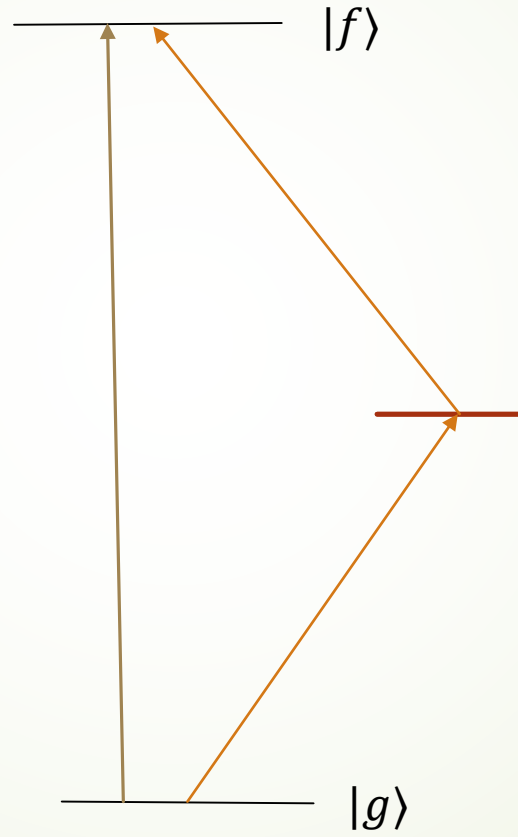


# Role of the spectral shape of quantum correlations in two-photon virtual-state spectroscopy



Nicolás Barbosa Berrío

# Transiciones atómicas





# Two-photon absorption



- ▶ Sistema modelo: Átomo de hidrógeno. Transición  $1s \rightarrow 2s$
- ▶ Two-Photon Absorption (TPA): Transición inducida por luz entre dos niveles atómicos. Sirve para probar la estructura de átomos y moléculas
- ▶ CASOS:
  - ❖ Two-photon absorption (TPA):
    1. Uncorrelated classical pulses
    2. Classically frequency-correlated pulses
  - ❖ Entangled Two-Photon absorption (ETPA):
    1. Gaussian spectral shape
    2. Sine cardinal spectral shape

# TPA - Uncorrelated classical pulses

- ▶ Pulsos rectangulares con duración  $T_p$  

- ▶ 
$$\Phi(\nu_s, \nu_i) = \frac{T_p}{2\pi} \text{sinc}\left(\frac{T_p \nu_s}{2}\right) \text{sinc}\left(\frac{T_p \nu_i}{2}\right) e^{\frac{i(\nu_s - \nu_i)\tau}{2}}$$

- ▶ 
$$P_{g \rightarrow f}(T_p; \tau) = \frac{\omega_0^2}{\hbar^2 \epsilon_0^2 c^2 A^2 T_p^2} \left| \sum_j D^{(j)} [I_1 + I_2] \right|^2$$

- ▶ La probabilidad de transición del TPA es constante como función de  $\tau$ . Su transformada de Fourier da un pico. No hay información espectroscópica.
- ▶ Se refuta el resultado de artículo de *Mukamel*



# TPA - Classically frequency-correlated pulses

- ▶  $\Phi(\nu_s, \nu_i) \sim e^{\frac{iL N_p (\nu_s + \nu_i)}{2} + i\nu_i \tau}$  con  $N_p = \frac{N_i + N_s}{2}$  la inversa de las velocidades de grupo.
- ▶ La norma de la función de modo cancela la fase que le da el retraso  $\tau$

