4. Ein stochastisches Modell für Phasenrelaxationsprozesse

gesucht ist Dipoldichte $\vec{P}(\vec{r},t) = \sum_{ij} \vec{d}_{ij} \sum_{d} \rho_{ij}(\vec{r},d,t)$

Umgebung mit Freiheitsgraden „d“

und der durch die Umgebung induzierte Zerfall der Dipoldichte $\rho_{ij} \sim e^{-\gamma t} \rho_{ij}(t=0)$

„$e^{-\gamma t}$ ≙ Phasenrelaxation“

- diskutieren dazu ein Zweiniveausystem in linearer Optik

bereits abgeleitet ist: $i=1$, $j=2$

$$\dot{\rho}_{12}(d) = i\omega_{12}\rho_{12}(d) + i\Omega_{21}(t) - i\sum_{k}\left(V_{1k}(d)\rho_{k2}(d) - V_{2k}(d)\rho_{1k}(d)\right)$$

(d) — 2

(d) — 1

Übergangsfrequenz

Licht

$k = 1,2$

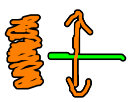
Annahme: diagonale Kopplung $V_{ik} = \delta_{ik} V_{ii}$

d.h.: Umgebung koppelt nur an die einzelnen Niveaus unabhängig, es gibt keine „Energie" in Umgebg. die in der Größenordg. von $\hbar\omega_{21}$ ist. (Schwingungsfrequenz $\ll$ optische Frequenz)

$$\downarrow \quad \dot{\rho}_{12}(d) = i\left\{\underbrace{[\omega_1 - V_{11}(t,d)]} - \underbrace{[\omega_2 - V_{22}(t,d)]}\right\}\rho_{12}(d)$$

$+i\Omega_{21}$

die Umgebung „wackelt" an den beiden Niveauenergien, wenn die stochastische Kraft für beide Niveaus unterschiedlich ist $V_{11} \neq V_{22}$ wird $\rho_{12}(t)$ zerfallen, weil die Phase zerstört wird



$|i\rangle$

Fluktuation der E-Niveaus

die Gleichg. muß man lösen $\rightarrow$ „$e^{-\gamma t}$" sollte entstehen

Anfangsbedingg.: $t = -\infty$ besteht keine Wechselwirkung zwischen den Systemen, daher faktorisiert $\rho_{12}(d)$

$$\rho_{12}(d) \underset{t\to-\infty}{=} \rho_{12}\,\rho_d$$

$$\rho_d = \frac{1}{Z_u} e^{-\beta E_d} \qquad \text{(kanonische Verteilung)}$$

Umgebung im Gleichgewicht

jetzt zu Lösung der Gleichung :

$V_{11}(d,t) - V_{22}(d,t) = V_d(t)$ setzen

Lösg. der Dgl. 1. Ordng. (inhomogen) $\rho_{12} = e^{i\omega_{12} t} \tilde{\rho}_{12}$

$\omega_L = \omega_{21}$

$$\tilde{\rho}_{12}(d) = \int_{-\infty}^{t} dt' \, e^{i \int_{t'}^{t} dt'' V_d(t'')} \, i \tilde{\Omega}_{21}(t') \, \rho_d$$

(einsetzen zur Probe, $\tilde{\rho}_{12}(t \to -\infty) = 0$)

$$\hat{\rho}_{12} = \sum_d \tilde{\rho}_{12}(d) \longrightarrow \hat{\rho}_{12}(t) = \int_{-\infty}^{t} dt' \, e^{g(t,t')} \, i \tilde{\Omega}_{21}(t')$$

reduzierte Dichtematrix

Erwartungswertbildg.

