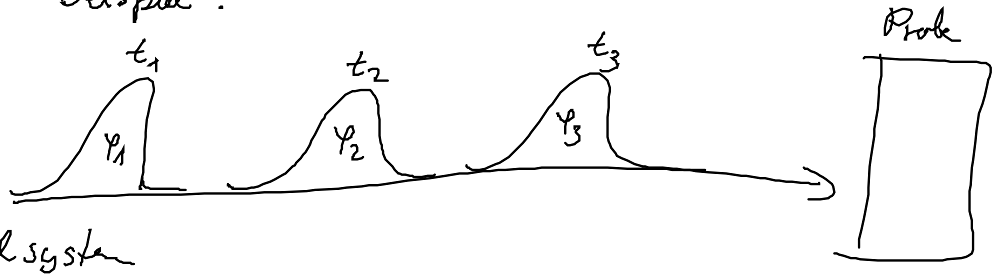
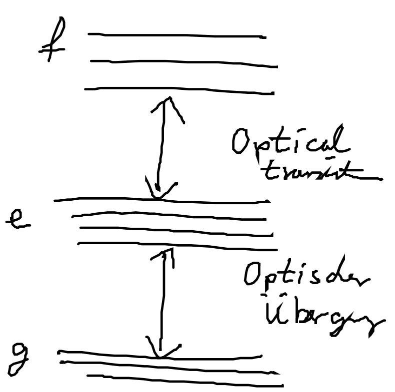
Wiederholung:

Pulskonfiguration für 2D Spektroskopie

Beispiel:



Beispielsystem



$$\rho(t)\big|_{3,\varphi_1+\varphi_2-\varphi_3} = \frac{i}{\hbar^3} U_0(t,t_3)\, H_{e-L,-}(t_3)\, U_0(t_2,t_1)\, H_{e-L,-}(t_1)\, U_0(t_1,t_0)\, \rho_0$$

mit $\rho_0 = |g\rangle\langle g|$

Fangen wir an mit der Analyse:

(i) $U_0(t_1,t_0)\,\rho(t_0) = U_0(t_1,t_0) \underbrace{|g\rangle\langle g|} = |g\rangle\langle g|$

$$H_{0,-}|g\rangle\langle g| = 0$$

(ii) $H_{e-L,-}(t_1)\, U_0(t_1,t_0)\, \rho(t_0) = H_{e-L,-}(t_1)\, |g\rangle\langle g|$

$$E_1(t_1) = \hat{E}_{Puls}(t_1)\, e^{i\omega_e t_1 + i\varphi_1} + \hat{E}^{*}_{Puls}(t_1)\, e^{-i\omega_e t_1 - i\varphi_1}$$

$$= H_{e-L}(t_1)\, |g\rangle\langle g| - |g\rangle\langle g|\, H_{e-L}(t_1)$$

$$= \sum_e \Big(\mu_{eg}\cdot E(t_1)\, |e\rangle\langle g| \quad \leftarrow (b)$$

$$- |g\rangle\langle e|\, \mu_{ge}\cdot E(t) \quad \leftarrow (a)$$

$$U_0(t_2,t_1)\, |g\rangle\langle e| = e^{-\frac{i}{\hbar}(E_g - E_e)(t_2 - t_1)}$$

$$\left(\frac{E_g - E_e}{\hbar} + \omega_e\right) t_1 \approx 0 \text{ bleibt (RWA!)}$$

$$\left(\frac{E_g - E_e}{\hbar} - \omega_e\right) t_1 \approx -2\,\omega_e t_1 \text{ schwingt}$$

$\hat{=}$ schnell weg!

$$= \sum_e \Big(\mathcal{N}_{eg}\, \hat{E}^{\times}_{puls}(t_1)\, e^{-i\omega_e t_1}\, e^{i\varphi_1}\, |e\rangle\langle g|$$

$$- |g\rangle\langle e|\, \mathcal{N}_{ge}\cdot \hat{E}_{puls}(t)\, e^{i\omega_e t_1}\, e^{-i\varphi_1}$$