# ETPA - Gaussian spectral shape

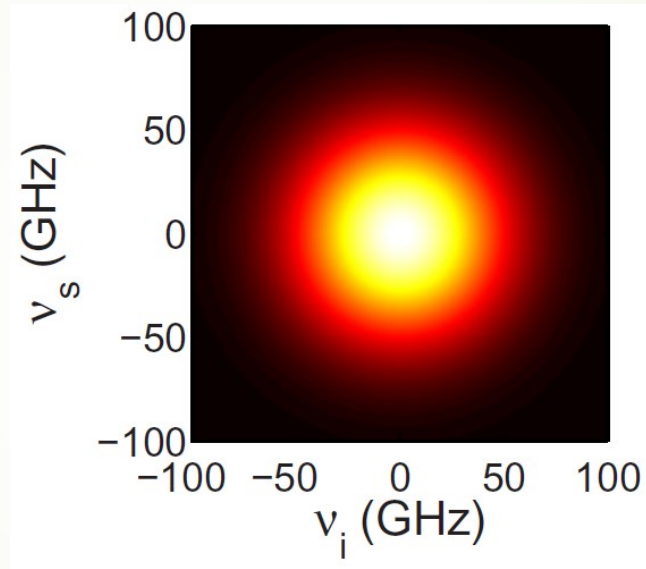
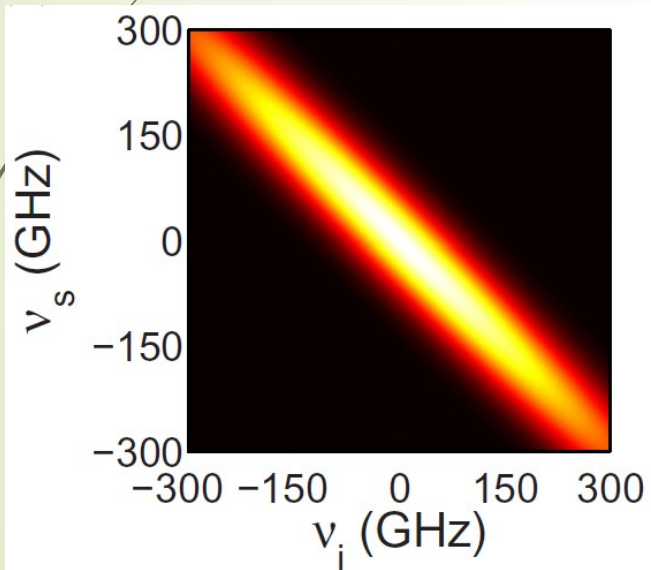
- ▶ Pulso Gaussiano con duración temporal  $T_+$

- ▶ 
$$\Phi(\nu_s, \nu_i) = \left(\frac{T_- T_+}{\sqrt{2\pi}}\right)^{\frac{1}{2}} e^{-T_+^2(\nu_i + \nu_s)^2} e^{-\frac{T_-^2(\nu_i - \nu_s)^2}{4}} e^{\frac{iLN_p(\nu_s + \nu_i)}{2} + i\nu_i\tau}$$

- ▶  $T_- = \frac{(N_s - N_i)L}{2}$  con  $N_j$  ( $j = i, s, p$ ) el inverso de las velocidades de grupo, y  $N_p = \frac{N_i + N_s}{2}$

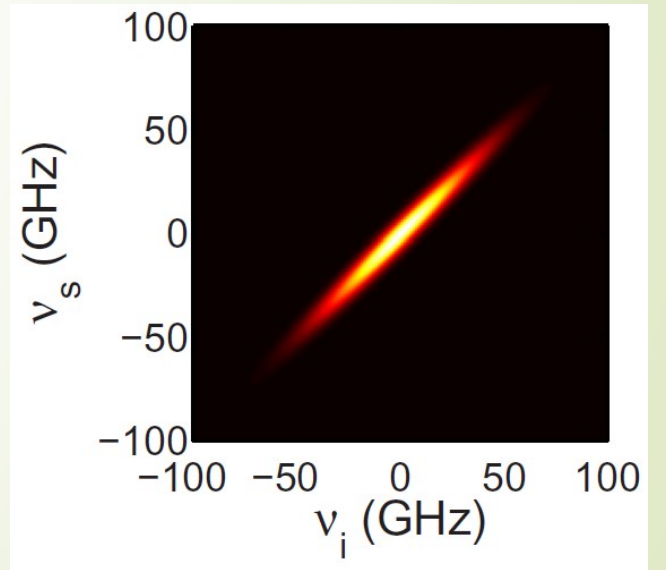
# Joint spectrum

- Anti-correlated
- $\nu_s \sim -\nu_i$ , con  $T_+ \gg T_-$



- Uncorrelated
- $T_- = 2T_+$

- Correlated
- $\nu_s \sim \nu_i$ , con  $T_+ \ll T_-$



# ETPA - Sine cardinal spectral shape

➤  $\Phi(\nu_s, \nu_i) = \left(\frac{T_- T_+}{\sqrt{2\pi}}\right)^{\frac{1}{2}} e^{-T_+^2(\nu_i + \nu_s)^2} \text{sinc}\left(\frac{T_-(\nu_s - \nu_i)}{2}\right) e^{\frac{iLNp(\nu_s + \nu_i)}{2} + i\nu_i\tau}$