$F(d)$

$$e^{g(t,t')} = \sum_d e^{-i \int_{t'}^{t} dt'' V_d(t'')} \rho_d$$

Wahrscheinlichkeit, Umgebg. in d zu finden

$$= \left\langle e^{-i \int_{t'}^{t} dt'' V_d(t'')} \right\rangle$$

<u>Ziel:</u> exp.-Fkt über die Umgebung zu mitteln

als Reihe:

$$= \left\langle 1 - i\int_{t'}^{t} dt_1\, V_d(t_1) + \frac{(-i)^2}{2!}\overbrace{\int_{t'}^{t} dt_1\, \underline{V_d(t_1)}\int_{t'}^{t} dt_2\, \underline{V_d(t_2)}}^{\left(\int_{t'}^{t}\right)^2} \dots \right\rangle$$

Offensichtlich braucht man: $\langle V_d(t_1)\, V_d(t_2) \cdots V_d(t_n) \rangle$

Momente einer stochastischen Größe

im Vgl. zu Kapitel 3 ist aber $V_d = V_d(t_i)$

$\rightarrow$ Momente zu verschiedenen Zeiten.

Zur Auswertung braucht man $\left(V_d(t_i) \rightarrow a_i \right)$

mehrdimensionale Zufallsgrößen

kurzer Exkurs zu <u>mehrdimensionalen Gaußschen Zufallsgrößen</u>

<u>Zufallsvariable</u> $\vec{a}$ sei mehrdimensional $\{a_i\}$

gesucht $\langle a_i\, a_j\, a_k \cdots \rangle$ mehrdimensionale Momente

Gaußverteilung

$$\rho(\vec a) = \frac{1}{(2\pi \det \hat M)^{1/2}}\, e^{-\frac{1}{2}\sum_{jl}(a_j - \bar a_j)(\hat M^{-1})_{jl}(a_l - \bar a_l)}$$

$\hat M$: Matrix $\hat M^{-1}$ Umkehrmatrix

M_{ij}: beschreibt eine Korrelation zwischen verschiedenen i,j

Mittelwert

$$\bar a_j = \int d\vec a \; a_j\, \rho(\vec a) \qquad \left(\int d\vec a = \int da_1 \int da_2 \cdots\right)$$

Abweichung

$$M_{jl} = \int d\vec a \, (a_j - \bar a_j)(a_l - \bar a_l)\, \rho(\vec a)$$

↑ beschreibt Korrelation (Zusammenhang) zwischen j,l

Ableitungsregel

beliebige Funktion

$$\langle (a_j - \bar a_j)\, F(\vec a)\rangle = \sum_l M_{jl} \left\langle \frac{\partial}{\partial a_l} F(\vec a)\right\rangle$$

damit kann man höhere Momente zerschlagen

Bsp:

$\bar a_j = 0$

$$\langle a_j a_k a_m a_n \rangle = \sum_l M_{jl} \left\langle \frac{\partial}{\partial a_l} \overset{1}{a_k}\, \overset{2}{a_m}\, \overset{3}{a_n} \right\rangle$$

$$= \overset{1}{\underbrace{M_{jk}\langle a_m a_n\rangle}} + \overset{2}{\underbrace{M_{jm}\langle a_k a_n\rangle}} + \overset{3}{\underbrace{M_{jn}\langle a_k a_m\rangle}}$$

$\langle a_j a_k \rangle \langle a_m a_n \rangle + \langle a_j a_m \rangle \langle a_k a_n \rangle + \dots$

damit benötigt man nur $\langle a_j a_k \rangle$ und kann beliebig hohe Reihe angeben (Bsp: $\langle V_d(t_i) V_d(t_j) \rangle$)

Berechung der Reihe: $\langle V_d(t) \rangle = 0$

$$e^{g(t,t')} = 1 - \underbrace{\frac{i}{2} \int_{t'}^{t} dt_1 \langle V_d(t_1) \rangle}_{\substack{=0 \text{ gesetzt,} \\ \text{keine konstante } E\text{-} \\ \text{Verschiebung}}} + \frac{(-i)^2}{2!} \int_{t'}^{t} dt_1 \int_{t'}^{t} dt_2 \underbrace{\langle V_d(t_1) V_d(t_2) \rangle}_{\text{„} M_{12} \text{"}}$$

höhere Teilnehmer der Summe werden auf M_{12} zurückgeführt

Formel auf 4-er Term angewendet:

$$+ \frac{(-i)^4}{4!} \int_{t'}^{t} dt_1 \int_{t'}^{t} dt_2 \int_{t'}^{t} dt_3 \int_{t'}^{t} dt_4 \underbrace{\langle V_d(t_1) V_d(t_2) V_d(t_3) V_d(t_4) \rangle}_{\langle V_d(t_1) V_d(t_2) \rangle \langle V_d(t_3) V_d(t_4) \rangle + \dots}$$

und Ableitungsregel

$$\frac{(-i)^4}{4!} \cdot 3 \left(\int_{t'}^{t} dt_1 \int_{t'}^{t} dt_2 \, \langle V_d(t_1) \, V_d(t_2) \rangle \right)^2$$

$+ \ldots$ „μ_{12}^{2}“

völlig analoges Vorgehen zur Exp. Fkt. in 1d (Kapitel 3)

$$= \underbrace{e^{-\frac{1}{2} \int_{t'}^{t} dt_1 \int_{t'}^{t} dt_2 \, \langle V_d(t_1) \, V_d(t_2) \rangle}}_{e^{g(t,t')}}$$

Die gesamte Dynamik ist damit auf das 2. Moment

$\langle V_d(t_1) \, V_d(t_2) \rangle$ zurückgeführt worden.

Man unterscheidet

$$\langle V_d(t_1) \, V_d(t_2) \rangle = \begin{cases} \text{weißes Rauschen} \\ 2\gamma \, \delta(t_1 - t_2) \\ \text{farbiges Rauschen} \\ \gamma \, e^{-|t_1 - t_2|/\tau} \end{cases}$$

Modelle

Farbigkeit wird über Spektrum (Fouriertrafo) festgelegt.

$\delta \rightarrow$ Konstante im Spektrum $\longrightarrow$ „weiß"

2 Fälle diskutieren für Dipoldichtezerfall

a) weißes Rauschen

$$\langle V_d(t_1)\, V_d(t_2) \rangle = 2\gamma\, \delta(t-t') \qquad \gamma \text{ - Rate } \left(\frac{1}{s}\right)$$

$$g(t,t') = -\frac{1}{2}\int_{t'}^{t} dt_1 \int_{t'}^{t} dt_2 \; \langle V_d(t_1)\, V_d(t_2) \rangle$$

$$= -\gamma \int_{t'}^{t} dt_1 = -\gamma\,(t-t')$$

$$\tilde{\rho}_{12}(t) = \int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{g(t,t')}\; i\tilde{\Omega}_{21}(t')$$

$$= \int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{-\gamma(t-t')}\; i\tilde{\Omega}_{21}(t')$$

$$\hat{=} \quad \dot{\tilde{\rho}}_{12} = -\gamma\, \tilde{\rho}_{12} + i\, \tilde{\Omega}_{21}(t)$$

weißes Rauschen $\hat{=}$ Konstante Zerfallsrate f. die Dipoldichte

(2. Moment $\sim \gamma \sim \cancel{\ }\ |1\rangle$)

weil man $\delta(t_1 - t_2)$ hat spricht man von

Markovprozessen (kein Gedächtniseffekt $\hat{=}$ konstante γ)

b) farbiges Rauschen

$$\langle V_d(t_1)\, V_d(t_2) \rangle = \gamma_0\, e^{-|t_1 - t_2|/\tau}, \quad [\gamma_0] = \frac{1}{s^2}$$

$$g(t,t') = -\frac{1}{2} \int_{t'}^{t} dt_1 \int_{t'}^{t} dt_2\ \gamma_0\, e^{-|t_1 - t_2|/\tau}$$

$$= -\frac{\gamma_0}{2} \int_{t'}^{t} dt_1 \left\{ \underbrace{\int_{t'}^{t_1} dt_2\, e^{-(t_1 - t_2)/\tau}}_{t_1 > t_2} + \underbrace{\int_{t_1}^{t} dt_2\, e^{-(t_2 - t_1)/\tau}}_{t_2 > t_1} \right\}$$

und 5 Zeile:

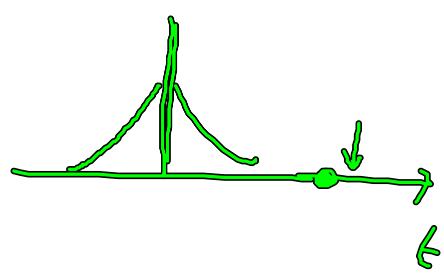
$$\boxed{g(t,t') = -\gamma_0 \tau \left\{ (t-t') + \tau \left(e^{-(t-t')/\tau} - 1 \right) \right\}}$$

$$\tilde{\rho}_{12}(t) = \int_{-\infty}^{t} dt' \, e^{g(t,t')} \, i\Omega_{21}(t')$$

Grenzfälle: $\tilde{\Omega}_{21}(t') \approx \delta(t') A_0$

$$\tilde{\rho}_{12}(t) = A_0 e^{-\gamma_0 \tau \left(t + \tau\left(e^{-t/\tau} - 1\right)\right)} \neq e^{-\gamma t} A_0$$

farbiges Rauschen führt <u>nicht</u> zu einer konstanten Dephasierungsrate



<u>lange Zeit</u>

$t \to \infty$

$$A_0 e^{-\gamma_0 \tau \left(t + \tau\left(\cancel{e^{-t/\tau}} - 1\right)\right)} \to e^{-\gamma_0 \tau t} \equiv e^{-\gamma t}$$

für lange Zeiten erwartet man exponentiellen Abfall

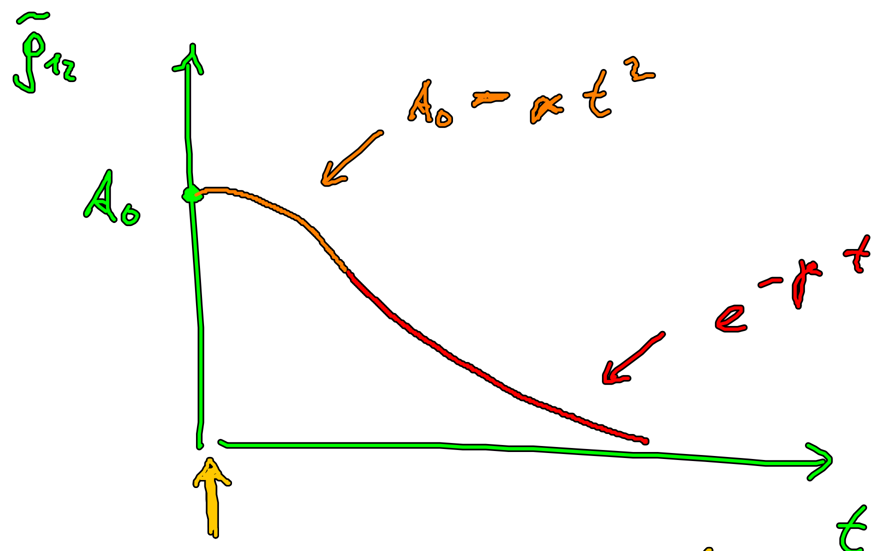
kurze Zeiten

$t \to 0$, exp. in exp. entwickeln:

$$A_0 \, e^{-\gamma_0 \tau \left(t + \tau \left(1 - \frac{t}{\tau} + \frac{1}{2}\frac{t^2}{\tau^2} - 1 \right)\right)} \to e^{-\frac{\gamma_0}{2} t^2}$$

für kurze Zeiten erwartet man einen quadratischen Abfall

Allgemeines Verhalten der Dipoldichte nach $\delta(t)$ Anregg.



Pulsanregg. (kurz gegen γ_0^{-1})

Wenn in einem Exp. ein Abweichung von $e^{-\gamma t}$ gefunden wird, spricht man von Gedächtnis bzw. memory effekten die auf farbiges Rauschen hinweisen. γ_0 ist Maß f. Rauschen.

$\gamma_0^{\pi L}$ in kondensierter Materie $\sim \frac{1}{fs}$.