

# III.5 Diagramme markieren:

## Richtungsselektion und Phase-Cycling

Die Quantenpfade erlauben genaue Analyse der Quantendynamik im Material.

Wir können nicht viele Informationen aus Experimenten erhalten da die Quantenpfade sich überlagern und interferieren.

Wunsch: Wir bräuh etwas um wenigstens ein Teil der Diagramme zu trennen.

Idee: We do it wisely manipulate!

Einfluß auf die Licht-Materie WW  
mit E-Feld

$$E(t) = \sum_i e^{i\omega_i t} \vec{E}_i(t) + \sum_i e^{-i\omega_i t} \vec{E}_i^*(t)$$

Photon von links oder von rechts kommt (DM) entscheidet, ob es absorbiert oder emittiert (je nach Seite der Dichtematrix)

Voraussetzung:

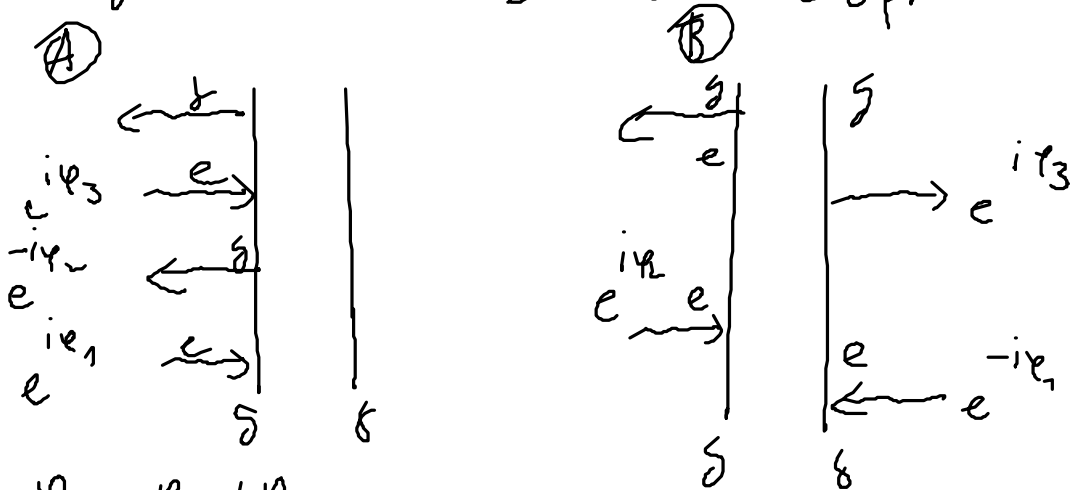
Irgendwas wie RWA muß gelten oder ähnliches! (z. B. TPA)

$$E(t) = \sum_i e^{i\omega_e t} e^{i\varphi_i} E_i(t) + \sum_j e^{-i\omega_e t - i\varphi_j} E_j^*(t)$$

$$E(t, \{p_i\})$$

Beispiel Pulssequenz  $\wedge$   $\wedge$   $\wedge$  zeitsequenz  
 $e^{i\varphi_1}$   $e^{i\varphi_2}$   $e^{i\varphi_3}$