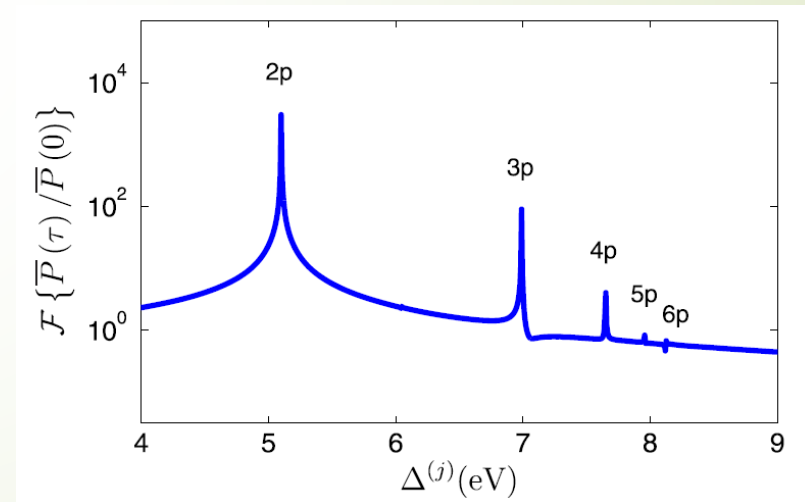
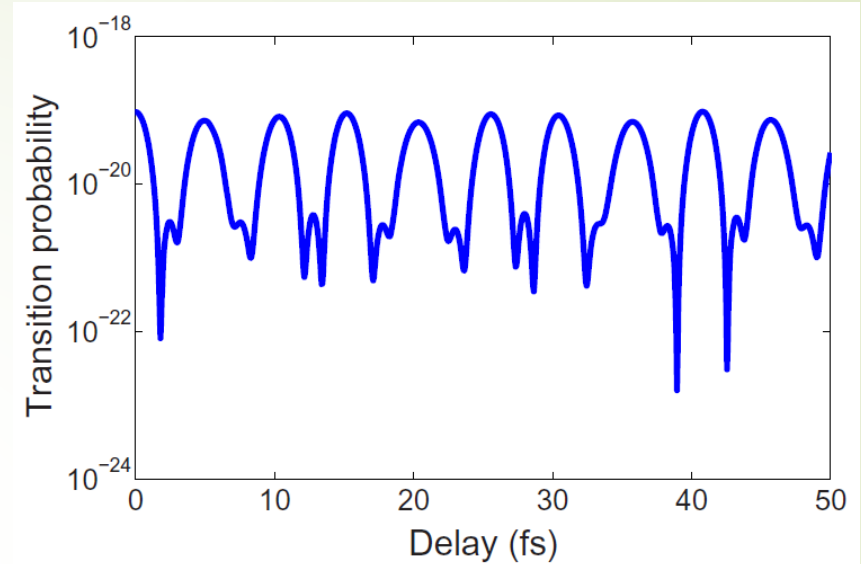
➤ Probabilidad de transición:

➤  $P_{g \rightarrow f}(T_-, T_+; \tau) = \frac{64\pi\omega_0^2}{\hbar^2\epsilon_0^2c^2A^2T_-} \left[ \frac{\sqrt{2}T_+}{\sqrt{\pi}} e^{-2T_+^2(\epsilon_g - \epsilon_f + \omega_p)^2} \right] * \left| \sum_j A^{(j)} \{ 2 - e^{-i\eta^{(j)}(T_- - \tau)} - e^{-i\eta^{(j)}(T_- + \tau)} \} \right|^2$

