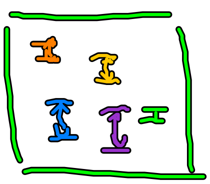
5.1.1.3 Einfaches Vielniveausystem – inhomogene Verbreiterung

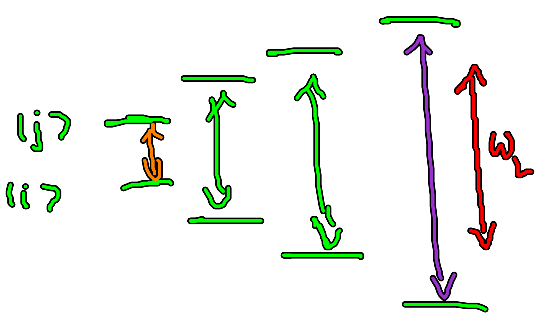
- Vielniveausysteme sind i.a. beliebig kompliziert
- wichtiger Spezialfall: Ensemble von Zweiniveausystemen mit unterschiedlichen Übergangsenergien

<u>Beispiele</u>: - dotierte Kristalle wo ZNS unterschiedliche Umgebungen haben



- Gasmoleküle mit Geschwindigkeitsverteilung (Dopplereffekt)

Niveaubild



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

„inhomogene Verteilung"

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

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

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

typische weite 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:

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

- 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 Material zeitskalen)

– $d_{ij} = d$ 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

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

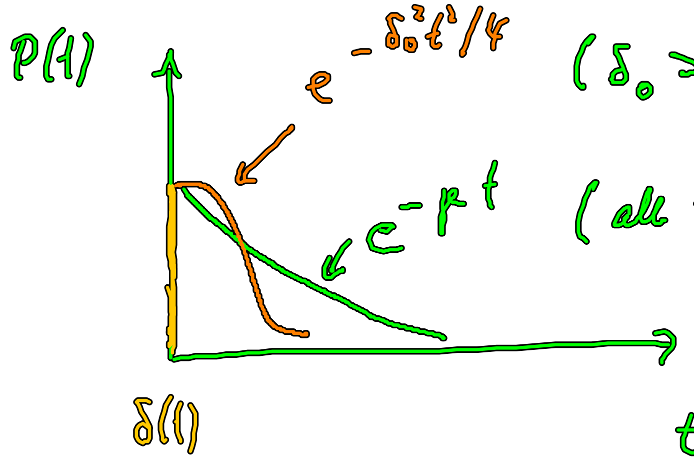
Anzahldichte

Gauß-integral

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

- 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 Abstieg der Kurve nach dem Anfang. $\underbrace{\text{(destruktive Interferenz)}}$

→ Energie der einzelnen Dipole ist aber noch da!

→ man kann die Dipoldichte wieder herstellen (später)

γ → beschreibt Zerfall durch Kopplg. an Umgebung

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

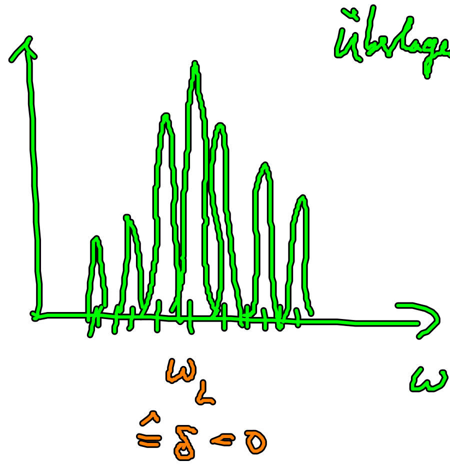
$$\alpha(\omega) = \mathrm{Im}\underbrace{\left\{ \frac{i d^2 u_0}{\varepsilon_0} \int_0^\infty dt\, e^{i\omega t}\, e^{-\frac{t^2\delta_0^2}{4}}\, e^{-\gamma t} \right\}}_{\text{Voigtprofil (Überlagerung einzelner Lorentzprofile)}} \qquad \tilde{\Omega}(t) = \frac{dE}{\hbar}$$

ist analytisch nicht „einfach" handhabbar, Grenzfälle:

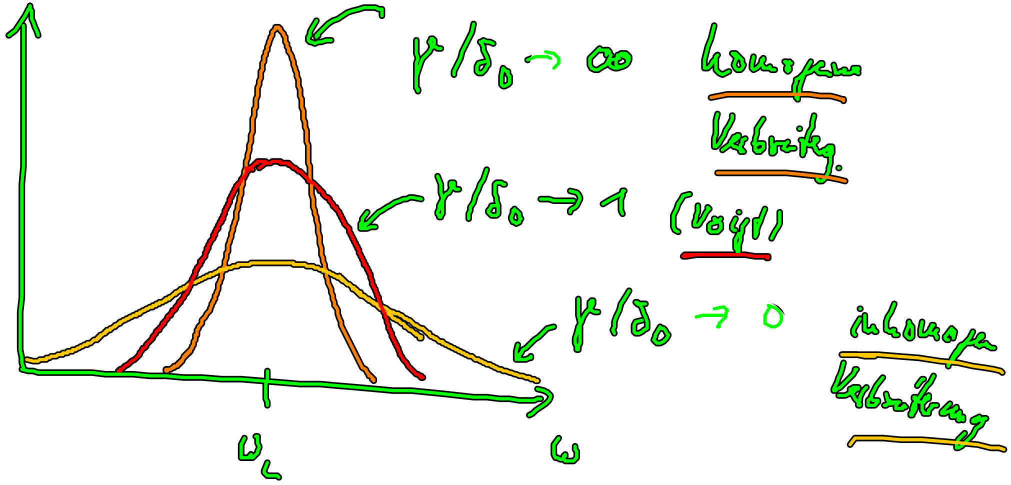
a) $\frac{d^2 u_0}{\varepsilon_0}\,\frac{2\sqrt{\pi}}{\delta_0}\, e^{-\omega^2/\delta_0^2}$ für $\gamma \to 0$ Gaußprofil

b) $\frac{d^2 u_0}{\varepsilon_0}\,\frac{\gamma}{\gamma^2+\omega^2}$ für $\delta_0 \to 0$ Lorentzprofil

Voigtprofil:



Überlagerung einzelner Zweiniveausysteme (Lorentzprofile)



bzw. Zentralfrequenz d. Verteilg.

