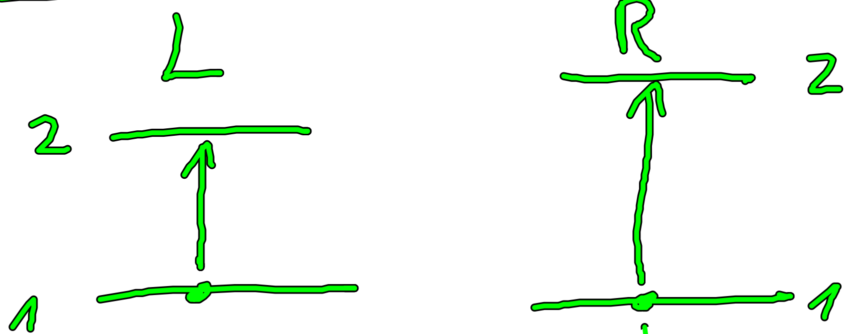
Zwei gekoppelte Zweiniveausysteme

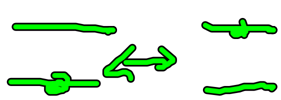


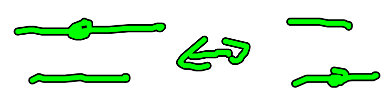
Zustand im System R

$\langle i\, j |$

Zustand im System L

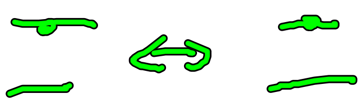
$$H = \sum_i \varepsilon_1^L |1i\rangle\langle 1i| + \sum_i \varepsilon_2^L |2i\rangle\langle 2i|$$
$$+ \sum_i \varepsilon_1^R |i1\rangle\langle i1| + \sum_i \varepsilon_2^R |i2\rangle\langle i2|$$
$$+ \sum_i E(t)\cdot d_{21}^R |i1\rangle\langle i2| + c.c.$$
$$+ \sum_i E(t)\cdot d_{21}^L |1i\rangle\langle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

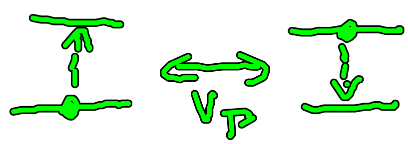




$$+ V^{BExc}|22\rangle\langle 22| + V_F\left(|12\rangle\langle 21| + |21\rangle\langle 12|\right)$$

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)

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

$$+\frac{i}{\hbar} V_F \, tr(|11\rangle\langle 21|\varrho) - \gamma_2 \, tr(|11\rangle\langle 12|\varrho)$$

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

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

Polarisation 2. Ordnung   2. Ordnung E-Feld

Analog

$$\partial_t tr(|11\rangle\langle 21|\varrho) = \frac{i}{\hbar}\left(\varepsilon_1^L - \varepsilon_2^L - V_2^{MExc} + V^{SS}\right) tr(|11\rangle\langle 21|\varrho)$$

$$+\frac{i}{\hbar} V_F \, tr(|11\rangle\langle 21|\varrho) - \gamma_1 \, tr(|11\rangle\langle 21|\varrho)$$

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

$$+\frac{i}{\hbar} E(t)\, d_{21}^{R}\left(tr(|12\rangle\langle 21|\varrho) - tr(|11\rangle\langle 22|\varrho)\right)$$

Zur Lösung das Ganze in Matrixform

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

$$\cdot \begin{pmatrix} tr(|11\rangle\langle 12|\varrho) \\ tr(|11\rangle\langle 21|\varrho) \end{pmatrix}$$

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

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

$\overset{\approx}{1}$

Fourier Transformation:

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

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

Zur Problem Lsg:

Matrixdiagonalisierung!

$\Downarrow$ Mathematica

Eigenwerte sind in Abhängigkeit von ω

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

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

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

Alle Zustände in neuer diagonaler Basis ausgedrückt!

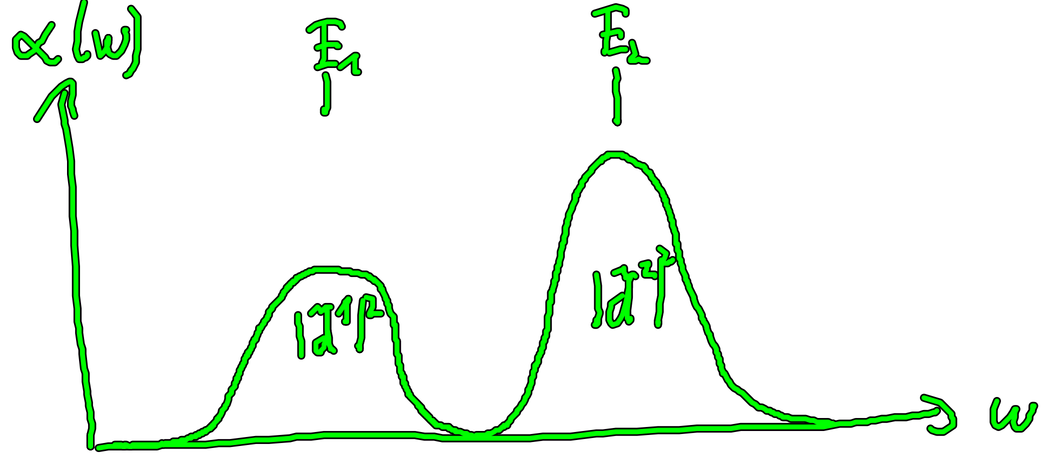
Also:

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

$$tr(|g\rangle\langle Exc_2|\rho)(\omega)=\frac{i}{\hbar}\frac{E(\omega)\,d^2\left(-i(\hbar\omega-E_2)\right)}{(\hbar\omega-E_2)^2+\gamma^2}\left(tr(|Exc_1\rangle\langle Exc_1|\rho)-tr(|g\rangle\langle g|\rho)\right)$$

$$P(\omega)=\sum_i d_i\, tr(|g\rangle\langle Exc_i|\rho)(\omega)+c.c.$$

Spektrum



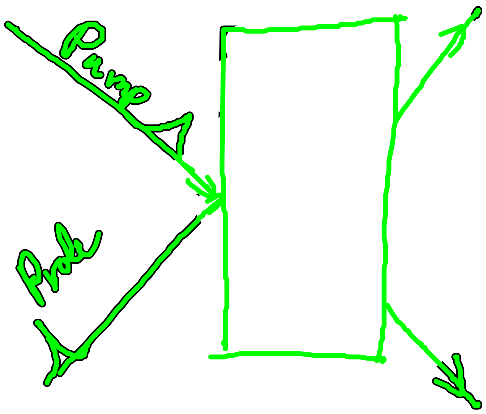
Information: - Energie der Zustände

- 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

$E_{pu} \cdot E_{pu} \cdot E_{pr}$