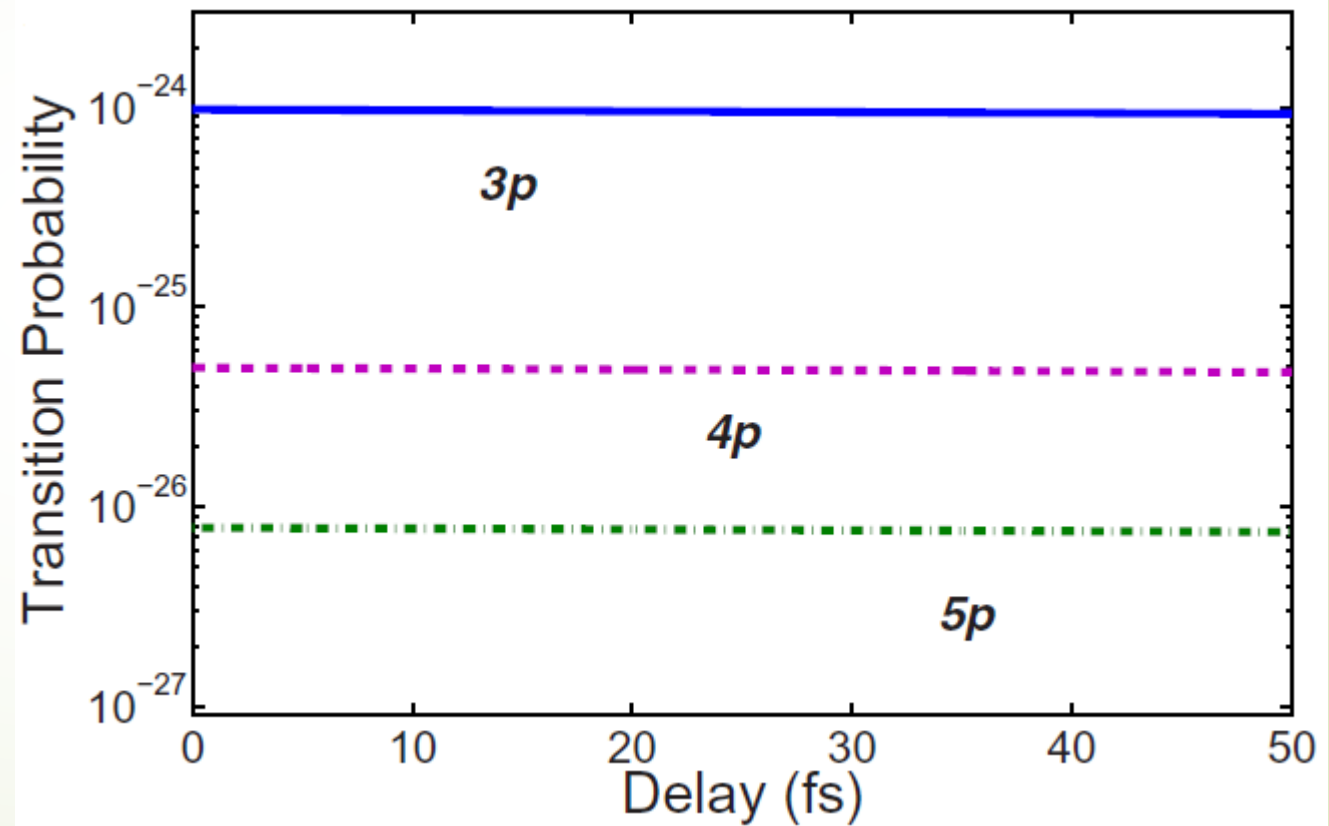
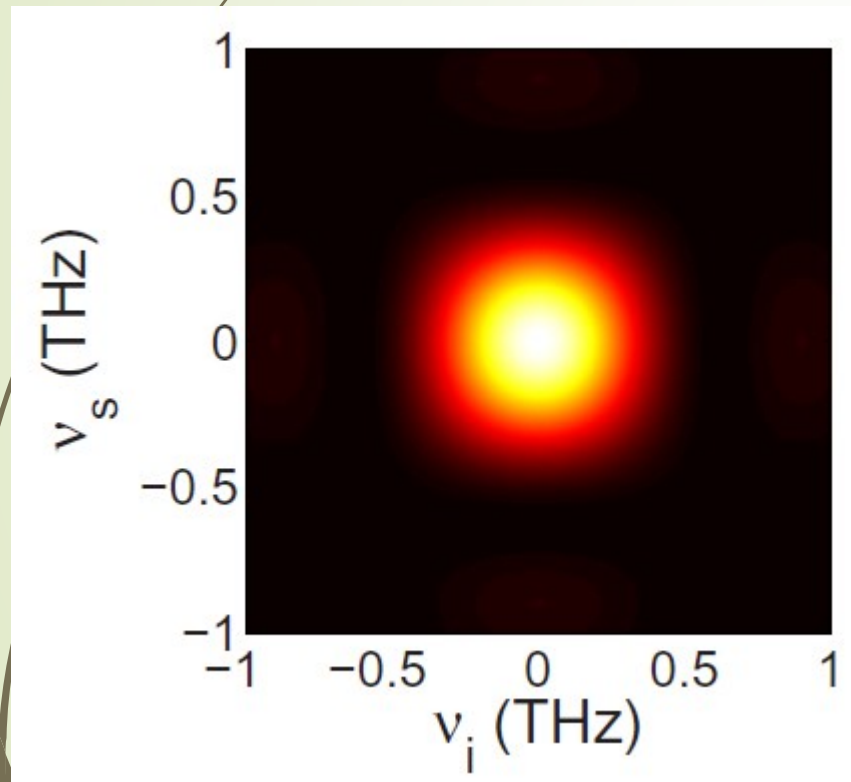


