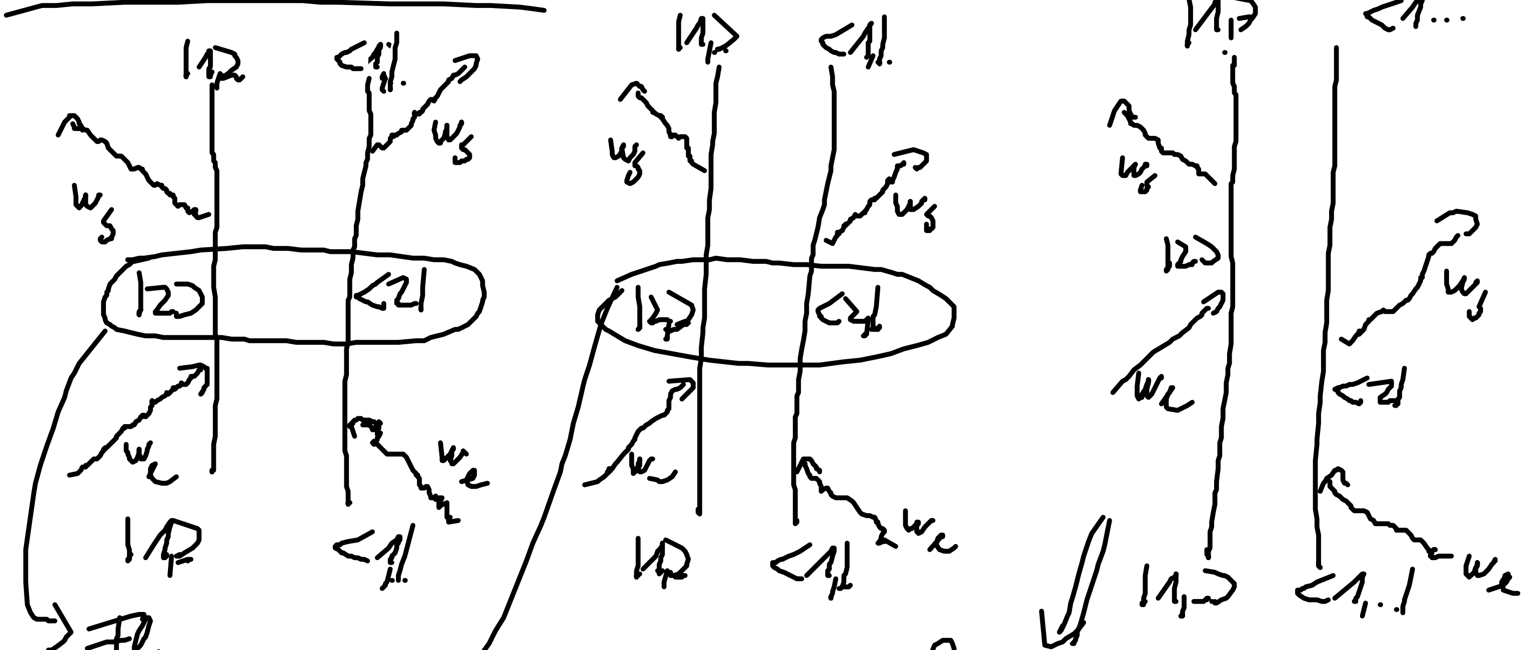
Raman Fortsetzung



Fluoreszenz
Lebensdauer der Dichte gibt Dynamik vor

Raman Dynamik
wird durch Lebensdauer der Kohärenzen bestimmt.

⇓ Formel ineinander einsetzen

$$S_{SLE}(w_0, w_s) = S_{Raman}(w_0, w_s) + S_{Fl}(w_0, w_s)$$

$$S_{Raman}(w_0, w_s) = 2\pi \sum_{nm} c_{nm} \, |\chi_{nm}(w_e)|^2 \, \delta(w_e(n-m) + w_s - w_0)$$

$$\chi_{nm}(w_e) = \sum_k \frac{d^{12}_{nk} \, d^{12}_{km}}{w_e(n-m) + \underset{-w_0}{w_s} + i\gamma}$$