Signal in dritter Ordnung Beispiel



$$\varphi_1 - \varphi_2 + \varphi_3$$

$$\parallel$$
  

$$\varphi_{II}$$

$$-\varphi_1 + \varphi_2 + \varphi_3$$

$$\parallel$$
  

$$\varphi_I$$

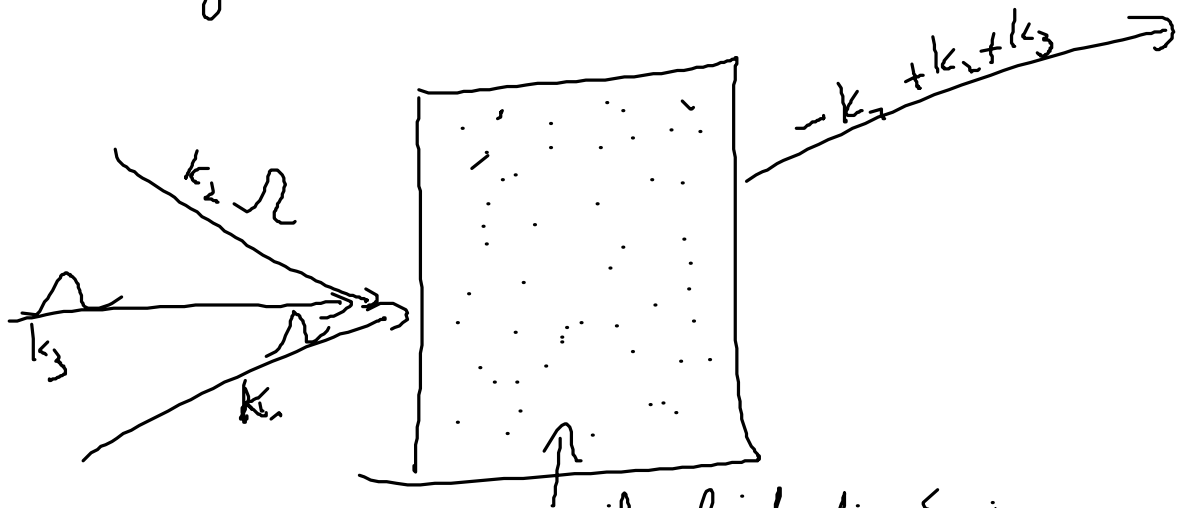
Also ist A das Signal proportional zu

$$(A) S_{(A)} \propto e^{+i\varphi_1 - i\varphi_2 + i\varphi_3}$$

$$(B) S_{(B)} \propto e^{-i\varphi_1 + i\varphi_2 + i\varphi_3}$$

Also wir können Beiträge anhand der unterschiedlichen  
 funktionalen Abhängigkeit von den Phasen erkennen!

# i) Richtungsleiter



Die Felder haben eine Phase abhängig bzgl. des Raums  
von  $e^{i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}}$  je nach eingestrahelter Richtung!  
viele gleichartige Systeme

$$\mathbf{k}_{\text{em}} = \pm \mathbf{k}_1 \pm \mathbf{k}_2 \pm \mathbf{k}_3$$

Emission in bestimmte Richtung wird konstruktive Interferenz der Emitter der Beträge mit  $e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}$  über genügend großen Raumbruch erzeugt.

Ergebnis: Gleichzeitige Anführung des Experiments an verschiedenen Orten, mit verschiedenen Phasen, führt zur Abstrahlung des Signals in verschiedenen Richtungen je nach betriebl. Startphasen.

Experimentel: Meist wird die sogenannte Boxer Geometrie verwendet, zusammen heterodynen Detektor! (Erklärt Detektor der Phase!)

## ii) Phase Cycling

In manchen Systemen ist Richtungsselektion nicht möglich

- 1) Wellen laufen nur <sup>eine</sup> propagierte Richtung
- 2) Einzelsystem, nicht genügend System um eine Richtung zu selektieren.
- 3) Detektion von Fluoreszenz oder Photoelektronen, da nicht Richtung weitergeben da kein kohärenter Prozess.

a) Verfahren mit diskreten Phasen

$$S(\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3) = \sum_{n, k, l} e^{i(n\varphi_1 + k\varphi_2 + l\varphi_3)} S_{nkl}(\dots)$$

Als Matrix  
aufbauen.  
(Basiswechsel)
Diagramm summiert  
über entsprechende  
Phasenkombinationen