# Resultado para *sinc*

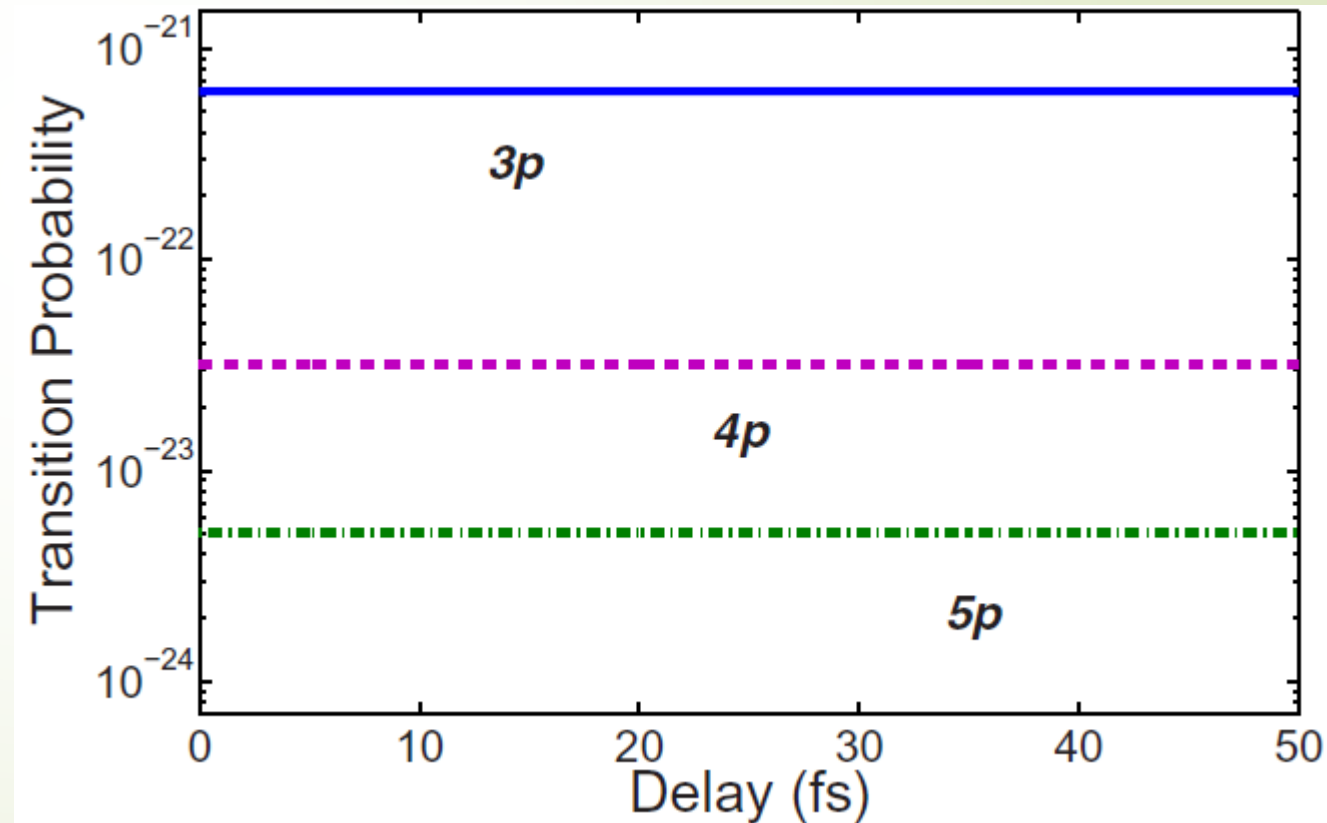
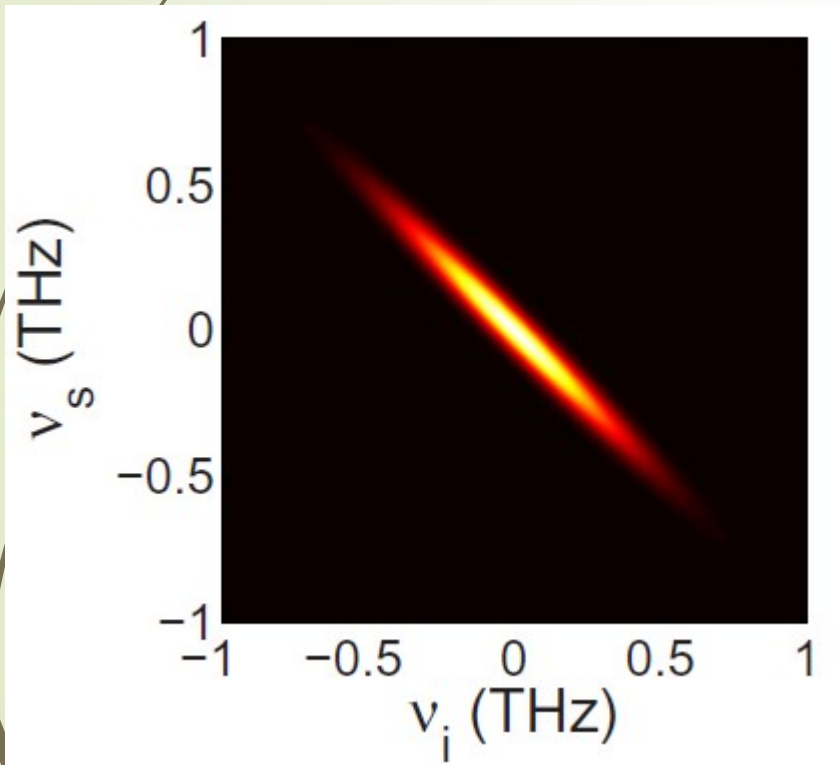
- ▶ La figura muestra la transición de probabilidad TPA como función del retraso entre los pulsos
- ▶ Al hacer la transformada de Fourier de la probabilidad de transición, se obtiene la información espectral.



