

### III.5 Diagramme markieren:

#### Richtungsselektion und Phase-Gleichig

Die Quantenpfade erlauben genaue Analyse der Quantendynamik im Material.

Wir können nicht viel Information aus Experimenten erhalten da die Quantenpfade sich überlagern und interferieren.

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

Idee: Weidewiskung manipulieren!

Einfluß auf die Licht-Materie WW  
hrt E-Feld

$$E(t) = \sum_i e^{i\omega_i t} \hat{E}_i^{\uparrow}(t) + \sum_i e^{-i\omega_i t} \hat{E}_i^{\downarrow}(t)$$

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

Voraussetzung:

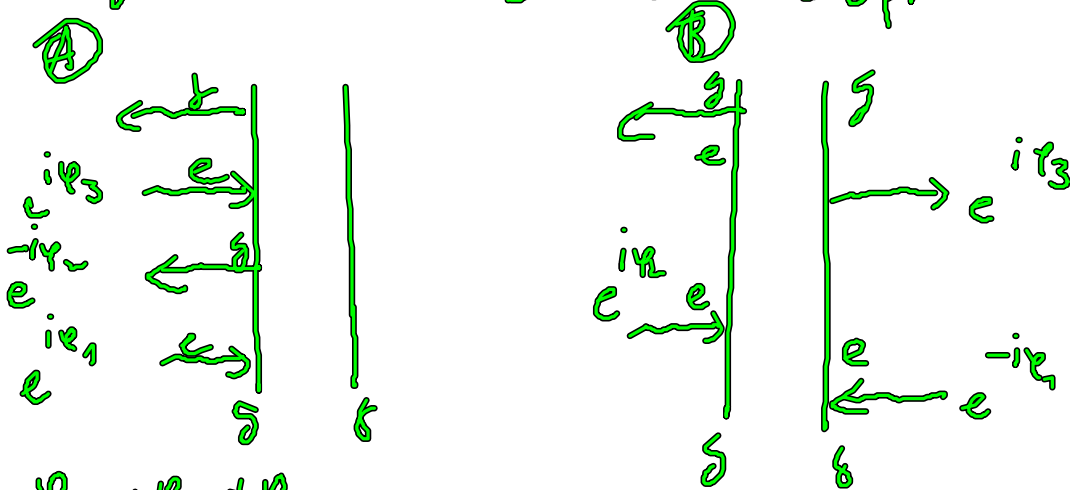
↳ irgendwas wie RWA  
muß gelten oder  
ähnliches! (z. B. TPA)

$$E(t) = \sum_i e^{i\omega_e t} e^{i\varphi_i} \overset{1}{E}_i(t) + \sum_i e^{-i\omega_e t - i\varphi_i} \overset{1}{E}_i^*(t)$$

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

Beispiel Pulsequenz  $\underbrace{\quad}_{e^{i\varphi_1}} \quad \underbrace{\quad}_{e^{i\varphi_2}} \quad \underbrace{\quad}_{e^{i\varphi_3}}$  zeitstetig