$M_{\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3; n, k, l}$

Idee: Wir wählen genügend viele Phasen  $\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3$   
 so dass  $M$  invertierbar ist!  $\det M \neq 0$

$$S_{nkl}(\dots) = \sum_{\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3} (M^{-1})_{\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3; nkl} S(\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3)$$

b) Repetitive Ausführung des Experiments zu Zeiten  $T$

$$\varphi_i = T \Omega_i \quad \text{Frequenz } \Omega_i \text{ verschieden}$$

Dann wird

$$S(T) = \sum_{n, k, l} e^{iT(n\Omega_1 + k\Omega_2 + l\Omega_3)} S_{nkl}(\dots)$$



↓ Fouriertransformierte bzgl.  $T$

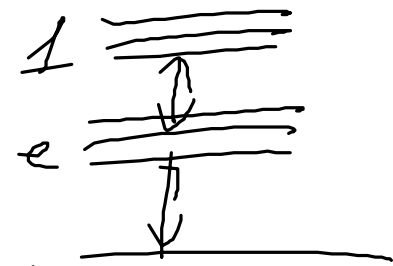
$$S(\Omega) = \sum_{n, k_1, k_2} \delta(n\Omega_1 + k_2\Omega_2 + k_3\Omega_3 - \Omega) S_{n, k_1, k_2}(\dots)$$

Berechnung zur Berechnung

- (i) Phase Cycling Methoden ist auch sehr gut zur Berechnung von Röntgenstrahlensignalen geeignet. Einfall 5 für verschiedene Phasen kombinieren simulieren. (z. B. Pump-Probe, 4 Wellenl.)
- (ii) Methoden kann dies auch in anderen Gebieten verwendet werden z. B. Transport.

Beispiel: 3 klare impulsive Kohärenz 2D Spektroskopie

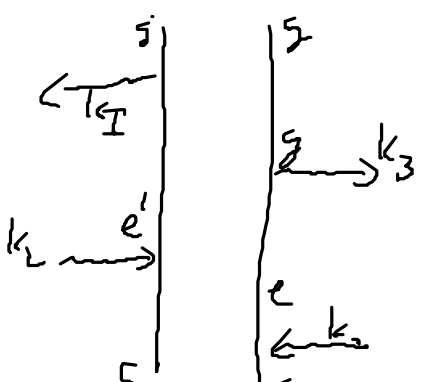
Demonstration am Beispiel



(a)  $k_T = -k_1 + k_2 + k_3$  2D Photonen

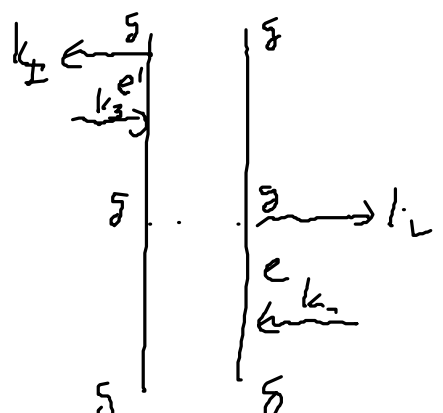
Diagramme

ESE



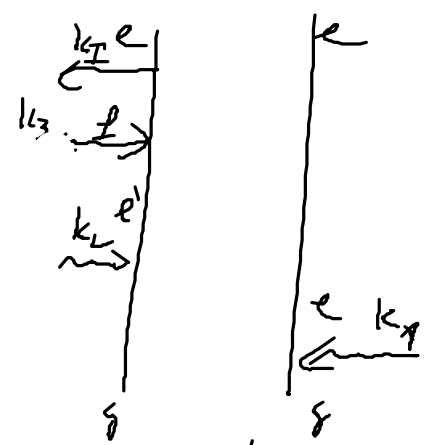
excited states emission

GSB



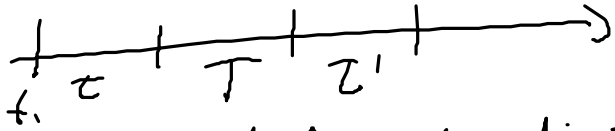
ground state bleaching

EPA



excited state absorption

Emission erfolgt aus angeregtem Zustand  
Zeit



Es ist hilfreich die Spektren durch FT über die Verzögerungszeiten  $\tau, T, \tau'$  darzustellen!

