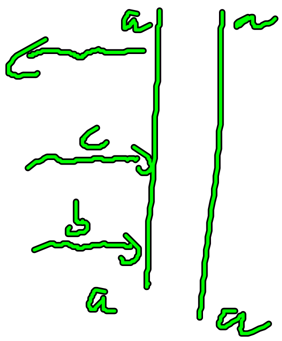
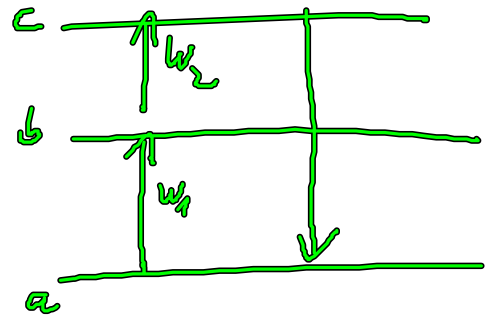
Second harmonic generation



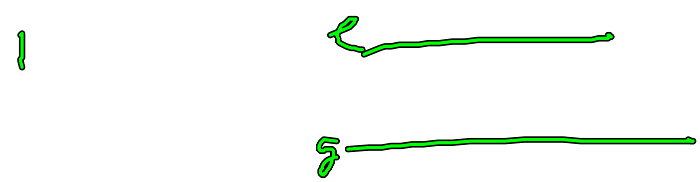


$$P^{(2)}(t) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int d\omega_1 \int d\omega_2\, \mu_{ac}\, \mu_{cb} \cdot E(\omega_2)\, \mu_{ba} \cdot E(\omega_1) \frac{1}{\omega_1+\omega_2-\omega_{ca}+i\eta} \frac{1}{\omega_1-\omega_{ba}+i\eta}\, e^{-i(\omega_1+\omega_2)t}$$

$$+ \text{c.c.}$$

Weitere Möglich. z.B. NLPT, Pump-Probe.

