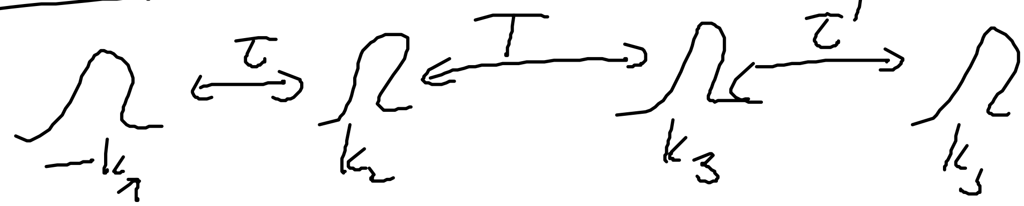
Beispiel k_I 2D Photonecho

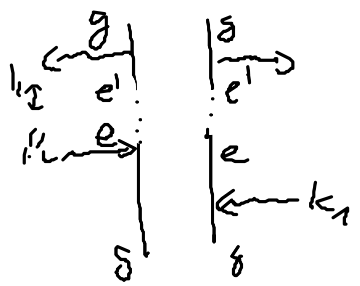
Erinnerung:



Das Signal hängt von 3 Verzögerungszeiten ab

FT nur über τ und τ'

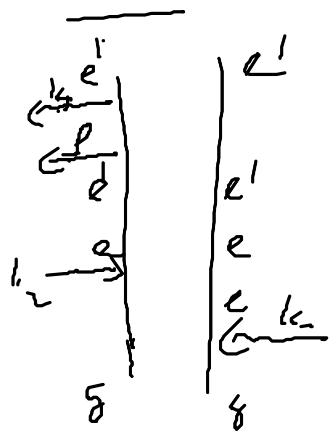
ESE (Hier nur Fall Dichterelaxation)



$$S_{k_I}^{ESE}(\Omega_1,T,\Omega_3) = \left(\frac{-i}{\hbar}\right)^3 \frac{1}{i^2} \sum_{ee'} E_s\cdot\mu_{ge'}\, E_3\cdot\mu_{e'g}\, E_2\,\mu_{eg}\, E_1\,\mu_{ge}$$

$$\underbrace{\frac{1}{\Omega_3-\omega_{e'g}+i\Gamma_{e'g}}}_{\text{Zielfrequenz}}\ \underbrace{G_{e'e',ee}(T)}_{\text{Relaxation}}\ \underbrace{\frac{1}{\Omega_1-\omega_{ge}+i\Gamma_{ge}}}_{\text{Startfrequenz}}$$

ESA



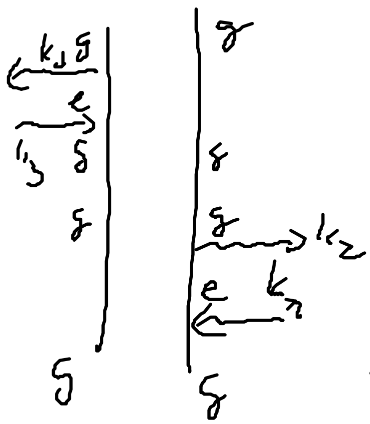
$$S_{k_I}^{ESA}(\Omega_1,T,\Omega_3) = -\left(\frac{-i}{\hbar}\right)^3 \frac{1}{i^2}$$

$$\sum_{ee'f} E_s\cdot\mu_{fe'}\, E_3\cdot\mu_{e'f}\, E_2\cdot\mu_{ge}\, E_1\cdot\mu_{eg}$$

$$\frac{1}{\Omega_3-\omega_{fe}+i\Gamma_{fe}}\ \underbrace{G_{e'e'ee}(T)}_{\text{Relaxation der Dichte}}\ \frac{1}{\Omega_1-\omega_{ge}+i\Gamma_{ge}}$$