(iii) $U_0(t_2,t_1)\, H_{e-L,-}(t_1)\, U_0(t_1,t_0)\, \rho(t_0)\, \rho(t_0)\Big|_{\varphi_1}$

$$= \sum_e \mathcal{N}_{eg}\cdot \hat{E}^{\times}_{puls}(t_1)\, e^{-i\omega_e t_1 + i\varphi_1}\, U_0(t_2,t_1)\, |e\rangle\langle g|$$

$$H_{0,-}\, |e\rangle\langle g| = (E_e - E_g)\, |e\rangle\langle g|$$

$$= \sum_e \mathcal{N}_{eg}\, \hat{E}^{\times}_{puls}(t_1)\, e^{-i\omega_e t_1 + i\varphi_1}\, e^{-\frac{i}{\hbar}(E_e - E_g)(t_2 - t_1)}\, |e\rangle\langle g|$$

(iv) Analog:

$$U_0(t_3 - t_2)\, H_{e-L,-}(t_2)\, U_0(t_2,t_1)\, H_{e-L,-}(t_1)\, U_0(t_1,t_0)\, \rho(t_0)\Big|_{\varphi_1+\varphi_2}$$

$$\overline{=} \ldots = \sum_{ef} \mathcal{N}_{fe}\cdot \hat{E}^{\times}_{puls}(t_2)\, \mathcal{N}_{eg}\, \hat{E}^{\times}_{puls}(t_1)\, e^{-i\omega_e(t_2+t_1) + i\varphi_1 + i\varphi_2}\, |f\rangle\langle g|$$

$$e^{-\frac{i}{\hbar}(E_f - E_g)(t_3 - t_2)}\, e^{-\frac{i}{\hbar}(E_e - E_g)(t_2 - t_1)}$$

(v) Am Ende gibt es dann (δ - Pulse)

$$\rho(t)\Big|_{3,\,\varphi_1+\varphi_2-\varphi_3} = \sum_{ef} \Big(\mathcal{N}_{ef}\, \hat{E}_{puls,3}(t_3)\, e^{i\omega_e t_3 - i\varphi_3}\, |e\rangle\langle g|\, e^{-\frac{i}{\hbar}(E_e - E_g)(t - t_3)}$$

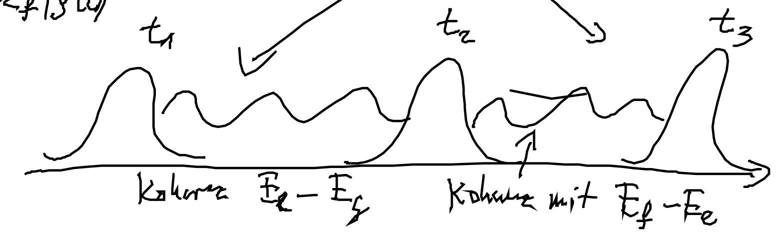
$$+ \mu_{ge} \cdot \hat{E}_{pos,3}(t_3)\, e^{i\omega_e t_3 - i\varphi_3}\, |f\rangle\langle e|\, e^{-\frac{i}{\hbar}(E_f - E_e)(t-t_3)}$$

$$\mu_{fe} \cdot \hat{E}^{\times}_{pos,2}(t_2)\, \mu_{eg} \cdot \hat{E}^{\times}_{pos,1}(t_1)\, e^{-i\omega_e(t_2+t_1)+i\varphi_1+i\varphi_2}$$

$$e^{-\frac{i}{\hbar}(E_e - E_g)(t_3 - t_2)}\, e^{-\frac{i}{\hbar}(E_e - E_g)(t_2 - t_1)}$$

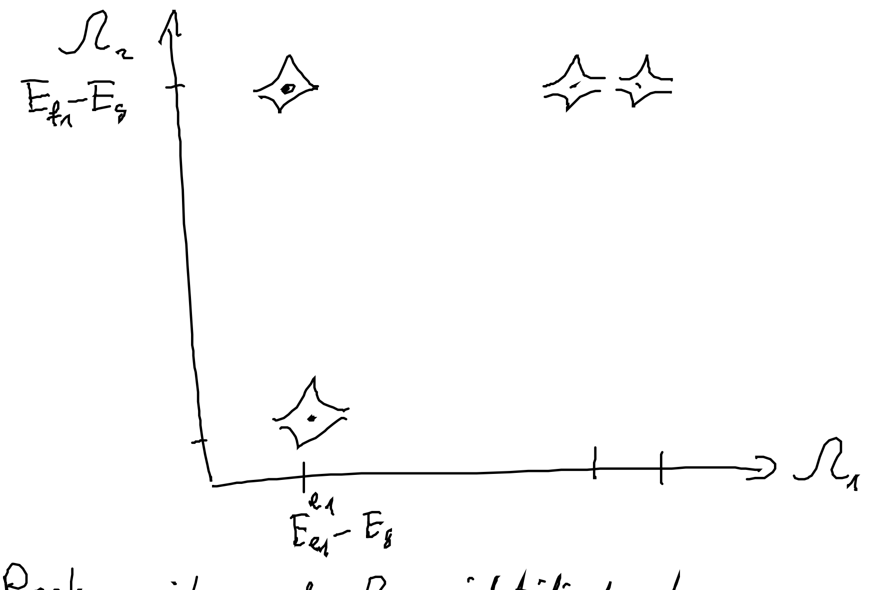
Bemerk:

$$P(t) = \sum_e \mu_{ge}\, tr(|g\rangle\langle e|\rho(t)) + \sum_{ef} \mu_{ef}\, tr(|e\rangle\langle f|\rho(t)) + c.c.$$

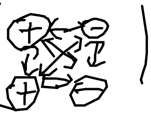


Jetzt die Verzögerungszeit variieren, und eine Fourier Transformation über $t_2 - t_1$ (Ω_1) und $t_3 - t_2$ (Ω_3) machen.

Nehmen wir ein Beispielsystem mit ein paar diskreten Level.



Peak position auf Ω_1 identifiziert das Exziton (⊕ ↔ ⊖) durch $\Omega_1 = E_e - E_g$ und Ω_2 das mit Exziton verbundene Biexziton.

$\left(\right.$  $\left.\right)$ $\quad \Omega_2 = E_f - E_z$

Ein Biexziton Zustand ist mit mindestens zwei Exzitonen.

Aus $2\,\Omega_1 \neq \Omega_2$ kann man den Biexziton-Shift ablesen.

XIII. Photonen

Bisher haben wir das optische Feld $\underline{E}(\underline{r},t)$ nicht in die Quantisierung miteinbezogen, sondern klassisch behandelt!

Diese semiklassische Theorie ist sehr gut für hohe Lichtintensitäten, ihr entgehen aber viele quantenoptische Prozesse

z.B.:

a) spontane Emission (z.B. für Fluoreszenz)

b) superradiant Effekt

c) Verschränkung

Ziel dieses Abschnitts

(i) Quantisierung des Elektromagnetischen Feldes

(ii) Elektron – Photon Wechselwirkung

(iii) Anwendung: Fluoreszenz.

XIII.1 Lagrangian und Eichung

Bevor wir das Photonenfeld quantisieren, kurz die Kopplung zw. Elektron und Licht in verschiedenen Eichungen zu vergleichen.

fundamentale Eichung, ww

$$H_{el} = \underbrace{\frac{(p - eA)^2}{2m} + \phi(\underline{r})}_{\text{p.A Kopplung kommt aus der Eichinvarianz}} \xrightarrow[\text{kanonische Transformation Power-Zienau-Woolley}]{} H_{el} = \frac{p^2}{2m} + \underset{\text{Dipol.}}{\underline{d} \cdot \underline{E}(\underline{r},t)} + \underset{\text{höhere Multipole}}{\ldots\ldots}$$

der Phase der Wellenfkt. Transformation

Bemerkungen: 1) $\phi(\underline{r})$ enthält auch die Coulomb Kopplung + Coulomb WW

2) Beide Formulierungen sind im Prinzip äquivalent, wenn keine Näherungen gemacht werden! Allerdings die Beschränkung auf die Dipolkopplung ist eine Näherung.

3) Näherungen haben je nach Eichung unterschiedliche Auswirkungen. Je nach Situation (Geometrie, Zustände, theoretische Methode) hat die eine oder andere Form der Kopplung Vorteile!

Meist ist die $d \cdot E$ Kopplung im Vergleich physikalischer, insbesondere bei Störungstheorie ($(p-eA)$ ist Geschwindigkeit)

Bei räumlich ausgedehnten Systemen ist $A \cdot p$ meist einfacher. Teilweise werden auch Eichungen für die spezielle Anwendung konstruiert.