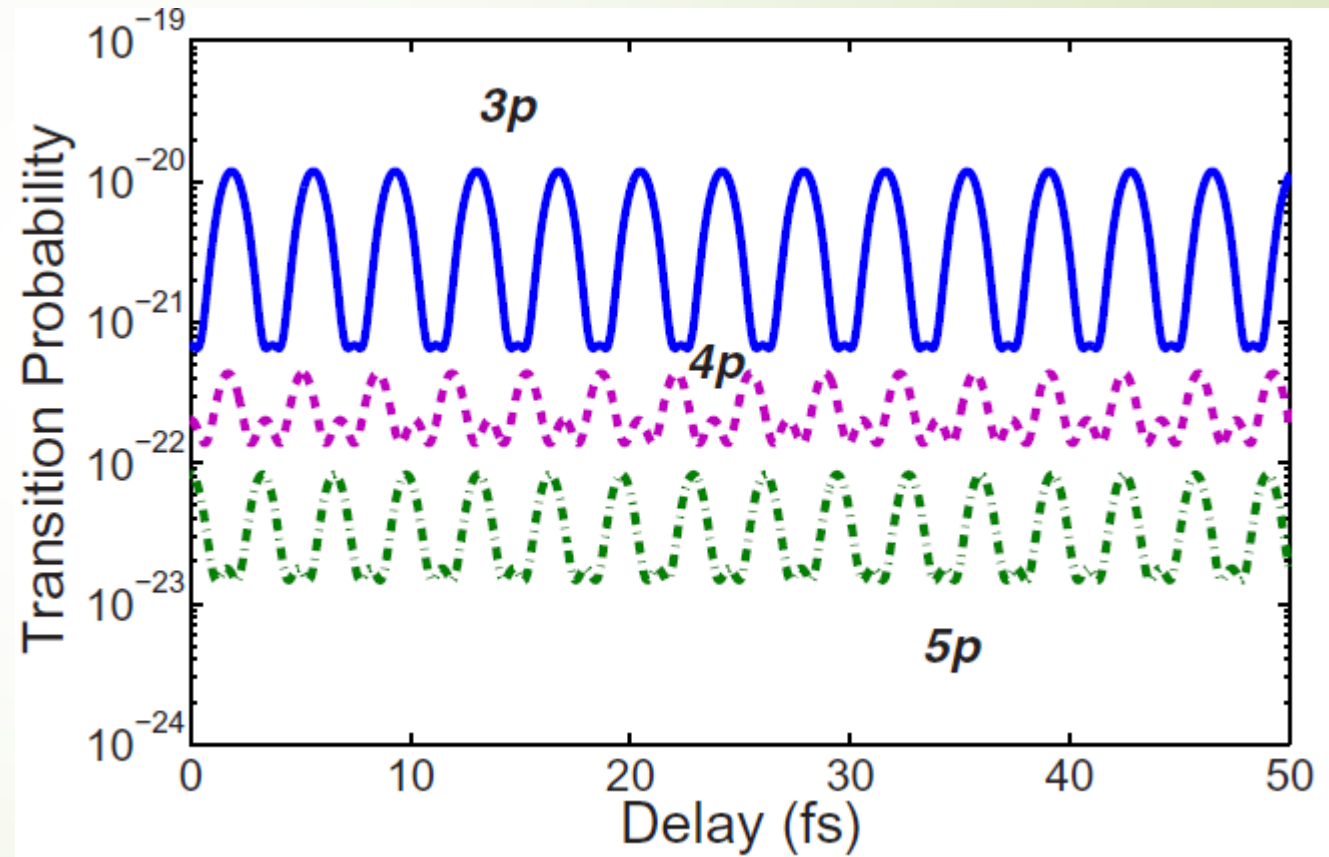
