

Photomech 2

$$\langle \psi | \langle \alpha | \rho^{(3)} | \alpha \rangle | \psi \rangle = A + B$$

Anteil A (B)

$$\begin{aligned} \{ A_n = \sum_{n_0}^{\infty} \int dt_3 \int dt_2 \int dt_1 \frac{1}{\hbar} \hat{x}(t-t_3) e^{-ik_3 \cdot r + i\omega_3(t-t_3)} & d_{n_2} \cdot \hat{E}_2(t-t_3-t_2) \\ & e^{ik_2 \cdot r - i\omega_2(t-t_2)} d_{n_1} \cdot \hat{E}_1(t-t_3-t_2-t_1) \\ & e^{-ik_1 \cdot r + i\omega_1(t-t_3-t_2-t_1)} + i\omega_0^n t_3 - 2n t_2 + i\omega_0^n t_1 - n t_1 \quad // \\ & e \quad e \quad e \end{aligned}$$

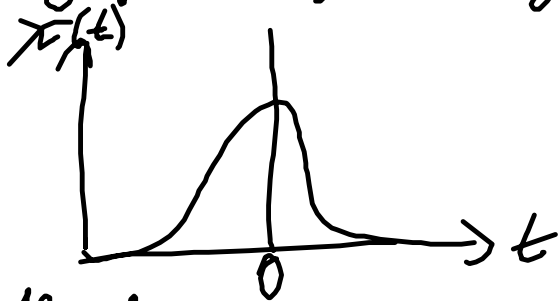
Wir betrachten ein Ensemble

$$\sum_n \langle \psi | \langle \alpha | \rho_n^{(3)} | \alpha \rangle | \psi \rangle = \sum_n (A_n + B_n)$$

Vorbetrachten

$$\begin{aligned} \sum_n e^{-i\omega_0^n t_3} e^{-i\omega_0^n t_1} &= \sum_n e^{-i(\omega_0 + \Delta\omega^n) t_3} e^{-i(\omega_0 + \Delta\omega^n) t_1} \\ &= e^{-i\omega_0(t_3+t_1)} \sum_n e^{-i\Delta\omega^n t_3} e^{-i\Delta\omega^n t_1} \\ &= e^{-i\omega_0(t_3+t_1)} \mathcal{K}(-t_3 - t_1) \end{aligned}$$

\mathcal{K} gegeben, vgl. inhomogen Verteilung



Aber für $t_1, t_2 \rightarrow \infty$ $\mathcal{K} \rightarrow 0$ Verschiebt was bei t_1 !

Anders sieht Aus B (analog zu A) Richtung $-k_3 - k_2 + k_1$

B = wie A +

$$\sum_n \mathcal{B}_n = \int_{-\infty}^{\infty} dt_3 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{d_{21}} \vec{E}_3^x(t-t_3) \cdot d_{21} \vec{E}_2(t-t_3-t_2) \cdot d_{21} \\ - d_{21} \vec{E}_1^x(t-t_3-t_2-t_1) \\ e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r} + i\omega_3(t-t_3)} \cdot e^{i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega_2(t_3+t_2)} \\ e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r} + i\omega_1(t-t_3-t_2-t_1)} \\ e^{(-i\omega_3 - \nu)t_3} \cdot e^{-2\nu t_2} \cdot e^{i\omega_3 t_2 - \nu t_1} \cdot \mathcal{K}(t_3+t_2)$$

Das ist

das Photon E_{1k} !

Peak $t_1 = t_3$

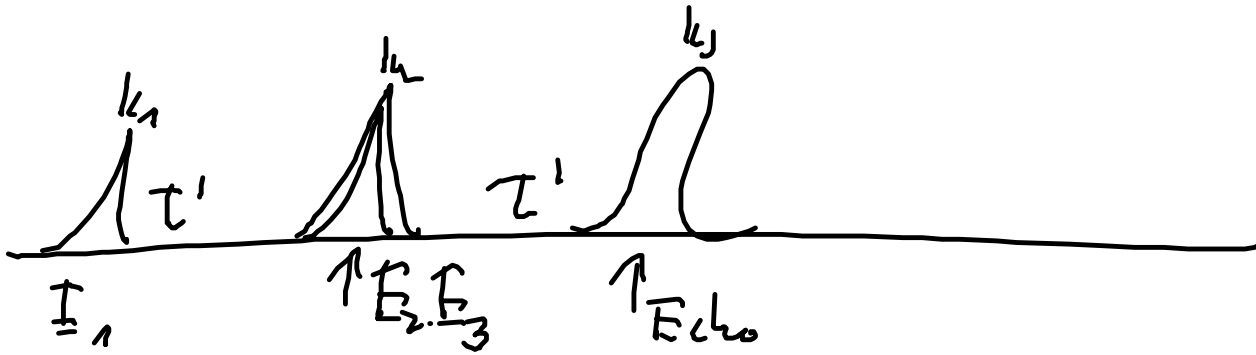
Wie funktioniert das?

$$\mathcal{K}(t_3+t_2) = \sum_n e^{-i\omega_3 t_3} e^{i\omega_3 t_2}$$

Also in der Zeit von t_1 wird die Phase verändert
 $t_1 \cdot \Delta\omega^n$ (inhomogen & phasig) durch $\Delta\omega \cdot t_3$.
 danach in der Zeit t_2 die Phase um $-t_3 \cdot \Delta\omega$
 verändert wird. inhomogen & phasig.

