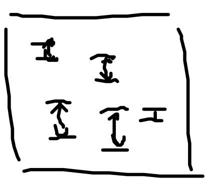
5.1.1.3 Einfaches Vielniveausystem – inhomogene Verbreiterung

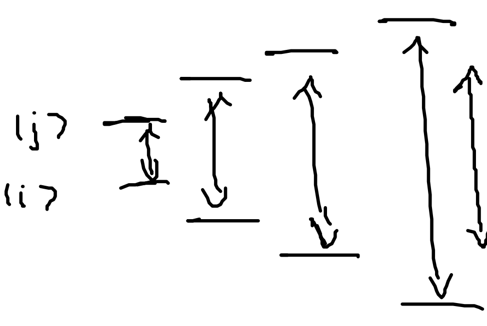
- Vielniveausysteme sind i.a. beliebig kompliziert
- wichtiger Spezialfall: Ensemble von Zweiniveausystemen mit unterschiedlichen Übergangsenergien

Beispiele: - dotierte Kristalle wo ZNS unterschiedliche Umgebungen haben



- Gasmoleküle mit Geschwindigkeitsverteilung (Dopplereffekt)

Niveaubild



Verteilung von Übergangsenergie $\{\omega_{ij}\}$

„inhomogene Verteilung"

$$\{\omega_{ij}\} \longrightarrow \left\{\delta_{ij} = \underbrace{\underbrace{\omega_{ij}}_{<0} + \omega_L}_{\neq 0}\right\}$$

$$\dot{\rho}_{ij} = (i\underline{\underline{\delta_{ij}}} - \gamma)\rho_{ij} + \frac{i}{2}\tilde{\Omega}_{ij}\underbrace{(\rho_{ii} - \rho_{jj})}_{\Delta_{ij}}$$

$\rho_{12} \rightarrow \rho_{\underline{\underline{\delta}}}$ für alle δ-s rechnen

typisch weise sind die Übergangsenergie Gaußverteilt:

$$f(\delta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\,\delta_0} e^{-\delta^2/\delta_0^2}$$

- ist normiert: $\int_{-\infty}^{+\infty} d\delta\, f(\delta) = 1$

- Dipoldichte muß als Summe über alle Beiträge bestimmt werden:

$$P \propto \sum_{ij} \rho_{ij} \propto \sum_{\delta} \rho_\delta f(\delta) \quad \text{Mittelungsprozeß}$$

- um einfache Rechnung zu haben:

Verwendung von δ-Pulsen $\tilde{\Omega}(t) = \frac{d\hat{E}(t)}{\hbar} = A\,\delta(t)$

(Puls kurz gegen alle Materialzeitskalen)

- $d_{ij} = d$ identisch Dipol für alle δ

a) lineare Optik

$$\dot{\rho}_{ij} = (i\delta_{ij} - \gamma)\rho_{ij} + \frac{i}{2}\hat{\Omega}(t) \qquad (\rho_{ii} = 1,\ \rho_{jj} = 0)$$

Lösg: $$\rho_{ij} = \frac{i}{2}\int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{(i\delta_{ij} - \gamma)(t-t')} A\,\delta(t')$$

$$\int_{-\infty}^{t} dt' \to \int_{-\infty}^{+\infty} dt'\, \theta(t-t')$$, dann kann man $\delta(t')$ ausführen

$$\rho_{ij}(t) = i\frac{A}{2} e^{i(\delta_{ij} - \gamma)t}\,\theta(t)$$

Dipolmoment

$$P(t) = i\frac{A}{2}\, d\, n_0 \int_{-\infty}^{+\infty} d\delta\, \underbrace{f(\delta)}_{= \frac{1}{\sqrt{\pi}\,\delta_0} e^{-\delta^2/\delta_0^2}}\, e^{i\delta t}\, e^{-\gamma t}\,\theta(t)$$