Signal in dritter Ordnung Beispiel



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

$$\equiv \varphi_{II}$$

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

$$\equiv \varphi_I$$

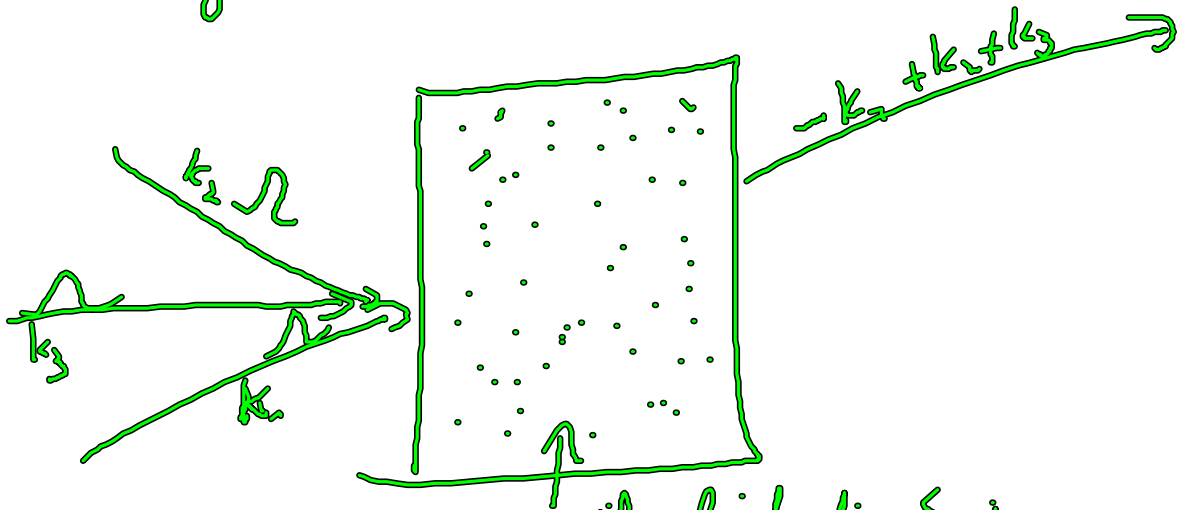
Also ist das Signal proportional zu

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

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

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  $e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$  je nach einfallender Richtung!  
viele gleichzeitige Systeme

$$k_{\text{em}} = \pm k_1 \pm k_2 \pm k_3$$

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

Ergebnis: Gleichzeitige Anhebung des Exponenten an  
verschiedenen Orten, mit verschiedenen Phasen,  
führt zur Abstrahlung des Signals in verschiedenen  
Richtungen je nach betragend unterschiedlichen.

Experiment: Meist wird die sogenannte Boxer  
Geometrie verwendet, zusammen heterodynen  
Detektoren! (Erklärt Aufbau der Phase!)

## ii) Phase Gelyng

In manchen Systemen ist Richtungsselektion nicht möglich

- 1) Wellenlängen <sup>erine</sup> unipropagierende Richtungen
- 2) Einzelsystem, nicht genügend Systeme zur Richtungsselektion.
- 3) Detektion von Fluoreszenz oder Photoelektronen, definiert Richtung vorgeben da kein kohärenter Prozess.

a) Verfahren mit diskreten Phasen

$$S(\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3) = \sum_{hkl} \underbrace{e^{i(n\varphi_1 + k\varphi_2 + l\varphi_3)}}_{\substack{\text{Als Matrix} \\ \text{auffassen.} \\ \text{(Basiswechsel)}}} \underbrace{S_{hkl}(\dots)}_{\substack{\text{Diagramm stimmt} \\ \text{mit entsprechenden} \\ \text{Phasenkombinationen}}}$$

$M_{hkl} = S_{hkl}(\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3)$

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

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

b) Repetitive Auswertung des Experiments zu Zeiten  $T$

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

Dann wird

$$S(T) = \sum_{hkl} e^{iT(n\lambda_1 + k\lambda_2 + l\lambda_3)} S_{hkl}(\dots)$$

↓  
Fouriertransformiertes System  $T$

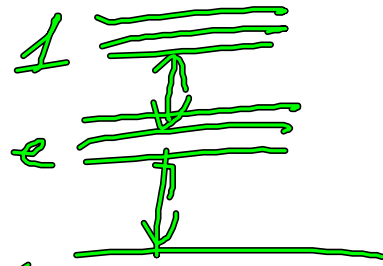
$$S(\omega) = \sum_{n,k,l} \delta(n\omega_1 + k\omega_2 + l\omega_3 - \omega) S_{nkl}(\dots)$$

Boundary zu Boundary

- (i) Phase Cycling Methode ist auch sehr gut zur Boundary von Richtungsleiter-signalen geeignet. Einfall 5 für verschiedene Phasen kombinieren simulieren. (z. B. Pump-Probe, 4 W.M.)
- (ii) Methode kann dies auch in anderen Gelenken verwendet werden z. B. Transp.v.