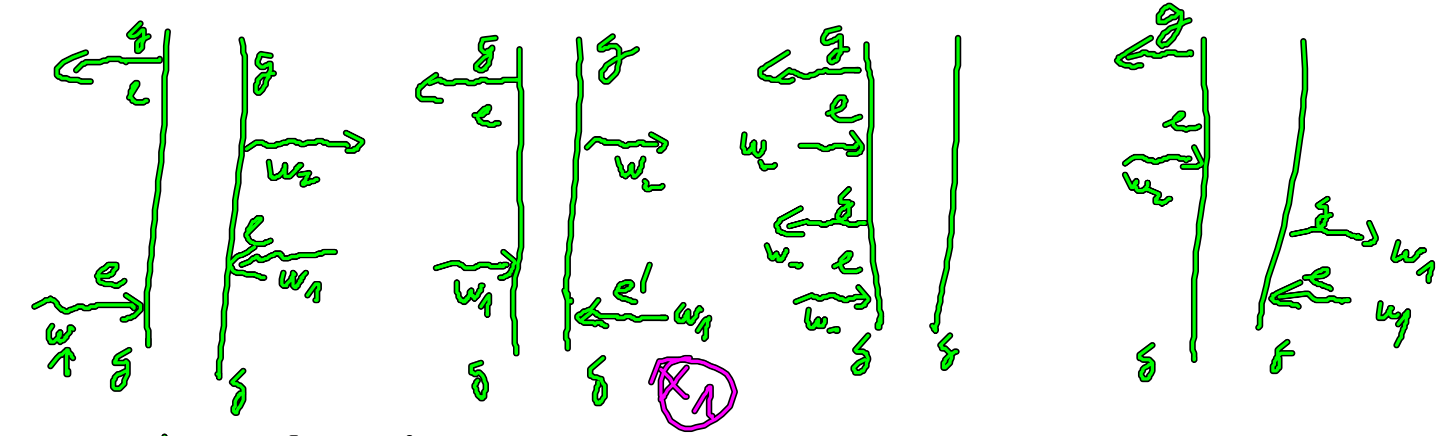
Bsp: Pump-Probe



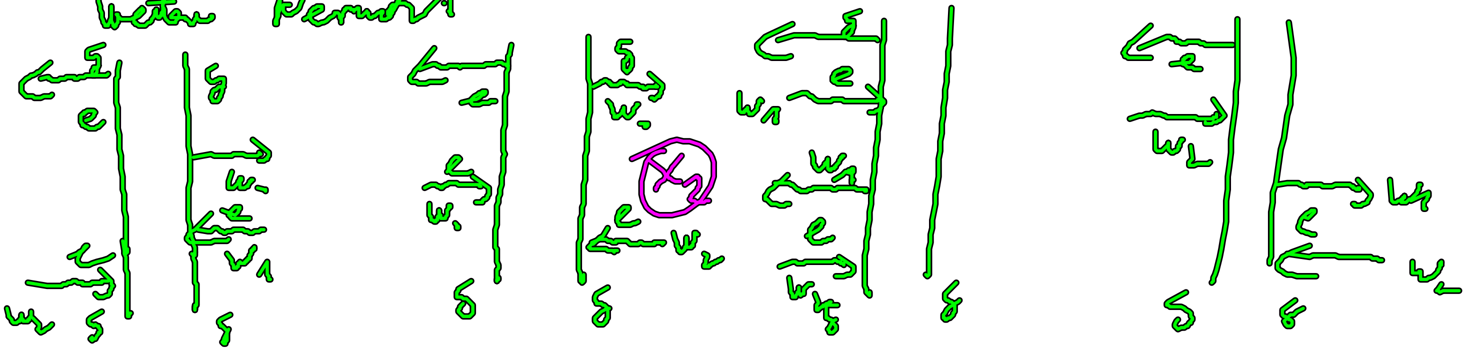
$$\underline{E}(t) = E_1 e^{i\omega_1 t} + E_2 e^{i\omega_2 t}$$

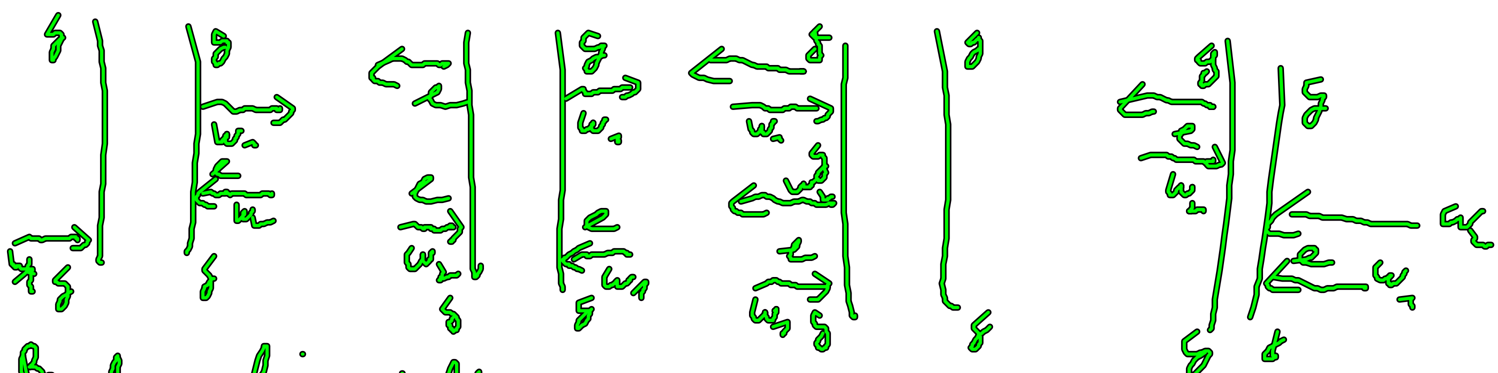
$\uparrow$ 2x $\quad\quad$ $\uparrow$ 1x

<u>Diagramme</u>



weitere Permut.





Bemerkung: bei nicht monochromatischen Pulsen (überlappend) muß über $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ permutiert werden

Wichtig: Pfeilrichtung gibt Omega Richtung an!

$$P^{(3)}(t)\Big|_{X_1} = \frac{1}{(2\pi)^3}\; \mu_{ge}\; E_1\cdot\mu_{eg}\; E_1\,\mu_{ge}\; E_2\cdot\mu_{eg}$$

$$\frac{1}{\omega_2+\underbrace{\omega_1-\omega_1}_{\overset{!}{=}0}-\omega_{eg'}+i\eta}\;\frac{1}{\underbrace{\omega_1-\omega_1}_{\overset{!}{=}0}-\omega_{ee'}+i\eta}\;\frac{1}{-\omega_1-\omega_{ge}+i\eta}$$

$$P^{(3)}(t)\Big|_{X_2} = \frac{1}{(2\pi)^3}\; \mu_{ge}\; E_2\cdot\mu_{eg}\; E_1\cdot\mu_{ge}\; E_1\cdot\mu_{eg}$$

$$\frac{1}{w_1+w_2-w_x-w_y+i\eta} \qquad \frac{1}{w_1-w_2-w_{e}+i\eta} \qquad \frac{1}{-w_2-w_3+i\eta}$$

Wir haben viele Terme. insbesondere die Zeitordnung macht uns das Leben schwer!