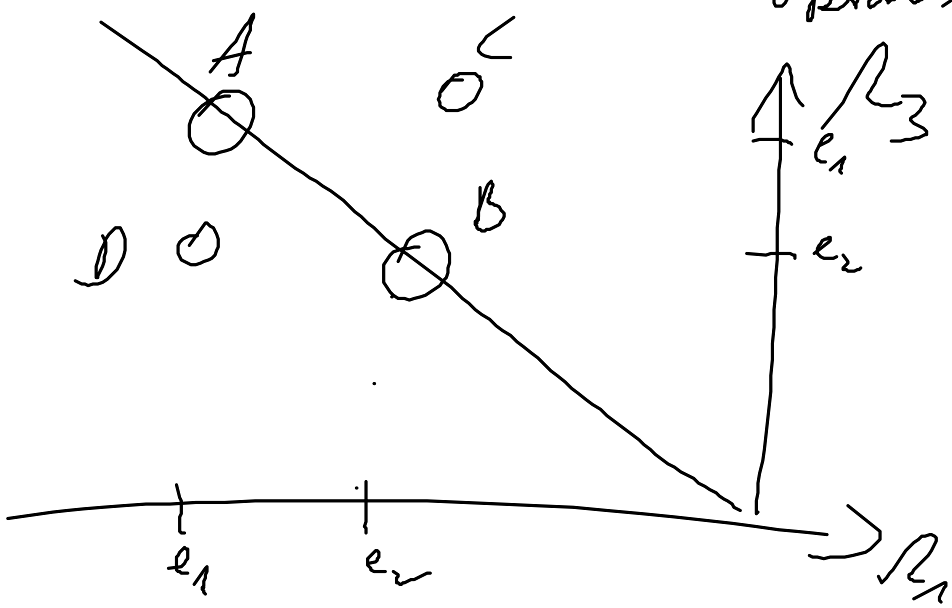
Achtung berücksichtigt werden muß u.U. auch die Änderung des phononischen Systems. Dann kann G noch Operator im Phononsystem sein.

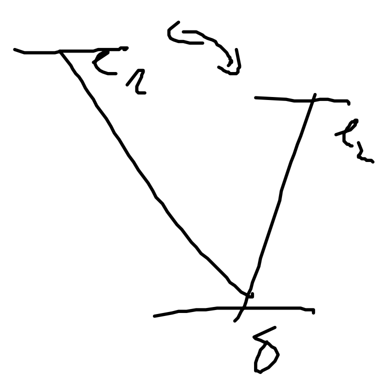
SSB



$$S^{SSB}_{k_I}(\Omega_1, T, \Omega_3) = \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^3 \frac{1}{i^2} \sum_{ee'} E_S \cdot \mu_{ge'} E_3 \cdot \mu_{e'g} E_2 \cdot \mu_{ge} E_1 \cdot \mu_{eg} \frac{1}{\Omega_3 - \omega_{e'g} + i\eta_{e'g}} \underline{G_{gg,gg}(T)} \frac{1}{\Omega_1 - \omega_{eg} + i\eta_{eg}}$$

Hier findet keine Relaxation statt.
Achtung z.B. bei Raman muß Störung des Phononsystems berücksichtigt werden. G ist Operator im Phononsystem