Beispiel: 3 klare impulsive korrekte 2D Spektroskop

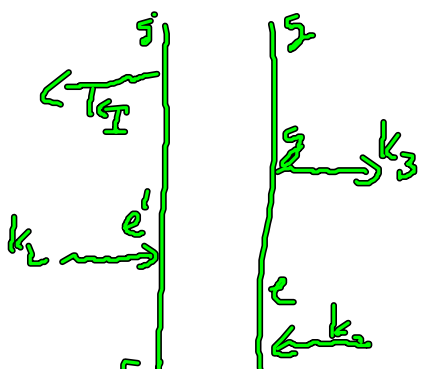
Demonstration am Beispiel



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

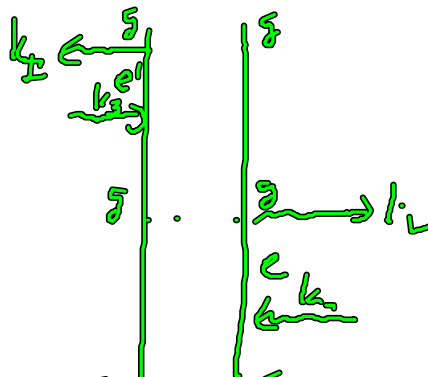
Diagramm

ESE



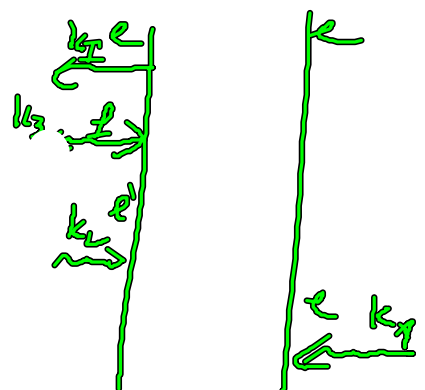
excited state emission

GSB



ground state bleaching

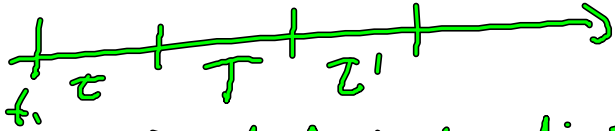
ESA



excited state absorption

Emission erfolgt aus angeregtem Zustand

Zeit



Es ist hilfreich die Spektra durch FT über die Verzögerzeiten  $\tau, T, \tau'$  darzustellen!

Wir wählen hier <sup>nicht</sup> Beispiel Gaußket:

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

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

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

Also für heterodyne detektiertes Signal

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

↑ Lokales Oszillat.

Wichtig: Spektrale Auflösung hängt von der Genauigkeit der Kontrolle der Verzögerzeiten und Phasenstabilität ab.

ISE:

$$\int_{\omega_1}^{\omega_2} (\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3) = + \left(\frac{1}{\hbar}\right)^3 \frac{1}{i^3} \sum_{e, e'} E_{e, e'} \mu_{e, e'} E_3 \mu_{e, e'} E_2 \mu_{e, e'} E_1 \mu_{e, e'}$$

$$\frac{1}{\Omega_3 - \omega_{e_3} + i\gamma_{e_3}}$$

Singuläre exzitation  
zu ground state  
übergang

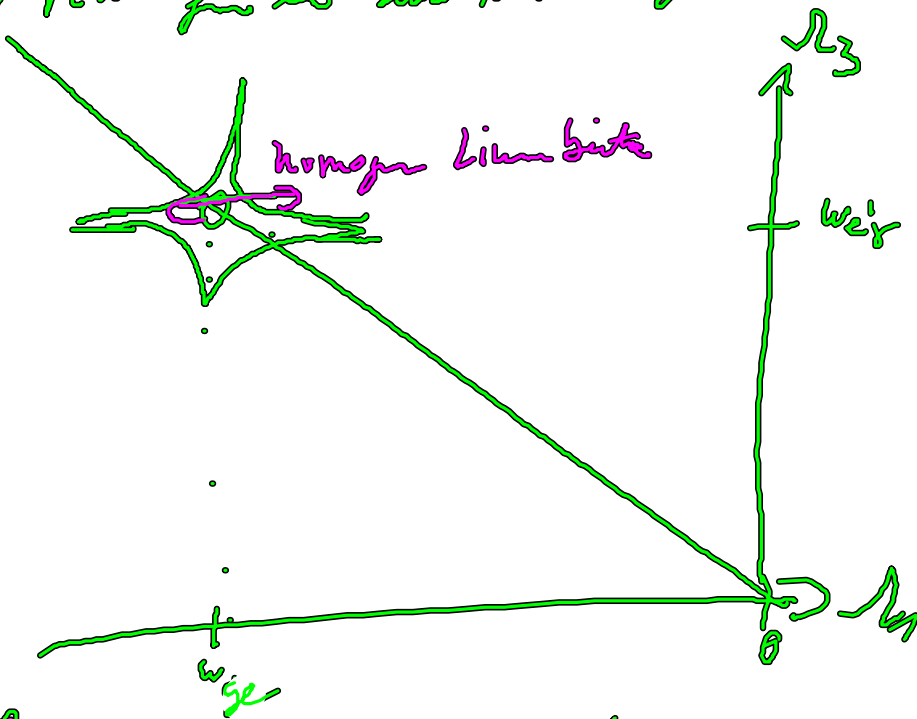
$$\frac{1}{\Omega_2 - \omega_{e_2} + i\gamma_{e_2}}$$