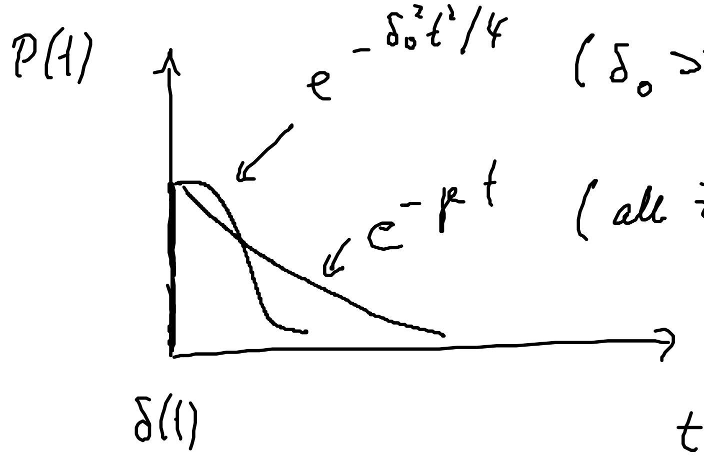
Anzahldichte

Gauß-integral

$$\boxed{P(t) = i\frac{A}{2}\, d\, n_0\, e^{-t^2 \cdot \delta_0^2/4 - \gamma t}\,\theta(t)}$$

- Überlagerung aller Phasen gibt einen Gaußschen Zerfall

Zeitverlauf



$(\delta_0 \gg \gamma)$

(alle ZNS dieselbe Übergangsenergie)

Durch die Überlagerung der Phasen δ bekommt man einen Gaußzerfall, insbesondere einen anderen Anstieg der Kurve nach dem Ausgang. (destruktive Interferenz)

→ Energie der einzelnen Dipole ist aber noch da!

→ man kann die Dipoldichte wieder herstellen (später)

γ → beschreibt Zerfall durch Kopplung an Umgebung

Absorptionsspektrum: $\alpha(\omega) = \mathrm{Im}(\chi) = \mathrm{Im}\left(\dfrac{P}{\varepsilon_0 \underline{E}}\right)_\omega$

$$\alpha(\omega) = \mathrm{Im}\left\{ \frac{i d^2 n_0}{\underline{\varepsilon_0}} \underbrace{\int_0^\infty dt\, e^{i\omega t} e^{-\frac{t^2 \delta_0^2}{4}} e^{-\gamma t}}_{\text{Voigtprofil (Überlagerung einzelner Lorentzprofile)}} \right\} \Bigg|\ \tilde{\Omega}(t) = \frac{dE}{\hbar}$$

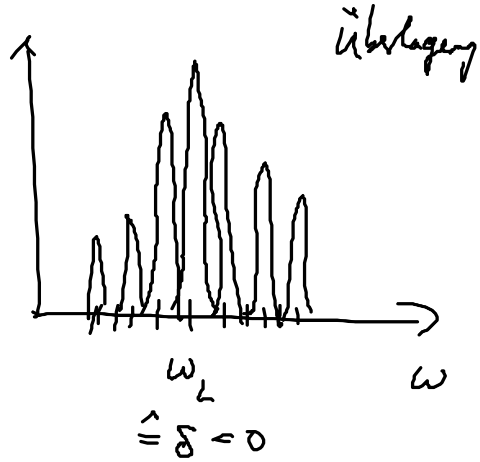
$\downarrow$

ist analytisch nicht „einfach" handbar, Grenzfälle:

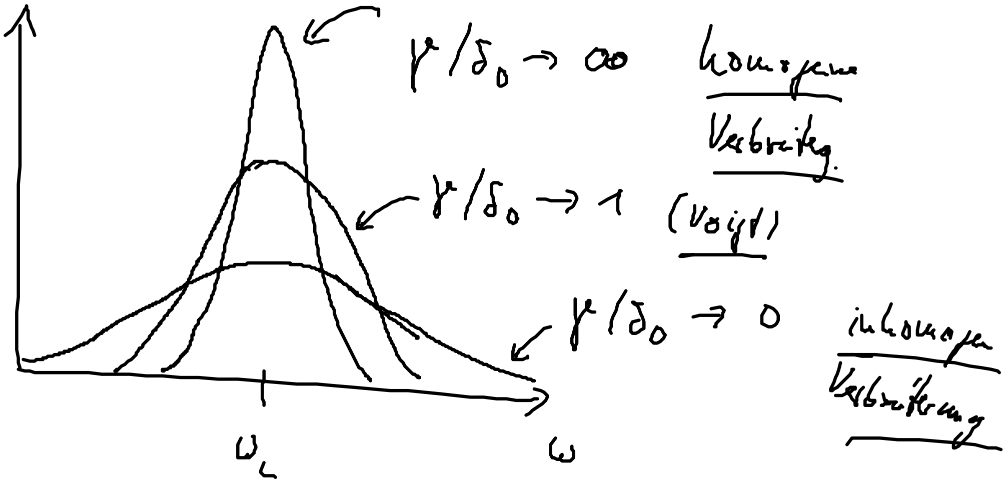
a) $\dfrac{d^2 n_0}{\varepsilon_0} \dfrac{2\sqrt{\pi}}{\delta_0} e^{-\omega^2/\delta_0^2}$ für $\underline{\gamma \to 0}$ Gaußprofil

b) $\dfrac{d^2 n_0}{\varepsilon_0} \dfrac{\gamma}{\gamma^2 + \omega^2}$ für $\underline{\delta_0 \to 0}$ Lorentzprofil

Voigtprofil:



Überlagerung einzelner Zweiniveausysteme (Lorentzprofile)



bzw. Zentralfrequenz d. Verteilg.

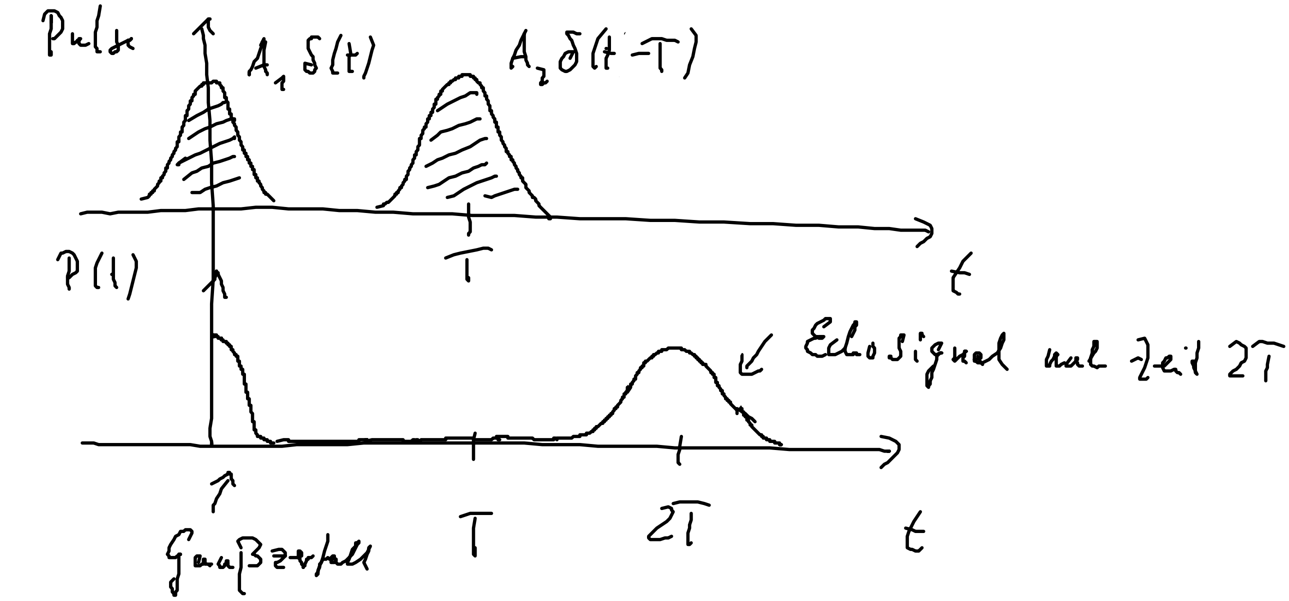
besteht die Möglichkeit durch Analyse d. Absorptionsspektrums etwa über das Verhältnis von homogener zu inhomogener Breite zu lernen, wenn zumindest eine von beiden (γ oder δ_0) bekannt ist.