Wir bleiben bei <sup>einfach</sup> Beispiel Grantket:

$$G_{ij}(\bar{\omega}) = e^{-i\omega_{ij}\tau - \gamma_{ij}\bar{\tau}} \Theta(\bar{\tau})$$

$$G_{ij}(\Omega) = \int_0^{\infty} d\bar{\tau} e^{i\Omega\bar{\tau}} e^{-i\omega_{ij}\bar{\tau} - \gamma_{ij}\bar{\tau}}$$

$$= \frac{1}{i(\Omega - \omega_{ij} + i\gamma_{ij})}$$

Alles für heterodyne detektiertes Signal

$$S(t) = \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{loc}}(\tilde{t}-t) P(\tilde{t}) d\tilde{t}$$

↑  
Lokaloszillator

Warnung: Spektrale Auflösung hängt von der Genauigkeit der Kontrolle der Verzögerungszeiten und Phasenstabilität ab.

ISE:

$$\int_{\omega_j}^{\text{ISE}} (\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3) = + \left(\frac{-i}{\hbar}\right)^3 \frac{1}{i^3} \sum_{e e' e''} E_{\text{loc}} \mu_{ge'} E_3 \mu_{e'e''} E_2 \mu_{e''g} E_1 \mu_{ge}$$

$$\frac{1}{\Omega_3 - \omega_{eg} + i\gamma_{eg}}$$

Singulexitation  
zu ground state  
übergang

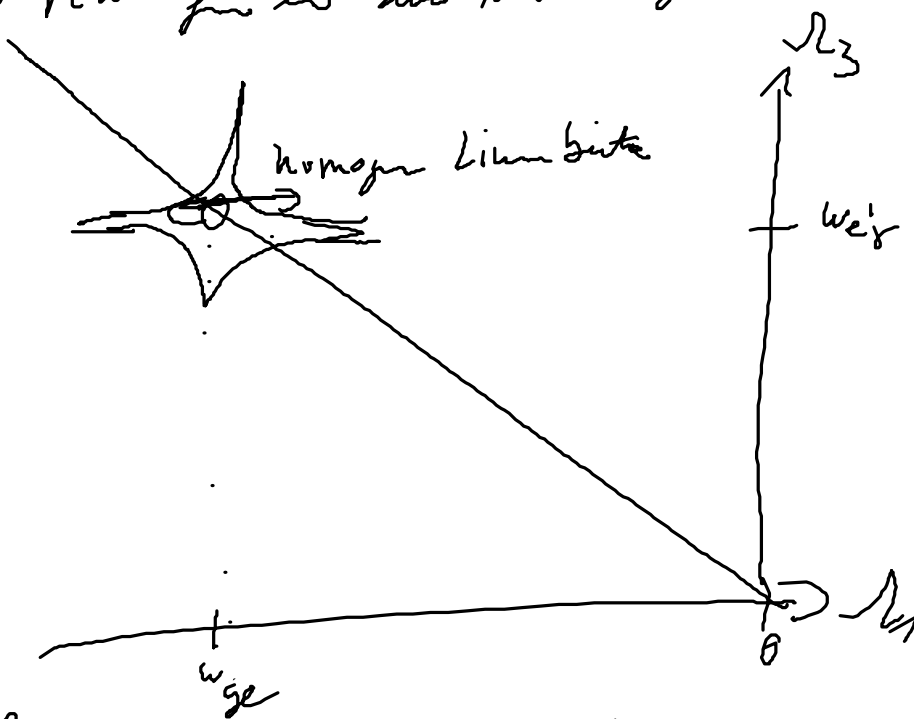
$$\frac{1}{\Omega_2 - \omega_{e'e} + i\gamma_{e'e}}$$