Kohärenz:  
Zwischen exzitierten  
Zuständen

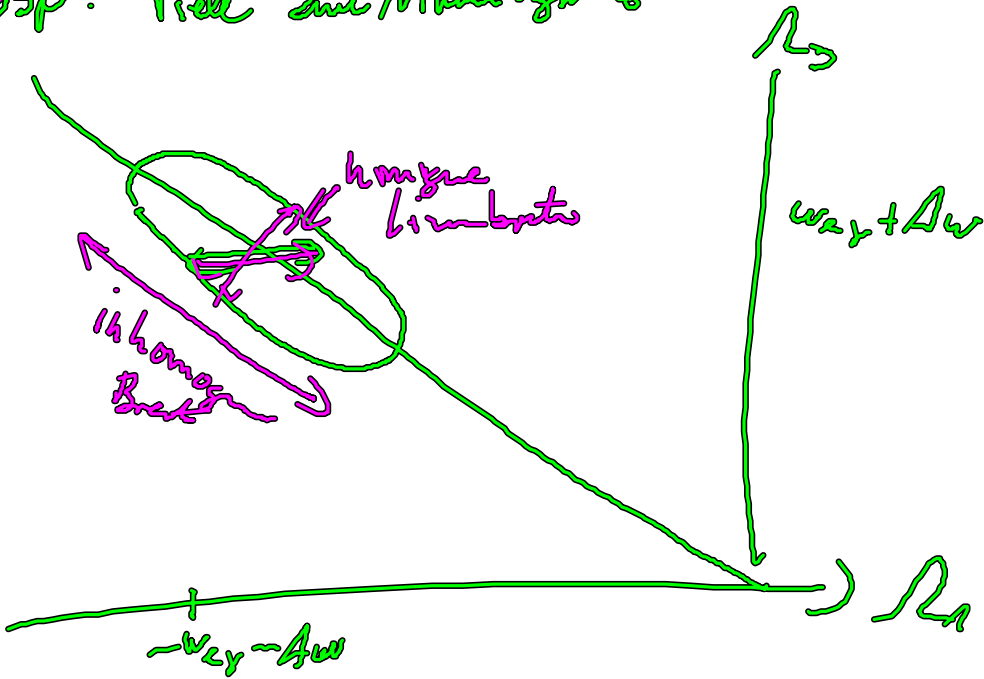
$$\frac{1}{\Omega_1 - \omega_{e_1} + i\gamma_{e_1}}$$