4) Hier als Beispiel Ableitung der $\underline{A} \cdot \underline{p}$ Kopplung

Ausgangspunkt ist der klassische Lagrangian

$$L = \frac{1}{2} \int d^3r \Big(\varepsilon_0 \big(\underbrace{\dot{\underline{A}}}_{\substack{\text{transversaler Teil} \\ (\nabla\cdot\underline{A}=0)}}(\underline{r}) + \underbrace{\nabla\phi(\underline{r})}_{\text{longitudinal}} \big)^2 - \frac{1}{\mu_0} \big(\nabla \times \underline{A}(\underline{r})\big)^2$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_\alpha m_\alpha \dot{r}_\alpha^2 + \int d^3r \left[\underline{j}(\underline{r}) \cdot \underline{A}(\underline{r}) - \rho(\underline{r}) V(\underline{r}) \right] \Big)$$

Mit Hilfe der Euler-Lagrange Gl.

$$\frac{d}{dt} \frac{\delta L}{\delta \dot{\underline{A}}(\underline{r})} - \frac{\delta L}{\delta \underline{A}(\underline{r})} = 0 \qquad \frac{d}{dt} \frac{\delta L}{\delta \dot{\phi}(\underline{r})} - \frac{\delta L}{\delta \phi(\underline{r})} = 0$$

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{\underline{r}}_\alpha} - \frac{\partial L}{\partial \underline{r}_\alpha} = 0$$

ergeben sich die Newton'schen Gleichungen und die Gleichungen der Potentiale

$$\nabla \times \nabla \times \underline{A}(\underline{r}) + \mu_0 \varepsilon_0 \ddot{\underline{A}}(\underline{r}) + \mu_0 \varepsilon_0 \nabla \dot{\phi}(\underline{r}) = \mu_0 \underline{j}(\underline{r})$$

und

$$-\varepsilon_0 \left[\Delta \phi(\underline{r}) + \nabla \cdot \dot{\underline{A}}(\underline{r}) \right] = \rho(\underline{r})$$

+ Newton Gleichung mit Lorentzkraft

Zur Vereinfachung verwenden wir die Coulomb Eichung

$$\nabla \cdot \underline{A} = 0$$

mit den Potentialgleichungen:

$$\Delta \underline{A}(\underline{r}) - \frac{1}{c^2} \ddot{\underline{A}}(\underline{r}) = -\mu_0 \underline{j}^{\perp}(\underline{r})$$

Transversal Strom (Helmholtztheorem)

$$-\varepsilon_0 \Delta \phi(\underline{r}) = \rho(\underline{r})$$

In Coulomb Eichung wird das E-Feld $\underline{E}(\underline{r},t) = \underline{E}_{\perp}(\underline{r},t) + \underline{E}_{\parallel}(\underline{r},t)$

Wobei $\underline{E}^{\perp}(\underline{r}) = -\dot{\underline{A}}(\underline{r})$ transversaler Anteil

$\underline{E}^{\parallel}(\underline{r}) = -\nabla \phi(\underline{r})$ longitudinaler Anteil

Mit $\phi(\underline{r}) = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \int d^3r' \frac{\rho(r')}{|\underline{r}-\underline{r}'|}$

besteht das Coulombpotential komplett!

Daher wird nur $\underline{A}$ quantisiert.

$$L = \frac{1}{2} \int d^3\underline{r} \left(\varepsilon_0 \dot{\underline{A}}^2(\underline{r}) - \mu_0^{-1} (\nabla \times \underline{A}(\underline{r}))^2 \right)$$

$$+ \frac{1}{2} \sum_a m_a \dot{\underline{r}}_a^2 - \underbrace{\frac{1}{2} \int d^3r\, \rho(\underline{r})\, \phi(\underline{r})} + \int d^3r\, \underline{j}(\underline{r})\, \underline{A}(\underline{r})$$

$$\rightarrow = \frac{\varepsilon_0}{2} \int d^3r\, |\nabla \phi(\underline{r})|^2 = \frac{\varepsilon_0}{2} \int d^3\underline{r}\, |\underline{E}^{\parallel}(\underline{r})|^2$$

$$= \frac{1}{8\pi\varepsilon_0} \sum_{a,a'} \frac{Q_a Q_{a'}}{|\underline{r}_a - \underline{r}_{a'}|}$$

Das skalare Potential wird komplett durch die Elektronen beschrieben und ist keine unabhängige Feldvariable.

$$\frac{d}{dt}\frac{\delta L}{\delta \dot{\underline{A}}(r)} - \frac{\delta L}{\delta \underline{A}(r)} = 0$$

Wichtig δ bedeutet eine modifizierte Funktionalableitung, um $\nabla \cdot \underline{A} = 0$ zu erfüllen

Definition s. Buch Vogel, Welsch

Variation von L verhält sich $\delta S = 0 \rightarrow \delta S = 0$