↑  
Kohärenz  
zwischen exciton  
zuständen

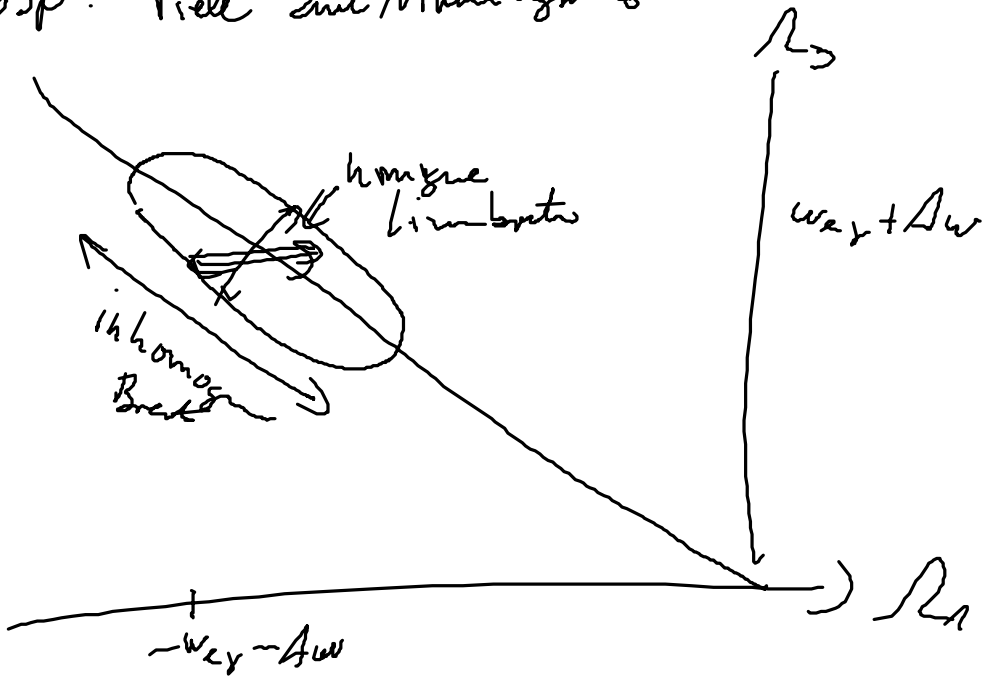
$$\frac{1}{\Omega_1 - \omega_{ge} + i\gamma_{ge}}$$