b) nichtlineare Optik

2 Grenzfälle: (i) Photonecho ; (ii) spektrales Lochbrennen

(i) Photonecho

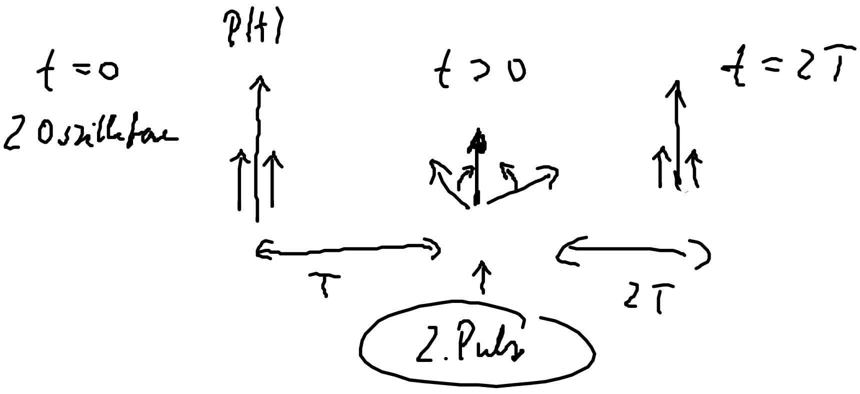
2 kurze Pulse werden mit Abstand T auf System gestrahlt



(Zerfall P(t) durch die Überlagerung der Phasen δ)

der 2. Puls bringt nach der Zeit 2T die Oszillatoren wieder in Phase

komplexe Elem. Oszillatoren (Bild)



Störungstheorie für Vielniveausysteme

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ij} = (i\delta_{ij} - \gamma)\,\tilde{\rho}_{ij} + \frac{i}{2}\,\tilde{\Omega}(t)\,\Delta_{ij}$$

$$\dot{\Delta}_{ij} = -i\,\tilde{\Omega}(t)\,(\tilde{\rho}_{ji} - \tilde{\rho}_{ij})$$

$(\tilde{\Omega} = \text{reell})$

von Neumann reihe : formale Integration

$$\tilde{\rho}_{ij}(t) = \underset{\substack{\shortparallel \\ 0}}{\tilde{\rho}_{ij}(-\infty)} + \frac{i}{2}\int_{-\infty}^{t} dt'\,\tilde{\Omega}(t')\,\Delta_{ij}(t')\,e^{(i\delta_{ij}-\gamma)(t-t')}$$

$$\Delta_{ij}(t) = \underset{\substack{\shortparallel \\ \Delta_0}}{\Delta(-\infty)} - 2\int_{-\infty}^{t} dt'\,\tilde{\Omega}(t')\,\mathrm{Im}\,(\tilde{\rho}_{ij}(t'))$$

man nimmt AB und iteriert die Gleichung

0.-te Ordnung $\quad \rho_{ij}^{(0)} = 0 \;,\; \Delta_{ij}^{(0)} = 1 = \Delta_0$

1.-te Ordnung

$$\rho_{ij}^{(1)} = 0 + \frac{i}{2}\,\Delta^{(0)} \int^{t} dt'\,\underline{\tilde{\Omega}(t')}\,e^{i(\delta_{ij}-\gamma)(t-t')}$$

$-\infty$ $\uparrow$ 1. Ordng. im Feld

$$\Delta_{ij}^{(1)} = \Delta_0 - \int_{-\infty}^{t} dt' \, \tilde{\Omega}(t') \, \Delta_0 \int_{-\infty}^{t'} dt'' \, \tilde{\Omega}(t'') \, \cos\left(\delta_{ij} (t'-t'')\right) e^{-\gamma (t'-t'')}$$

eigentlich schon 2. Ordng. im Feld

Ordnungsnummer bezieht sich immer auf $\rho_{ij}^{(n)}$

<u>2. Ordng.</u>

$$\rho_{ij}^{(2)}(t) = \frac{i}{2} \int_{-\infty}^{t} dt' \, \tilde{\Omega}(t') \, e^{(i\delta_{ij} - \gamma)(t-t')} \, \Delta_{ij}^{(1)}(t')$$