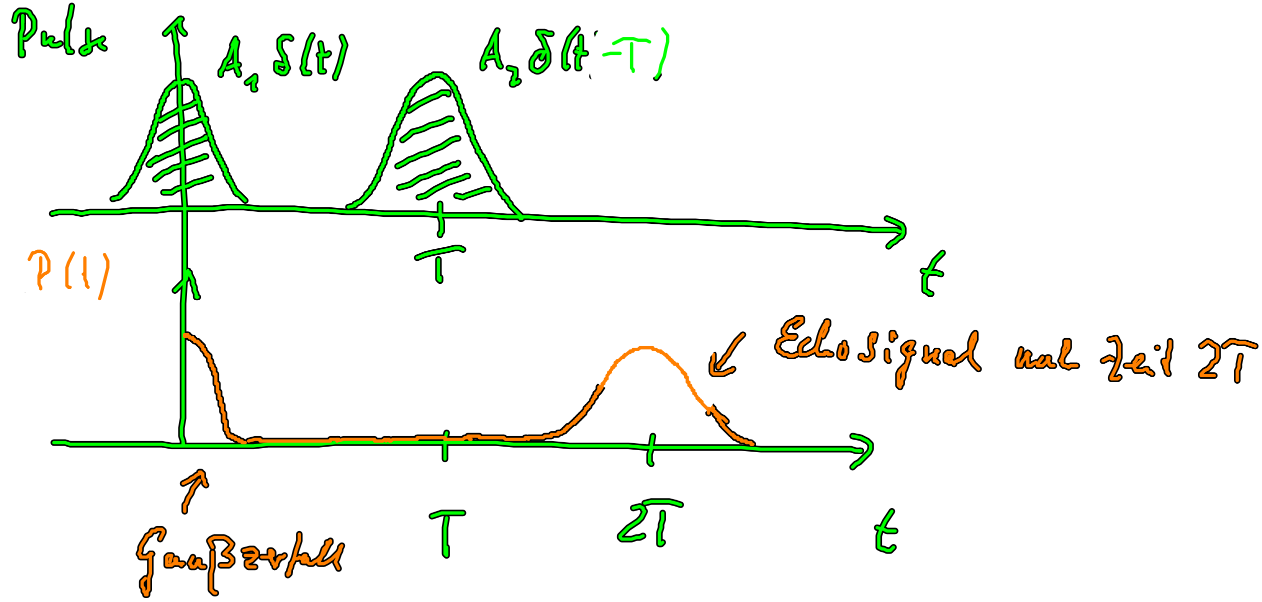
besteht die Möglichkeit durch Analyse d. Absorptionsspektrums etwa über das Verhältnis von homogener zu inhomogener Breite zu lernen, wenn zumindest eine von beiden (γ oder δ_0) bekannt ist.

b) nichtlineare Optik

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

(i) Photonecho

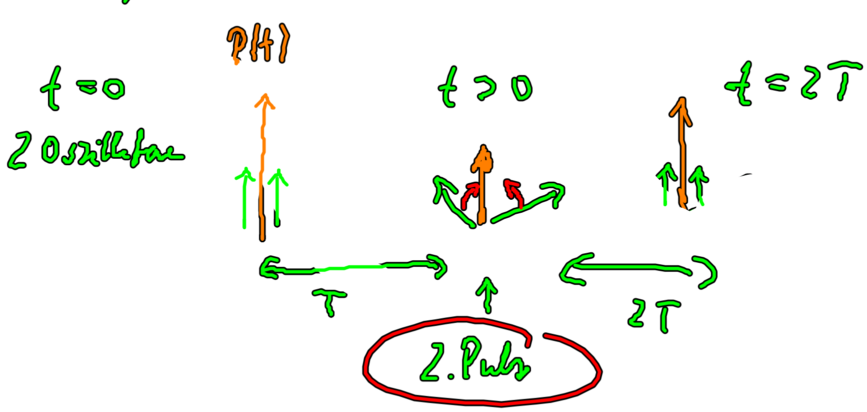
2 kurze Pulse werden mit Abstand T auf System gestrahlt



(Zerfall P(t) durch die überlagerg. der Phasen δ]

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

komplexe Elem Oszillatoren (Bild)



Störungstheorie für Vielniveausysteme

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

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

<u>von Neumann reihe:</u> formale Integration

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

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

man nimmt AB und iteriert die Gleichung

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

<u>1.-te Ordnung</u>

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

$-\infty$

↑ 1. Ordng. im Feld

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

eigentlich schon 2. Ordng. im Feld

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

2. Ordng.

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

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

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

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

$+\infty$

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

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

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

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

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

um zu vereinfachen:

$A_2 > A_1$ ⇒ 1. Term weg

$T > 0$ A_1 vor A_2 ⇒ 2. Term weg

Suche Term der die Phase enthält ⇒ wähle jetzt 3. Term

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

3. Term

$$\cdot \Big(\Delta_0 - \Delta_0\, \theta(t'-T)\, \theta(T)\, A_1 A_2 \cos(\delta_{ij} \cdot T)\, e^{-\gamma T} \Big)$$

$\tilde{\Omega}(t)$ einsetzen → letzte Zeitintegral beseitigen

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

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}.