↑  
groundzustand  
zu Singulexitation  
übergang

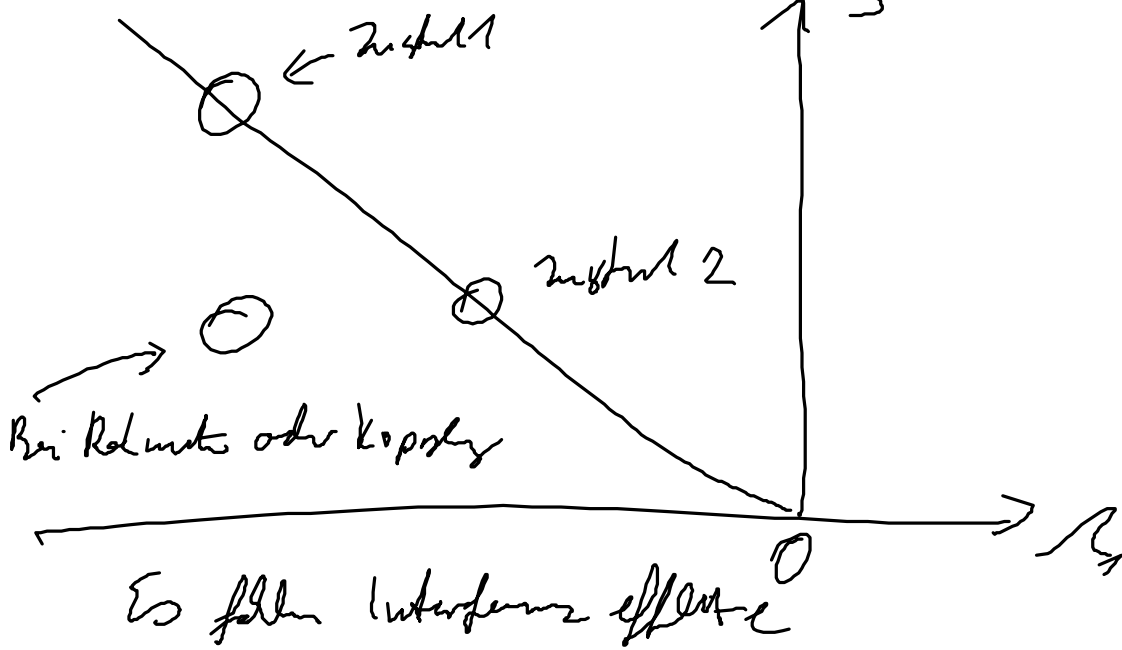
Bsp PLT für ein zwei Niveaus System



Bsp: Viele zwei Niveaus Systeme



Bei jedem Zustand ohne Reflexion



SSB

$$\int_{k \in \mathbb{Z}}^{SSB} (\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3) = + \left(-\frac{1}{\hbar^3}\right) \sum_{e|e} E_s \cdot N_{s,e} E_3 \cdot N_{3,e} E_2 \cdot N_{2,e} E_1 \cdot N_{1,e}$$

$$\frac{1}{\Omega_3 - \omega_{e1e} + i\gamma_{e1e}} \quad \frac{1}{\Omega_2 - \omega_{s3e} + i\gamma_{s3e}} \quad \frac{1}{\Omega_1 - \omega_{2e} + i\gamma_{2e}}$$

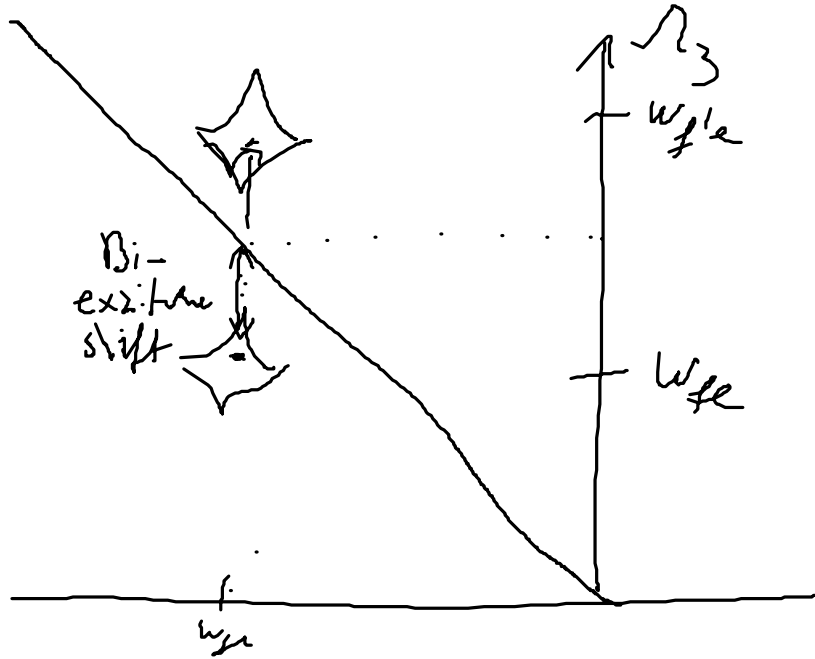
Diskussion analysieren EIT

Bleibt ESA diskussion

$$\int_{k \in \mathbb{Z}}^{ESA} (\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3) = - \left(-\frac{1}{\hbar^3}\right) \sum_{e|e} E_s \cdot N_{s,e} E_3 \cdot N_{3,e} E_2 \cdot N_{2,e} E_1 \cdot N_{1,e}$$

$$\frac{1}{\Omega_3 - \omega_{3e} + i\gamma_{3e}} \quad \frac{1}{\Omega_2 - \omega_{e2e} + i\gamma_{e2e}} \quad \frac{1}{\Omega_1 - \omega_{se} + i\gamma_{se}}$$

