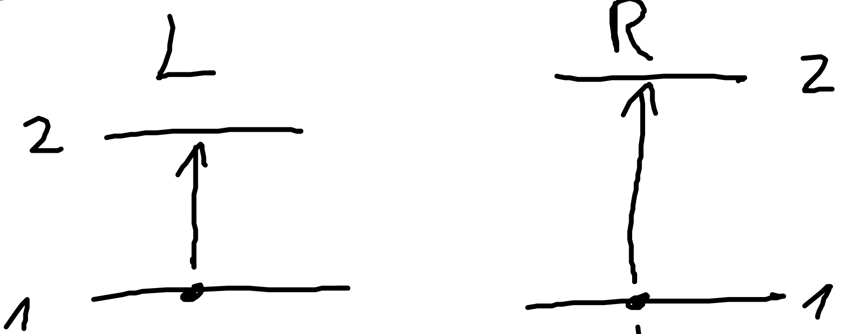
Zwei gekoppelte Zweiniveausysteme

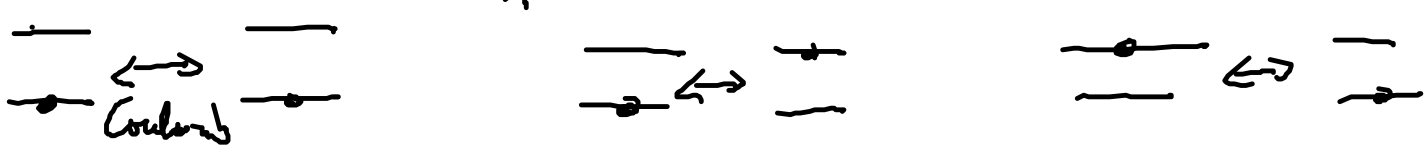


Zustand im System R

$\langle i\, j|$

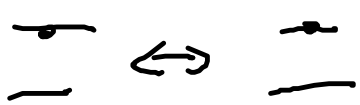
Zustand im System L

$$H = \sum_i \varepsilon_1^L |1i\rangle\langle 1i| + \sum_i \varepsilon_2^L |2i\rangle\langle 2i|$$
$$+ \sum_i \varepsilon_1^R |i1\rangle\langle i1| + \sum_i \varepsilon_2^R |i2\rangle\langle i2|$$
$$+ \sum_i E(t)\cdot d_{21}^R\, |i1\rangle\langle i2| + c.\,c.$$
$$+ \sum_i E(t)\cdot d_{21}^L\, |1i\rangle\langle 2i| + c.\,c.$$
$$+ V^{GS} |11\rangle\langle 11| + V_1^{MExc} |12\rangle\langle 12| + V_2^{MExc} |21\rangle\langle 21|$$



$$+ V^{BExc} |22\rangle\langle 22| + V_F\left(|12\rangle\langle 21| + |21\rangle\langle 12|\right)$$

Dipol-Dipol Kopplung (Försterartig)



Wir brauchen für Spektren Bewegungsgleichungen:
(von $tr(|11\rangle\langle 12|\rho)$, $tr(|11\rangle\langle 21|\rho)$)
(Wir brauchen nicht $tr(|22\rangle\langle 12|\rho)$, $tr(|22\rangle\langle 21|\rho)$,
da Annahme System am Anfang im Grundzustand,
also $|22\rangle$ nicht besetzt)

$$\partial_t\, tr(|11\rangle\langle 12|\rho) = \frac{i}{\hbar}\left(\varepsilon_1^R - \varepsilon_2^R - V_1^{Exc} + V^{GS}\right) tr(|11\rangle\langle 12|\rho)$$

$$+\frac{i}{\hbar} V_F\, tr(|11\rangle\langle 21|\rho) - \gamma_2\, tr(|11\rangle\langle 12|\rho)$$
$$+\frac{i}{\hbar} E(t)\cdot d_{21}^R \left(tr(|12\rangle\langle 12|\rho) - tr(|11\rangle\langle 11|\rho)\right)$$
$$+\frac{i}{\hbar} E(t)\cdot d_{21}^L \left(\cancel{tr(|21\rangle\langle 12|\rho)} - \cancel{tr(|11\rangle\langle 22|\rho)}\right)$$