$\Downarrow$ Alternative

IV. Keldysh artige Loop Diagramme

IV.1 Herleitung der Loop Diagramme

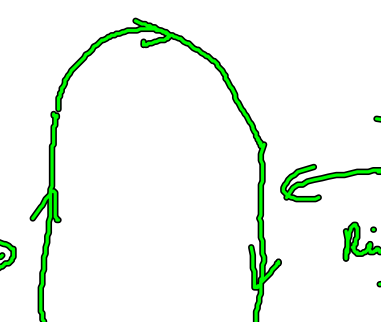
Problem insbesondere bei überlappenden Pulsen müssen viele Kombinationen von WW an Diagramme berechnet werden.

Hier Lsg falls Relaxation nicht so wichtig

Idee

Liouville mit Doppelseitigen Feynmandiagr.

Andererseits: Zeitentwicklung im Hilbertraum



mit Vorwärts propa- gator | | Entwicklung erfolgt entlang der S Schleife

Zurück zum erzeugenden Ausdruck

$$P^{(n)}(t) = \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \frac{1}{n!} \operatorname{tr}\left(\rho(t_0) U_{0-}(t,t_0) T_{\leftarrow}\left(\int_{t_0}^{t} d\tau\, U_{0-}^{+}(\tau,t_0)\left(H_{1L}(\tau) - H_{1R}(\tau)\right) U_{0-}(\tau,t_0)\right)^n \rho_0\right)$$

NR $\quad U_{0-}(\tau,t_0) = \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \underbrace{H_{0-}}_{H_{0-} = H_{0L} - H_{0R}} (\tau - t_0)\right)$

$$= \exp\left(-\frac{i}{\hbar} H_{0L}(\tau - t_0)\right) \exp\left(\frac{i}{\hbar} H_{0R}(\tau - t_0)\right)$$

$$= U_{0L}(\tau,t_0)\, U_{0R}(\tau,t_0)$$

$$= \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \frac{1}{n!} \operatorname{tr}\Big(\hat{\rho}\, U_{0-}(t,t_0) T_{\leftarrow}\Big(\int_{t_0}^{t} d\tau \big(U_{0L}^{+}(\tau,t_0) H_{1L}(\tau) U_{0L}(\tau,t_0) - U_{0R}^{+}(\tau,t_0) H_{1R}(\tau) U_{0R}(\tau,t_0)\big)\Big)^n \rho_0\Big)$$

$$= \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \frac{1}{n!} \operatorname{tr}\Big(\hat{\rho}\, U_{0-}(t,t_0) \sum_k \binom{n}{k} T_{\leftarrow}\Big(\int_{t_0}^{t} d\tau \big(U_{0L}^{+}(\tau,t_0) H_{1L}(\tau) U_{0L}(\tau,t_0)\big)\Big)^k \Big(\int_{t_0}^{t} d\tau \big(-U_{0R}^{+}(\tau,t_0) H_{1R}(\tau) U_{0R}(\tau,t_0)\big)\Big)^{n-k} \rho_0\Big)$$

Zeitordnung linke und rechte Seite unabhängig

$$= \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \frac{1}{n!} \operatorname{tr}\Big(\hat{\rho}(t_0)\, U_{0-}(t,t_0) \sum_k \binom{n}{k} \Big[T_{\leftarrow}\Big(\int_{t_0}^{t} d\tau \big(U_{0L}^{+}(\tau,t_0) H_{1L}(\tau) U_{0L}(\tau,t_0)\big)\Big)^k\Big] \Big[T_{\leftarrow}\Big(\int_{t_0}^{t} d\tau \big(-U_{0R}^{+}(\tau,t_0) H_{1R}(\tau) U_{0R}(\tau,t_0)\big)\Big)^{n-k}\Big] \rho_0\Big)$$

Superoperator im Hilbertraum Operator

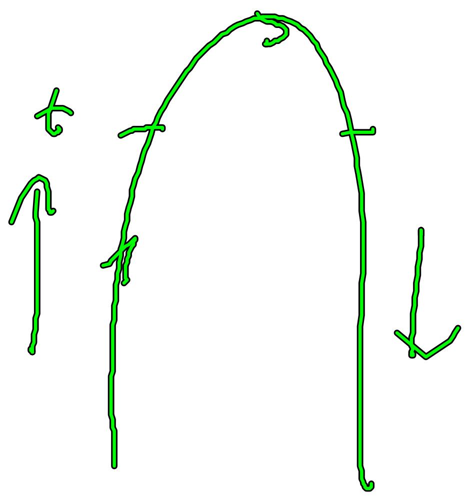
$$= \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \frac{1}{n!}\, \mathrm{tr}\Big(\hat\mu(t_0)\, U_0(t,t_0) \sum_k \binom{n}{k} \Big(T_\leftarrow \Big(\int_{t_0}^{t} d\tau\, U_0^\dagger(\tau,t_0)\, H_1(\tau)\, U_0(\tau,t_0)\Big)^n \rho_0$$