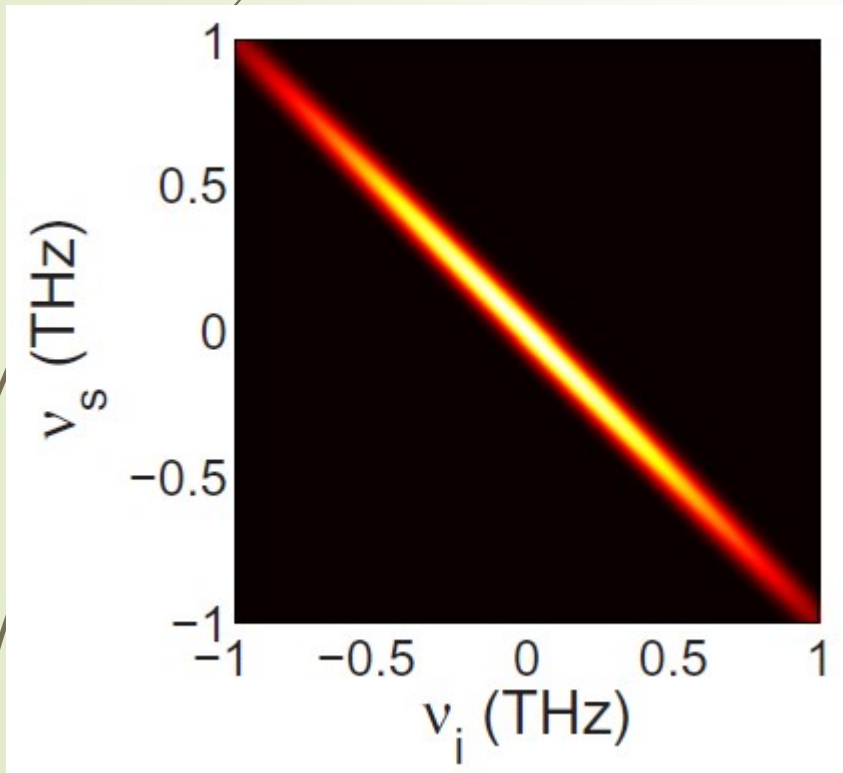
# Resultado para *uncorrelated*