Fehlerkorrektur notwendig

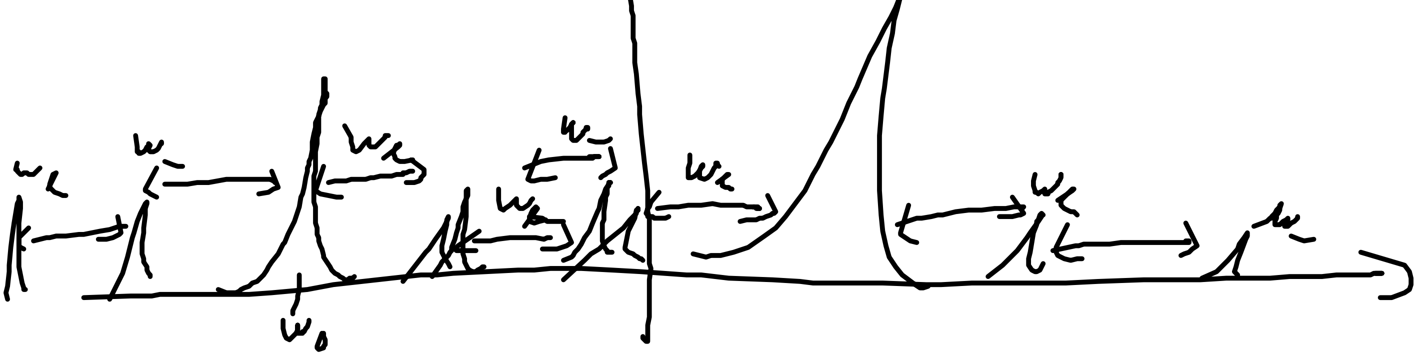
$$S_{Fl}(w_0, w_s) = \sum_{n,k,l,m} c_n \, d^{12}_{nk} \, d^{21}_{kl} \, d^{12}_{lm} \, d^{21}_{mn}$$

$$\frac{2\Gamma}{w_e(k-m) + i\Gamma} \; \frac{1}{w_e(l-n) - w_s + i\Gamma} \; \frac{1}{w_e(m-n) \underset{-w_s}{-} w_s - i\Gamma}$$

$$\left(\frac{1}{w_e(m-l) - w_s \underset{+w_s}{+} i\Gamma} - \frac{1}{w_e(l-m) - w_s \underset{+w_s}{+} i\Gamma} \right) \; +w_s$$

Σ

Elemen



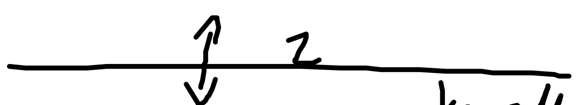
VI. Ausblick auf bessere Materialmodelle

Bisher bei Dephasing, exponentiellen Zerfall angenommen

$$\rho(t) \sim \rho(0)\, e^{-\gamma t}$$

Das ist das „einfachste Modell".
Funktioniert ganz gut, ist aber eigentlich falsch!

Bsp f. besseres Modell:



koppelt an Reservoir von harm. Oszillatoren

$$H = \varepsilon_1 |1\rangle\langle 1| + \varepsilon_2 |2\rangle\langle 2| + \underbrace{\sum_i \hbar\omega_i c_i^\dagger c_i}_{\substack{\text{Energie des harm. Osz.} \\ \text{in BO-Näherung} \\ H_{o.ph}}} + \underbrace{\sum_i g_i |2\rangle\langle 2| (c_i^\dagger + c_i)}_{\substack{\text{lineare Kopplung} \\ \text{zw. Osz. und El.} \\ H_{el.ph}}}$$

Somit ist

$$p(t) = tr(|1\rangle\langle 2| \rho)(t) = tr(|1\rangle\langle 2| U(t,t_0)\, \rho(t_0)\, U^+(t,t_0))$$

$$\left[U(t,t_0) = e^{-\frac{i}{\hbar} H (t-t_0)} \right]$$

Anfangsbed.:

$$\rho(t_0) = \rho_{el} \otimes \rho_B$$

$$\rho_{el} = (|1\rangle\langle 2| + \dots$$

$$= tr(U^+(t,t_0) |1\rangle\langle 2| U(t,t_0) |2\rangle\langle 1| \otimes \rho_B)$$

$$= tr_B(\langle 1| U^+(t,t_0) |1\rangle \langle 2| U(t,t_0) |2\rangle \rho_B)$$

$$= tr_B(e^{\frac{i}{\hbar} H_{0,ph}(t-t_0)} e^{\frac{i}{\hbar} \varepsilon_1 (t-t_0)} e^{-\frac{i}{\hbar} \varepsilon_2 (t-t_0)} e^{-\frac{i}{\hbar} (H^2_{el-ph} + H_{0,ph})(t-t_0)} \rho_B)$$

$$H^2_{el.ph} = \sum_l g_l \,(c_l^+ + c_l)$$

$$= e^{\frac{i}{\hbar} (\varepsilon_1 - \varepsilon_2)(t-t_0)}\, tr_B(e^{\frac{i}{\hbar} H_{0,ph}(t-t_0)} e^{-\frac{i}{\hbar} (H_{el-ph} + H_{0,ph})(t-t_0)} \rho_B)$$