$$\Big(T_\rightarrow \Big(\int_{t_0}^{t} d\tau \big(-U_0(\tau,t_0)\, H_1(\tau)\, U_0^\dagger(\tau,t_0)\big)\Big)^{n-k}$$

$$= \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \frac{1}{n!}\, \mathrm{tr}\Big(\hat\mu(t)\, U_0(t,t_0) \sum_k \binom{n}{k} \Big(T_\leftarrow \Big(\int_{t_0}^{t} d\tau\, U_0^\dagger(\tau,t_0)\, H_1(\tau)\, U_0(\tau,t_0)\Big)^k \rho_0$$

$$\Big(T_\rightarrow \Big(\int_{t_0}^{t} d\tau \big(-U_0(\tau,t_0)\, H_1(\tau)\, U_0^\dagger(\tau,t_0)\big)^{n-k}\Big)$$

$$U_0^\dagger(t,t_0)\Big)$$



Im Prinzip kann $T_\leftarrow$ und $T_\rightarrow$ auch als Zeitordnung entlang der Schleife zusammengefasst werden.

Beispiel zur Formel in 3. Ordnung

$$P^{(3)}(t) = \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^3 \mathrm{tr}\Big(\hat\mu(t) \int_{t_0}^{t} dt_3 \int_{t_0}^{t_3} dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1\, U_0(t,t_3) H_1(t_3)\, U_0(t_3,t_2) H_1(t_2)\, U_0(t_2,t_1)$$

$$H_1(t_1)\, U_0(t_1,t_0)\, \rho_0\, U^\dagger(t,t_0)\Big)$$

$$-\left(\frac{i}{\hbar}\right)^3 \mathrm{tr}\Big(\mu(t) \int_{t_0}^{t} dt_3 \int_{t_0}^{t} dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1\, \underbrace{U_0(t,t_2) H_1(t_2)\, U_0(t_2,t_1)\, H_1(t_1)\, U_0(t_1,t_0)\,\rho_0}_{\xleftarrow{\text{Loop Zeit}}\ \xleftarrow{\text{Zeitpfad}}}$$

$$\underbrace{U_0(t_0,t_3)\;\; H_1(t_3)\;\; U_0(t_3,t)}_{\xrightarrow{\text{Zeitpfad}}}\;\;\Big)$$

loop Zeit

$$+\left(-\frac{i}{\hbar}\right)^3 \mathrm{tr}\Big(\hat\rho(t)_1 \int_{t_0}^{t} dt_3 \int_{t_0}^{t_3} dt_2 \int_{t_0}^{t} dt_1 \; U_0(t_1,t_1)\, H_1(t_1)\, U_0(t_1,t_0)\,\rho_0\, U_0(t_0,t_3)\, H_1(t_3)\, U_0(t_3,t)\, H_1(t_2)\, U_0(t_2,t)\Big)$$

loop Zeit

Zeit

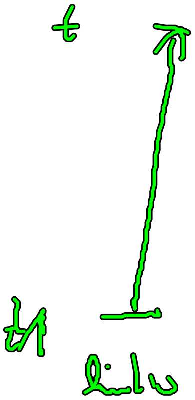
loop

Zeit

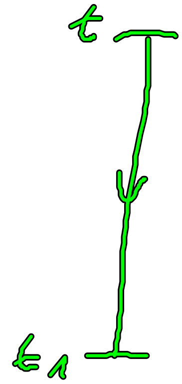
$$-\left(-\frac{i}{\hbar}\right)^3 \mathrm{tr}\Big(\hat\rho(t) \int_{t_0}^{t} dt_3 \int_{t_0}^{t_2} dt_2 \int_{t_0}^{t_2} dt_1 \; U_0(t,t_1)\,\rho_0\, U_0(t_0,t_1)\, H_1(t_1)\, U(t_1,t_2)\, H_1(t_2)\, U(t_2,t_3)\, H_1(t_3)\, U_0(t_3,t)\Big)$$

Spur ist zyklisch. Wir können aber auch $\hat\rho(t)$ in die Mitte setzen!

mit Propagator links rechts.

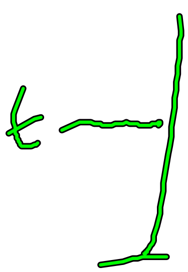


$\hat{=}\; U(t,t_1)$

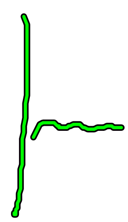


$\hat{=}\; U(t_1,t)$

WW im Prinzip wie vorher



$\hat{=}\; H_1(t)$



$\hat{=}\; H_1(t)$

Regeln:

① Die Observable ist zeitlich immer zuletzt

② Zeitordnung auf der ~~l~~ linken und rechten Seite ist voneinander unabhängig

(3) Formel ist die Zuordnung auf der rechten Seite [illegible] zur linken Seite

(4) Für jede WW links oder rechts eine [illegible] hinzufügen.