(Achtg. (n) zählt nicht die Feld-WW $\tilde{\Omega}^{(n)}$)

<u>Ziel</u>: Berechng. von $\rho_{ij}^{(2)}$ für $\tilde{\Omega}(t) = A_1 \delta(t) + A_2 \delta(t-T)$

$$\Delta^{(1)} = \Delta_0 - \int_{-\infty}^{t} dt' \, \tilde{\Omega}(t') \int_{-\infty}^{+\infty} dt'' \, \underline{\underline{\theta(t'-t'')}} \left\{ A_1 \delta(t'') + A_2 (t''-T) \cdot \cos\left(\delta_{ij} (t'-t'')\right) e^{-\gamma(t'-t'')} \right\}$$

$+\infty$

$$= \Delta_0 - \Delta_0 \int_{-\infty} dt' \, \theta(t-t') \, \underline{\underline{\tilde{\Omega}(t')}} \Big(\theta(t') \cdot A_1 \cos(\delta_{ij} t') e^{-\gamma t'}$$

$$+ \theta(t'-T) A_2 \cos(\delta_{ij}(t'-T)) e^{-\gamma(t'-T)} \Big)$$

$$= \Delta_0 - \Delta_0 \Big\{ \theta(t) \Big[\underline{A_1^2 \, \theta(0)} \cos(0) + A_1 \underline{A_2 \, \theta(-T)} \cos(-\delta_{ij} T) e^{-\gamma T} \Big]$$

$$\theta(t-T) \Big[A_2 A_1 \, \theta(T) \cos(\delta_{ij} T) \, e^{-\gamma T}$$

$$+ A_2^2 \, \theta(0) \cos(0) \Big] \Big\}$$

um zu vereinfachen:

$A_2 > A_1 \implies$ 1. Term weg

$T > 0 \quad A_1$ vor $A_2 \implies$ 2. Term weg

Suche Term der die Phasen enthält $\implies$ wähle jetzt 3. Term

$$\rho_{ij}^{(2)} = \frac{i}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \, \theta(t-t') \, \tilde{\Omega}(t') \, e^{(i\delta_{ij} - \gamma)(t-t')}$$

$$\cdot \Big(\Delta_0 - \Delta_0 \, \underbrace{\theta(t'-T) \, \theta(T) A_1 A_2 \cos(\delta_{ij} T) e^{-\gamma T}}_{\swarrow \text{ 3. Term}} \Big)$$

$\tilde{\Omega}(t)$ einsetzen $\rightarrow$ letzte Zeile integral beseitigen

$$\propto \underbrace{\Theta(t-T)}_{\substack{\text{Signal für}\\ t>T}}\;\underbrace{\Theta(T)}_{\substack{T>0\\ \text{also}\\ A_1 \text{ vor } A_2\\ \text{kommen}}}\;\underbrace{A_1 A_2^2}_{\substack{\text{3. Ordnung d.}\\ \text{Felds}}}\;\underbrace{e^{-\gamma t}}_{\substack{\text{Kopplung an}\\ \text{Umgebung}\\ \text{zerstört Echo}\\ \gamma\to 0 \Rightarrow \text{Echo}}}\;\underbrace{e^{-i\delta_{ij}(t-2T)}}_{\substack{\text{Echo bei}\\ t=2T}}$$

Dipoldichte

$$P(t) \propto \underbrace{\int_{-\infty}^{+\infty} d\delta\, f(\delta)\, e^{-i\delta(t-2T)}}_{e^{-(t-2T)^2\delta_0^2/4}}$$

Gaußpuls bei $2T$ mit der Breite δ_0^{-1}.