Grundzustand  
zu Singulärer  
übergang

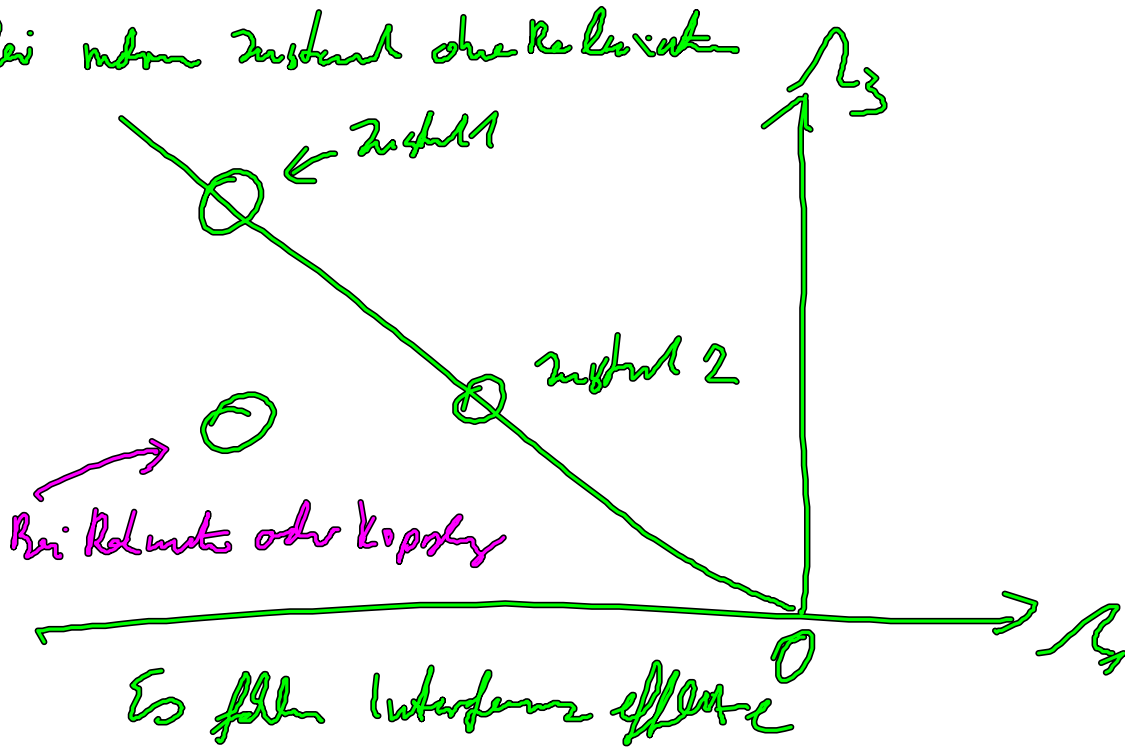
Bsp Plot für ein zwei Niveaus System



Bsp: Viel zwei Niveaus Systeme



Bei einem Zustand ohne Relativität



SSB

$$\int_{\Omega_{\pm}}^{SSB} (\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3) = + \left(-\frac{1}{\hbar^3}\right) \sum_{\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3} E_{\sigma_1} \cdot N_{\sigma_1} E_{\sigma_2} \cdot N_{\sigma_2} E_{\sigma_3} \cdot N_{\sigma_3} E_{\sigma_1} \cdot N_{\sigma_1} E_{\sigma_2} \cdot N_{\sigma_2}$$

$$\frac{1}{\Omega_3 - \omega_{\sigma_1 \sigma_2} + i\eta_{\sigma_1 \sigma_2}} \quad \frac{1}{\Omega_2 - \omega_{\sigma_2 \sigma_3} + i\eta_{\sigma_2 \sigma_3}} \quad \frac{1}{\Omega_1 - \omega_{\sigma_3 \sigma_1} + i\eta_{\sigma_3 \sigma_1}}$$

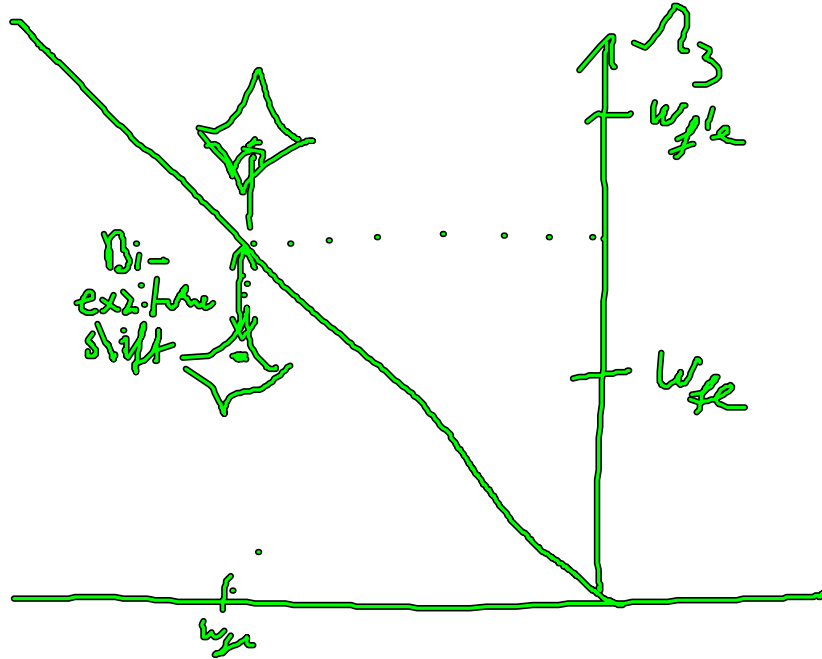
Diskussion analysieren ESB

bleibt ESA distinktion

$$\int_{\Omega_{\pm}}^{ESA} (\Omega_1, \Omega_2, \Omega_3) = - \left(-\frac{1}{\hbar^3}\right) \sum_{\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3} E_{\sigma_1} \cdot N_{\sigma_1} E_{\sigma_2} \cdot N_{\sigma_2} E_{\sigma_3} \cdot N_{\sigma_3} E_{\sigma_2} \cdot N_{\sigma_2} E_{\sigma_1} \cdot N_{\sigma_1}$$