Polarisation 2. Ordnung   2. Ordnung E-Feld

Analog

$$\partial_t tr(|11\rangle\langle 21|\rho) = \frac{i}{\hbar}\left(\varepsilon_1^L - \varepsilon_2^L - V_2^{MFxc} + V^{SS}\right) tr(|11\rangle\langle 21|\rho)$$
$$+\frac{i}{\hbar} V_F\, tr(|11\rangle\langle 21|\rho) - \gamma_1\, tr(|11\rangle\langle 21|\rho)$$
$$+\frac{i}{\hbar} E(t)\, d_{21}^L \left(tr(|21\rangle\langle 21|\rho) - tr(|11\rangle\langle 11|\rho)\right)$$
$$+\frac{i}{\hbar} E(t)\, d_{21}^R \left(tr(|12\rangle\langle 21|\rho) - tr(|11\rangle\langle 22|\rho)\right)$$

Zur Lösung das Ganze in Matrix Form

$$\partial_t \begin{pmatrix} tr(|11\rangle\langle 12|\rho) \\ tr(|11\rangle\langle 21|\rho) \end{pmatrix} = \frac{i}{\hbar} \begin{pmatrix} \varepsilon_1^L - \varepsilon_2^L - V_1^{MFxc} + V^{SS} + i\hbar\gamma_1 & V_F \\ V_F & \varepsilon_1^R - \varepsilon_2^R - V_2^{MFxc} + V^{SS} + i\hbar\gamma_2 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} tr(|11\rangle\langle 12|\rho) \\ tr(|11\rangle\langle 21|\rho) \end{pmatrix}$$

$$\left(\frac{i}{\hbar} E(t)\cdot d_{21}^R \left(tr(|12\rangle\langle 12|\rho) - tr(|11\rangle\langle 11|\rho)\right)\right.$$

$$+\left(\frac{i}{\hbar}E(t)\cdot d_{21}^{L}\left(\mathrm{tr}(|21\rangle\langle 21|\rho)-\mathrm{tr}(|11\rangle\langle 11|\rho)\right)\right)$$

Fourier Transform:

$$E(\omega)\begin{pmatrix}\frac{i}{\hbar}d_{21}^{R}\left(\underbrace{\mathrm{tr}(|12\rangle\langle 12|\rho)}_{\approx 0}-\underbrace{\mathrm{tr}(|11\rangle\langle 11|\rho)}_{\approx 1}\right)\\ \frac{i}{\hbar}d_{21}^{L}\left(\underbrace{\mathrm{tr}(|21\rangle\langle 21|\rho)}_{\approx 0}-\underbrace{\mathrm{tr}(|11\rangle\langle 11|\rho)}_{\approx 1}\right)\end{pmatrix}=$$

$$=\frac{i}{\hbar}\begin{pmatrix}\varepsilon_1^L-\varepsilon_2^L-V_1^{MExc}+V^{SS}+i\hbar\gamma_1-\hbar\omega & V_F\\ V_F & -\hbar\omega+\varepsilon_1^R-\varepsilon_2^R-V_2^{MExc}+V^{SS}+i\hbar\gamma_2\end{pmatrix}\cdot\begin{pmatrix}\mathrm{tr}(|11\rangle\langle 12|\rho)(\omega)\\ \mathrm{tr}(|11\rangle\langle 21|\rho)(\omega)\end{pmatrix}$$

Zur Problem Lsg:

Matrix diagonalisierung!

$\Downarrow$ Mathematica

Eigenwerte sind in Abhängigkeit von ω

$$\hbar\omega_{1/2}=E_{1/2}=\frac{1}{2}\left(\varepsilon_1^L+\varepsilon_1^R-\varepsilon_2^L-\varepsilon_2^R+2V^{SS}-V_1^{MExc}-V_2^{MExc}\right)$$
$$\mp\sqrt{\left(\varepsilon_1^L-\varepsilon_2^L-V_1^{MExc}+V_2^{MExc}-\varepsilon_1^R+\varepsilon_2^R\right)^2+4V_F^2}$$

$$-\frac{i}{\hbar}E(\omega)\cdot\begin{pmatrix}\vec{d}^1\left(tr(|Exc_1\rangle\langle Exc_1|\rho)-tr(|g\rangle\langle g|\rho)\right)\\ \vec{d}^2\left(tr(|Exc_2\rangle\langle Exc_2|\rho)-tr(|g\rangle\langle g|\rho)\right)\end{pmatrix}$$

$$=\frac{i}{\hbar}\begin{pmatrix}E_1-\gamma-\hbar\omega & 0\\ 0 & E_2-\gamma-\hbar\omega\end{pmatrix}\begin{pmatrix}tr(|g\rangle\langle Exc_1|\rho)(\omega)\\ tr(|g\rangle\langle Exc_2|\rho)(\omega)\end{pmatrix}$$

Alle Zustände in neuer diagonaler Basis ausgedrückt!