F Feynman – Disentanglement Theorem:

$$V(t) = \underset{?}{T_{\leftarrow}} \exp\left(\int_{t_0}^{t} dt' \, (A_1(t') + A_2(t')) \right)$$

$$V(t) = V_1(t) V_2(t) \qquad V_1(t) = T_{\leftarrow} \exp\left(\int_{t_0}^{t} dt' \, A_1(t') \right)$$

$$V_2(t) = T_\leftarrow \exp\left(\int_{t_0}^{t} dt'\, V_1^{-1}(t')\, A_2(t')\, V_1(t')\right)$$

$$\hat{=}\, e^{\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_1-\varepsilon_2)(t-t_0)}\, \mathrm{tr}_B\Big(e^{\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t-t_0)}\, T_\leftarrow \exp\Big(-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt'\, e^{-\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t'-t_0)}\, H^2_{el-ph}\, e^{\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t'-t_0)}\Big)\, e^{-\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t-t_0)}\, \rho_B\Big)$$

$$e^{-\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t-t_0)}\, e^{\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t-t_0)} = Id$$

$$= e^{\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_1-\varepsilon_2)(t-t_0)}\, \mathrm{tr}_B\Big(T_\leftarrow \exp\Big(-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt'\, \underbrace{e^{-\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t'-t)}\, H^2_{el-ph}\, e^{\frac{i}{\hbar}H_{0,ph}(t'-t)}}\Big)\rho_B\Big)$$

$$\to e^{-\frac{i}{\hbar}\hbar\sum_l \omega_l c_l^\dagger c_l (t'-t)} \sum_l g_l (c_l^\dagger + c_l)\, e^{\frac{i}{\hbar}\hbar\sum_l \omega_l c_l^\dagger c_l (t'-t)}$$

$$= e^{\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_1-\varepsilon_2)(t-t_0)}\, \underbrace{\mathrm{tr}_B\Big(T_\leftarrow \exp\Big(-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt' \sum_l g_l \big(c_l^\dagger e^{-i\omega_l(t'-t)} + c_l e^{i\omega_l(t'-t)}\big)\Big)\rho_B\Big)}_{\text{Muß berechnet werden}}$$

Lösung

$$R(t) = \mathrm{tr}_B\Big(T_\leftarrow \exp\Big(-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt' \sum_l g_l \big(c^\dagger e^{-i\omega_l(t'-t)} + c_l e^{i\omega_l(t'-t)}\big)\Big)\rho_B\Big)$$

Cumulantenentwicklung

<u>Idee</u>:

$$R(t) = e^{-\underbrace{\Phi_1(t)}_{\text{2. Ordnung in } g} - \underbrace{\Phi_2(t)}_{\text{4. Ordnung in } g} \dots}$$

<u>0. Ordnung in g</u>

$$R(t)\big|_0 = \mathrm{tr}_B(\rho_B) = 1 = 1 = e^{-\Phi_1(t) - \Phi_2(t)}\big|_0$$

1. Ordnung in g

$$R(t)\big|_1 = \mathrm{tr}\Big(-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt' \sum_l g_l \big(c^+ e^{-i\omega_l(t'-t)} + c_l e^{+i\omega_l(t'-t)}\big)\varrho_B\Big) = 0 \overset{!}{=} e^{-\Sigma(t)}\ldots$$

Da $\mathrm{tr}_B(c^+\varrho_B) = 0$

2. Ordnung in g

$$\mathrm{tr}_B\Big[-\frac{1}{\hbar^2}\sum_l\int_{t_0}^{t} dt'\, g_l\big(c_l^+ e^{-i\omega_l(t'-t)} + c_l e^{i\omega_l(t'-t)}\big)\int_{t_0}^{t'} dt''\sum_{l'} g_{l'}\big(c_{l'}^+ e^{-i\omega_{l'}(t''-t)} + c\, e^{+i\omega_{l'}(t''-t)}\big)\varrho_B\Big]$$

Da $\mathrm{tr}(c_l^+ c_{l'}^+ \varrho_B) = 0$, $\mathrm{tr}_B(c_l c_{l'} \varrho_B) = 0$

$\mathrm{tr}(c_l^+ c_{l'} \varrho_B) = \delta_{ll'}\, \mathrm{tr}(c_l^+ c_l \varrho_B) = \delta_{ll'}\, n_l$

$$= \frac{1}{\hbar^2}\sum_l g_l^2\Big(\underbrace{\int_{t_0}^{t} dt' \int_{t_0}^{t'} dt'' e^{-i\omega_l(t'-t'')}}_{\frac{1-e^{-i\omega_l(t-t_0)}}{\omega_l^2} - \frac{i(t-t_0)}{\omega_l}} \underbrace{\mathrm{tr}(c_l^+ c_l \varrho_B)}_{n_l} + \underbrace{\int_{t_0}^{t} dt' \int_{t_0}^{t'} dt'' e^{i\omega_l(t'-t'')}}_{\frac{1-e^{i\omega_l(t-t_0)}}{\omega_l^2} + \frac{i}{\omega_l}(t-t_0)} \underbrace{\mathrm{tr}(c_l c_l^+ \varrho_B)}_{(n_l+1)}\Big)$$

$$= -\frac{1}{\hbar^2}\sum_l g_l^2\Big(\frac{(1-e^{-i\omega_l(t-t_0)})}{\omega_l^2} n_l + \frac{(1-e^{i\omega_l(t-t_0)})}{\omega_l^2}(n_l+1) + \frac{i}{\omega_l}(t-t_0)\Big)$$

$$\overset{!}{=} -\mathcal{F}_1(t)$$

Müssen wir noch immer nach Kidder suchen?

Nein! Warum?