\Rightarrow Der Prozess der inhomogenen Verbreiterung wird
 rückgängig gemacht. ($t_1 = t_3$)

162. w) Prinzip



Aber Ansatz

$$\hat{E}_1(t) = \hat{E}_1 \delta(t + \tau')$$

$$\hat{E}_2(t) = \hat{E}_2(t) = \hat{E}_{23} \delta(t)$$

Aber

$$\begin{aligned} \hat{B}_n(t) = & d_{21} \cdot \hat{E}_1 \cdot \hat{E}_{23} \cdot d_{21} \cdot \hat{E}_{23} \cdot d_{21} \\ & e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} \quad e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}} \quad e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} \quad e^{-i\omega_1 t'} \\ & e^{-(i\omega_2 - \gamma)t} \quad e^{i\omega_2 t' - \gamma t'} \\ & e \quad e \end{aligned}$$

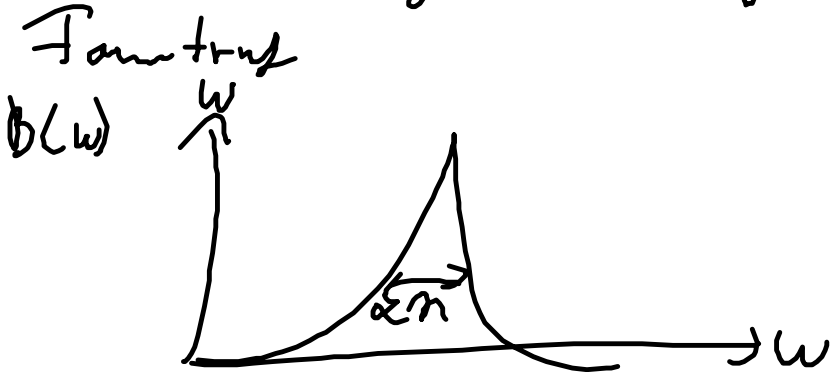
Auswertung für $t = \tau'$ (Echo Punkt)

$$\begin{aligned} \hat{B}_n(\tau') = & d_{21} \cdot \hat{E}_1 \cdot \hat{E}_{23} \cdot d_{21} \cdot \hat{E}_{23} \cdot d_{21} \\ & e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} \quad e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}} \quad e^{-i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} \quad e^{-i\omega_1 \tau'} \\ & e \quad e \quad e \quad e \end{aligned}$$

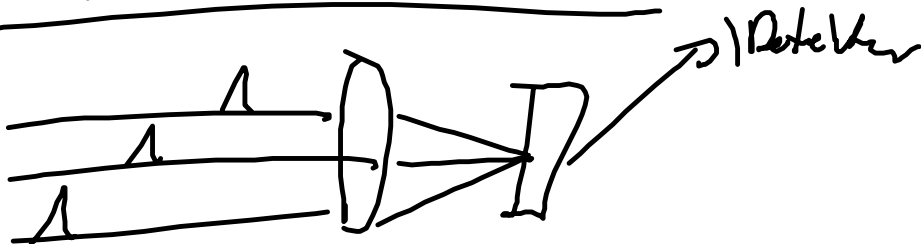
$$\underline{\underline{e^{-2n\tau'}}} \quad \hookrightarrow \text{Dephasierung (Verzögerung)}$$

Fouriertransf. für τ' ergibt Absorptionspektrum mit nur homogener Verbreiterung.

Inhomogene Verbreiterung eliminiert!



(V2b) Detektionsarten



1. Detektionsart: homodyne Detektion

Das gesamte Echo wird integriert

$$\int_{SP\pm}(\tau', \tau) = \int_0^{\infty} dt |\rho^{(3)}(\omega_1, t)|^2$$

z.B. mit Kalibrierung

Vorteil: Einfach!

Nachteil

- Phase geht verloren
- Man braucht ein gutes Echo
- Inhomogene Verbreiterung muß groß sein.

Phase sollte detektierbar sein

→ Heterodyne Detektion

Wie bekommt man die Phase heraus?

Phase wird durch Interferenz gemessen.

Signal wird mit lokalem Oszillator gemischt.

$$E_{L0}(\underline{r}, t) = \underbrace{E_{L0}(t - \tau')}_{\substack{\text{am Photom. - Detektor} \\ \text{Pos. L.}}} \exp(i \underline{k}_{L0} \cdot \underline{r} - i \omega_{L0} t - i \varphi) + c.c.$$

Phase differenz
zu dem Referenz

Wichtig Phasen gelockt.

$$S_{HSPE}(\tau', \tau, \varphi) = -2 \operatorname{Im} \left(\int_{-\infty}^{\infty} dt \tilde{E}_{L0}^*(t - \tau') P^{(3)}(k, t) \right) \cdot \exp(i \varphi + i (\omega_{L0} - \omega_a) t)$$

$$S_{HSPE} \propto 2 \operatorname{Re}(E_s E_{L0}) \quad \text{vs.} \quad S_{SPE} \propto |E_s|^2$$

Stärker lokaler Oszillator verstärkt das Signal

Weiterhin

Abzug von Real und Imaginärteil ist möglich. $\varphi = 0$ Real Teil, $\varphi = \frac{\pi}{2}$ Imaginär Teil.