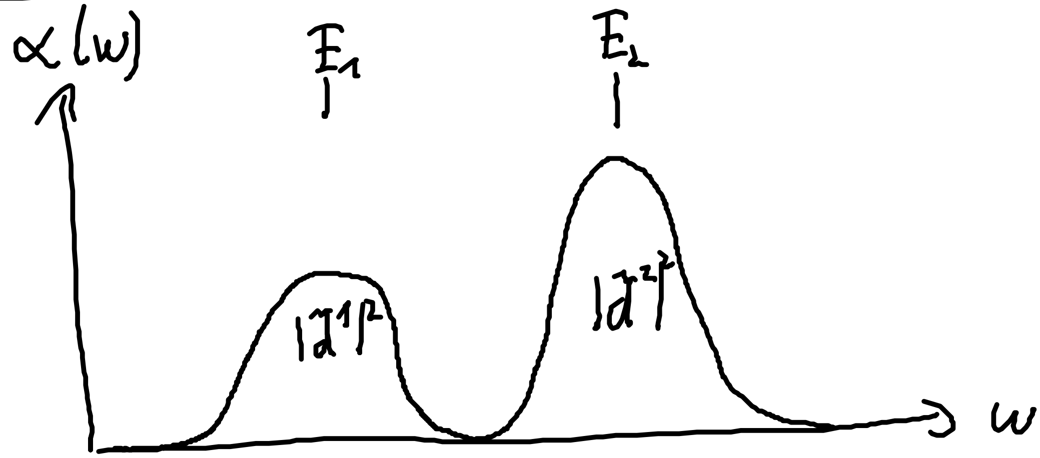
Also:

$$tr(|g\rangle\langle Exc1|\rho)(\omega)=\frac{i}{\hbar}\frac{E(\omega)\,\vec{d}^1(-i(\omega\hbar-E_1))}{(\hbar\omega-E_1)^2+\gamma^2}\left(tr(|Exc_1\rangle\langle Exc_1|\rho)-tr(|g\rangle\langle g|\rho)\right)$$

$$tr(|g\rangle\langle Exc2|\rho)(\omega)=\frac{i}{\hbar}\frac{E(\omega)\,\vec{d}^2(-i(\hbar\omega-E_2))}{(\hbar\omega-E_2)^2+\gamma^2}\left(tr(|Exc_1\rangle\langle Exc_1|\rho)-tr(|g\rangle\langle g|\rho)\right)$$

$$P(\omega)=\sum_i \vec{d}_i\, tr(|g\rangle\langle Exc_i|\rho)(\omega)+c.c.$$

Spektrum



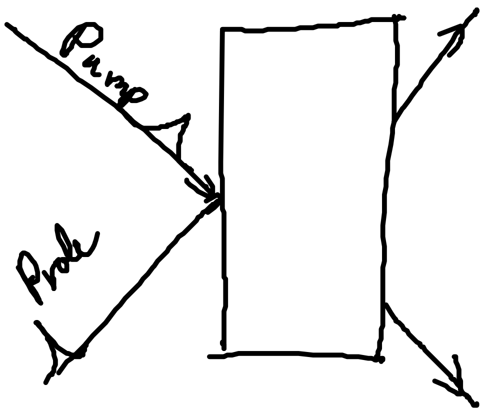
Information: - Energie der Zustände

- Oszillatorstärke, Fläche unter Resonanzkurve

↳ Es fehlt Information über die Art der Kopplung. Das Interessante bleibt offen!

⟹ Nichtlineare Optik

III. Informationsgewinnung aus optischen Spektren am Beispiel von Pump-Test-Spektrum



Spezialfall von Vierwellenmischen
Wichtig ist Signal
werden durch Propagationsrichtung separiert.
Annahme: Pump und Probe Puls zeitlich separiert
also Überlapp
Dynamik im System langsamer als Pulsbreite
Also Pumppulse verändert Material bis $|E|^2$ also $|E|^3 \approx 0$

Störungstheorie 3. Ordnung ⟸ Probepulse linear E

$$E_{Pu} \cdot E_{Pu} \cdot E_{Pr}$$