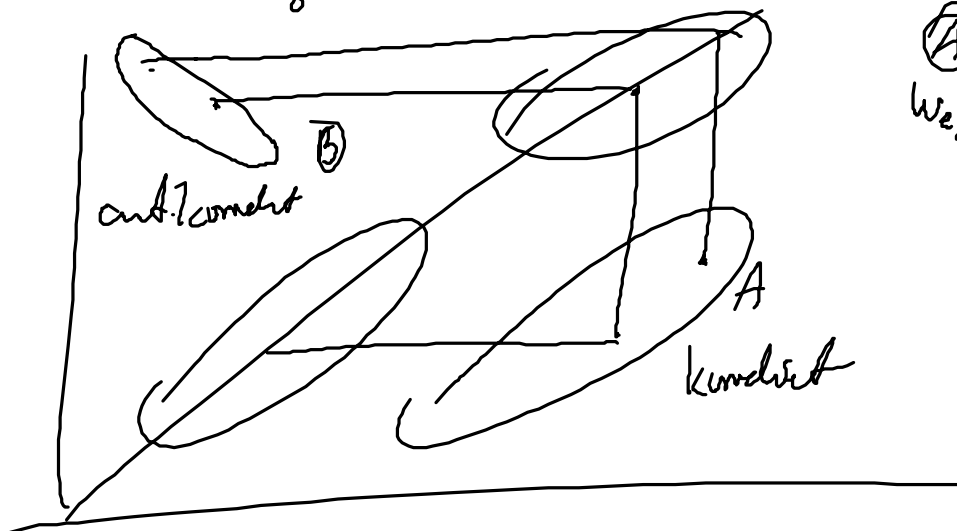




Bemerkung: Alle drei Platte überlegen sich und führen zu Quaterinterferenz und können sich gegenseitig auflösen,

Bemerkung für das offdiagonale Peak bei inhomogener Verteilung

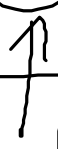
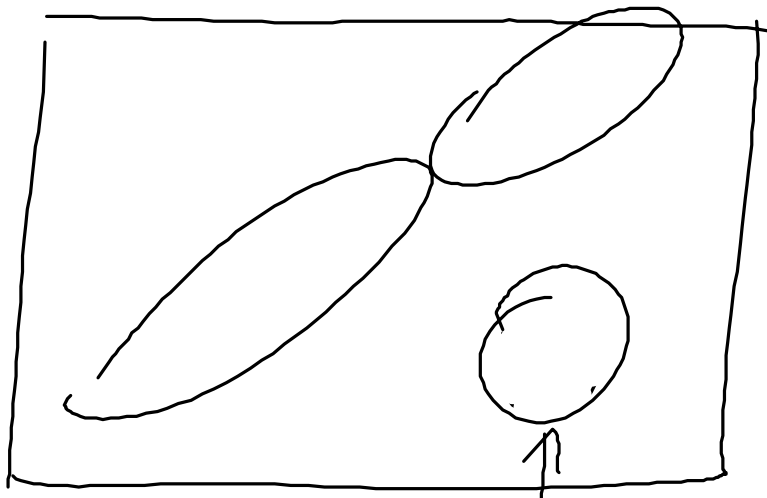
Fom sagt etwas über statistische Eigenschaften der Verteilung



Ⓐ  $\omega_{e_1} + \Delta\omega \rightarrow \omega_{e_1} + \Delta\omega'$   
 $\omega_{f/2} + \Delta\omega'$   
 konvergent

Ⓑ  $\omega_{e_1} + \Delta\omega \rightarrow \omega_{e_1} - \Delta\omega'$

$$W_{fe} - \Delta W$$



Reind = unkonstant