# Resultado para Gaussiano



# Resultado para *sinc*

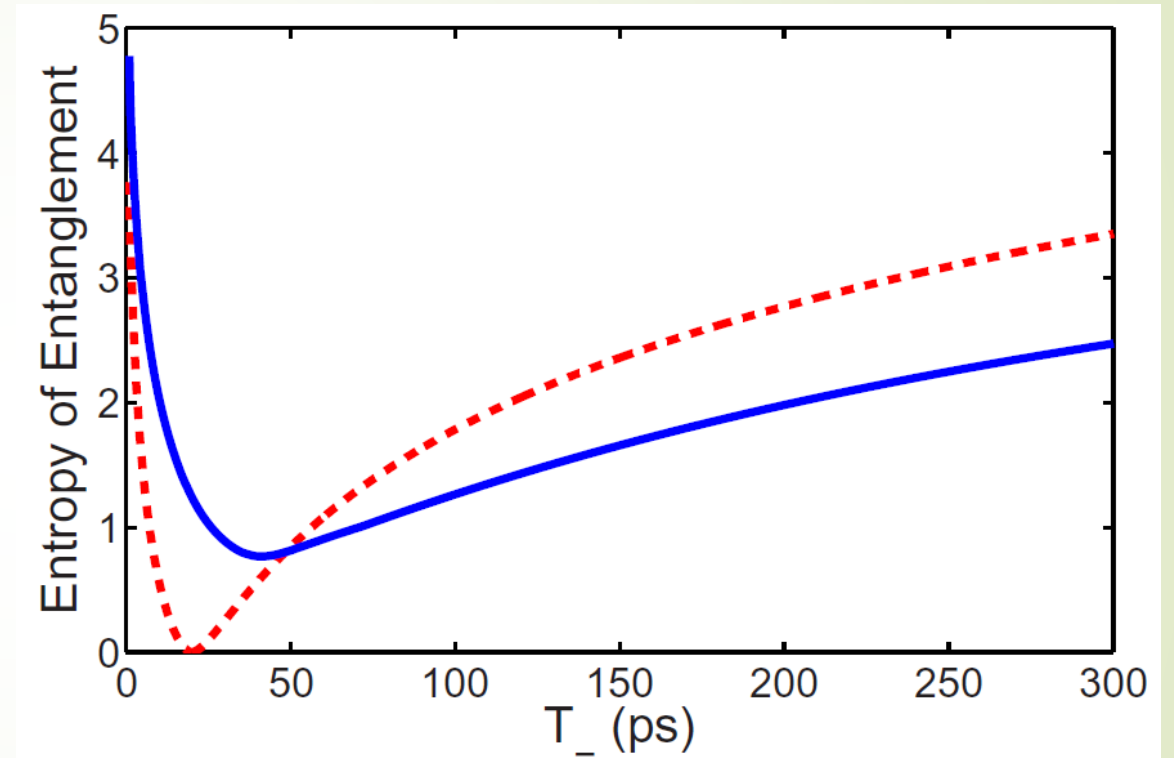


## Dependencia de la entropía de enredamiento

- Grado de enredamiento:

$$E = - \sum_i \lambda_i \log_2 \lambda_i$$

- $\lambda_i$  son los valores propios de la descomposición de Schmidt de la amplitud del *joint spectral*



Roja = Gaussiana. Azul = Seno cardinal



# Conclusiones



- ▶ En el artículo *Roslyak O and Mukamel S 2009 Phys. Rev. A 57 3972* se afirmaba que uncorrelated rectangular-shaped classical pulses servían para hacer espectroscopía de estados virtuales, lo cual no es cierto.
- ▶ La transición de probabilidad debe mostrar dependencia del retraso temporal o de lo contrario no es útil para hacer virtual-state spectroscopy.
- ▶ Más importante que el enredamiento es la forma del pulso.
- ▶ Los tipos de fuentes de dos fotones útiles para espectroscopía se identificaron: pares de fotones con bajo grado de enredamiento pero con una forma de seno cardinal apropiada, sirven para espectroscopía.