$$\frac{1}{\Omega_3 - \omega_{\sigma_2 \sigma_3} + i\eta_{\sigma_2 \sigma_3}} \quad \frac{1}{\Omega_2 - \omega_{\sigma_1 \sigma_2} + i\eta_{\sigma_1 \sigma_2}} \quad \frac{1}{\Omega_1 - \omega_{\sigma_3 \sigma_1} + i\eta_{\sigma_3 \sigma_1}}$$

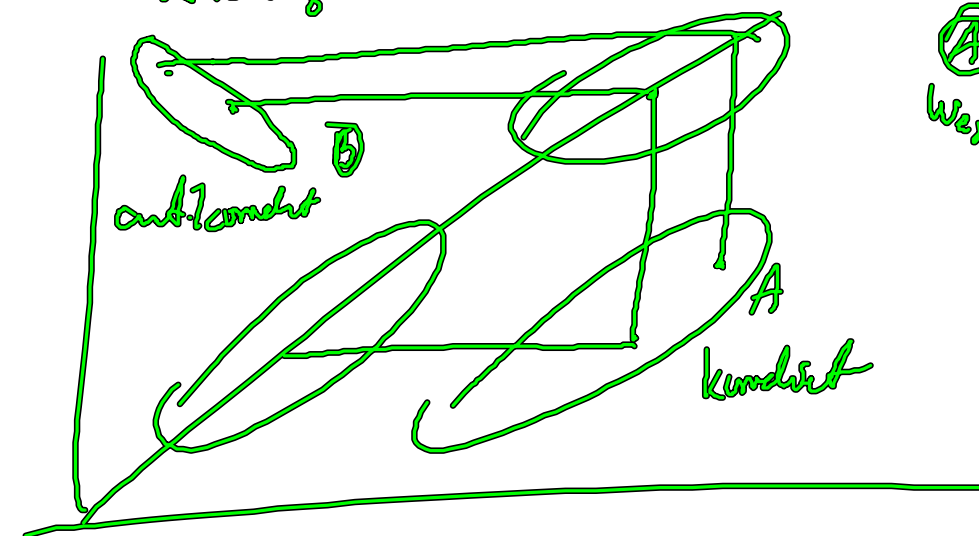




Bemerkung: Alle drei Plakete überlagern sich  
 und führen zu Quaternitbildung und  
 können sich gegenseitig auflösen,

Bemerkung für das off-diagonale Beiwert bei  
 inhomogener Verteilung

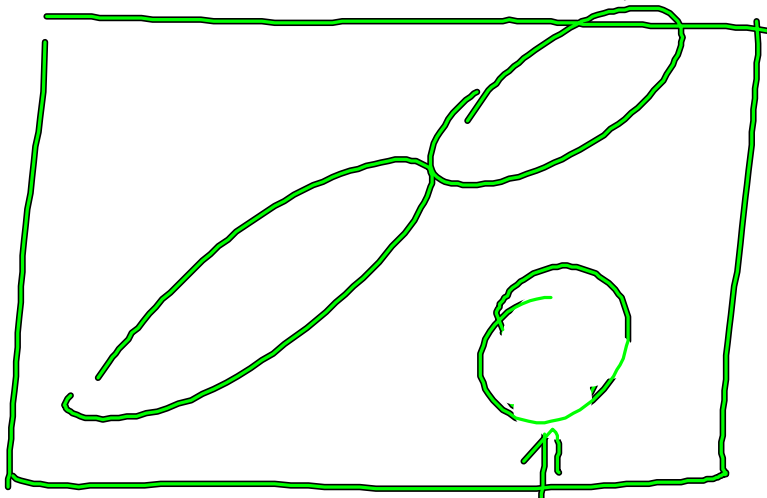
Form sagt über statistische Eigenschaften  
 der Verteilung



(A)  
 $w_{2,1} + \Delta w \rightarrow w_{2,1} + \Delta w'$   
 $w_{1,2} + \Delta w'$   
 kundiert

(B)  
 $w_{2,1} + \Delta w \rightarrow w_{2,1} - \Delta w'$

$$w_{fi} - \Delta w_i$$



Rend = unkonst