanderlaufenden Amplituden und Phasen gemäß der ermittelten Singularitätskurven zu erkennen. Diese weisen gegenüber klassischem Licht eine minimale Unschärfe auf, wie Sie vom nichtklassischen Licht (gequetschten Licht) bekannt sind und schon experimentell gezeigt werden konnte. Somit lässt sich die Heisenbergsche Unschärferelation mithilfe der nichtlinearen Korrekturfaktoren modellieren. Damit ist es möglich den Ort und Impuls eines Teilchens mithilfe der Nichtlinearen Korrekturen gleichzeitig zu bestimmen.

Durch die ermittelten Singularitätskurven, resultierend aus dem Skew, wird der Ort x und die (tatsächliche) Frequenz ω eines Teilchens gleichzeitig bestimmbar und somit vorhersagbar. Dies ist die physikalische Interpretation der erhaltenen Lösungen. Diese können auf unsere Problemlösung formuliert

$$\begin{aligned} \Delta x \Delta p &\geq \hbar / 2 \geq h / 4\pi \\ \Delta x(AMP) \times \frac{\Delta \omega(SINGUL) \times h}{c} &\geq h / 4\pi \\ \Delta x(AMP) \frac{\Delta \omega(SINGUL)}{c} &\geq 1 / 4\pi \\ \Delta x(AMP) \Delta \omega(SINGUL) &\geq c / 4\pi \end{aligned} \quad (49)$$

Damit kann diese fundamentale Grenze der Messbarkeit welche von Heisenberg formuliert wurde in der (symbolischen) Aussage ausgehebelt werden.

9. PHOTONIC CRYSTALS

Die nichtlinearen Frequenzkorrekturen bzw. Energiekorrekturen können beispielsweise Anwendung

finden auf photonische Kristalle, wie auch in allen anderen Mikro- und Nanoskaligen Bauteilen und Schichtsysteme.

Wie in dieser Arbeit gezeigt wurde, müssen aufgrund von Interferenzphänomenen und Anregung durch Vielwellenmischen, nichtlineare Effekte berücksichtigt werden. Für photonische Kristalle existieren *exzitonische* Resonanzen.

Es ist möglich in photonischen Kristallen die Resonanz in gebundene exzitonische Zustände und der exzitonischen Oszillatorstärke zu zerlegen. Für große Breiten ($W = 180\text{nm}$) und für verschwindende Breiten $W=0$ der photonischen Kristallstruktur ist eine eindeutige Resonanz zu beobachten. Für in den Grenzbereichen dazwischenliegende Breiten ergeben sich energetisch verschobene Doppelpeaks, was eine Verschiebung der Kontinuumsanteile zu höheren Energien sowie eine verstärkte exzitonische Bindungsenergie hindeutet. Diese kommen durch Materiewechselwirkungen zustande, welche nichtlineare Effekte tragen.

Die Unterdrückung der Hystereseeffekte in photonischen Kristallen, wie auch in allen anderen Mikro- und Nanoskaligen Bauteilen, wird von großer Wichtigkeit werden, um Störungen zu vermeiden welche durch abrupte Änderung in der Dynamik ihre Ursache haben und um z. B. in photonischen Kristallen einen glatten Übergang zwischen stabilen Responses in den dielektrischen Schichten sicherzustellen. Dies ist jetzt durch Kenntnis der genauen Korrekturen möglich.

Acknowledgements

References

- [SYR84] Shen, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics*; Wiley: New York, 1984.
- [PFTV92] Press, W. H., B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling, *Numerical Recipes in C*, 2nd ed., Press Syndicate of the University of Cambridge, 1992.
- [BSMM08] Bronstein, I. N., K. A. Semendjajew, G. Musiol, H. Mühlig, *Taschenbuch der Mathematik*, 7., vollständig überarbeitete und ergänzte Auflage, Verlag Harri Deutsch, Frankfurt am Main, (2008).