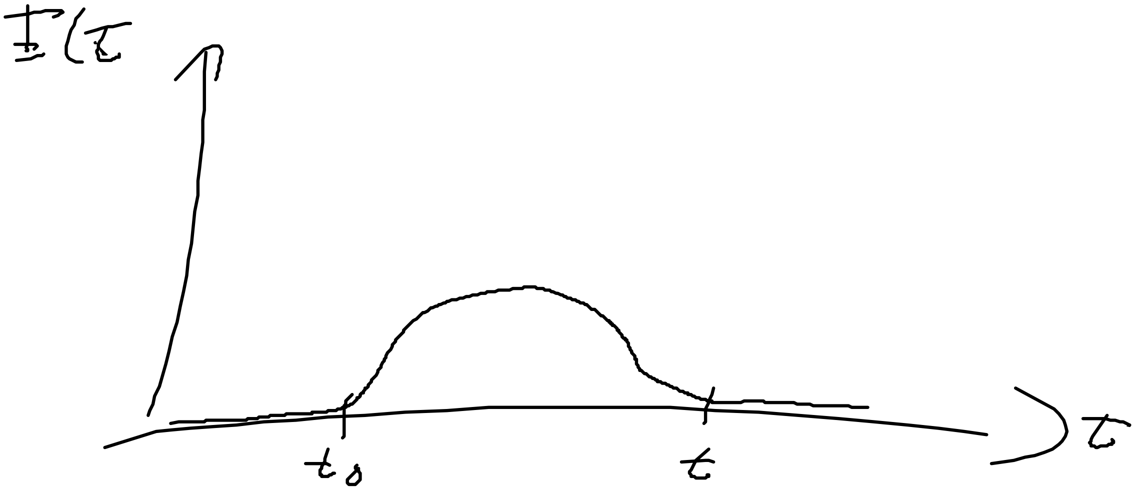
Bei Variation von T wird D, C größer

A sieht dafür, B sieht auch leicht.

VI. Übergangsamplituden und optisches Theorem

Folgt Mukamel, Rahav.

Vielfach stellt sich die Frage, welche Übergänge in Materie bei einem optischen Experiment stattfinden.



Aus Sicht des Materials wie hoch ist die Wahrscheinlichkeit für den Übergang.

$$P_{a \to c}(t) = \langle \psi(t) | c \rangle \langle c | \psi(t) \rangle = |\langle c | \psi(t) \rangle|^2$$

$$|\psi(t)\rangle = U_I(t, t_0) \underbrace{|a\rangle}_{\text{System ist zunächst im Zustand a}}$$

Propagator

$$P_{a \to c}(t) = |\langle c(t) | U_I(t, t_0) | a(t_0) \rangle|^2$$

$$U_I(t,t_0) = T_{\leftarrow} \exp\left[-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} d\tau\, H_I'(\tau)\right]$$

$$H_I'(\tau) = U_0^\dagger(\tau,t_0)\, H'(\tau)\, U_0(\tau,t_0)$$

mit $|a(t)\rangle = U_0^\dagger(t,t_0)|a\rangle$

Ziel ist es $\langle c(t)|\, U(t,t_0)\, |a(t_0)\rangle$

auszurechnen!

$U_I(t,t_0)$ erfüllt die Rekursion

$$U_I(t,t_0) = 1 - \frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} d\tau\, H_I(\tau)\, U_I(\tau,t_0)$$

Einsetzen

$$\langle c(t)|\, \hat{U}_I(t,t_0)\, |a(t_0)\rangle = \langle c(t)|\, 1\, |a(t_0)\rangle - \frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} d\tau\, \langle c(t)|\, H_I(\tau)\, U_I(\tau,t_0)\, |a(t_0)\rangle$$

$$= \delta_{ca}\, e^{-\frac{i}{\hbar}\varepsilon_a(t-t_0)} - \frac{i}{\hbar}\, e^{-\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_c t - \varepsilon_a t_0)}\, T_{ca}(\omega_{ca})$$

Übergangsamplitude

$$T_{ca}(\tau) = \langle c(t_0)|\, H_I(\tau)\, U_I(\tau,t_0)\, |a(t_0)\rangle\, e^{\frac{i}{\hbar}\varepsilon_a(\tau-t_0)}$$

$$T_{ca}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau\, e^{i\omega\tau}\, T_{ca}(\tau)$$

$T_{ca}(\tau)$, $T_{ca}(\omega)$ nennt sich Übergangsamplituden (Transition amplitudes)

Mit Hilfe dieser Relation kann man das optische

Theorem beweisen:

$$1 = \mathrm{tr}\Big(U_I(t,t_0)\underbrace{\rho}_{\substack{\shortparallel \\ |a\rangle\langle a|}} U_I^\dagger(t,t_0)\Big) = \sum_c |\langle c(t)|U_I(t,t_0)|a(t)\rangle|^2$$

$$= 1 - \frac{\bar{I}}{\hbar} e^{-\frac{\bar{i}}{\hbar}(\varepsilon_c t - \varepsilon_a t_0)} T_{ca}(\omega_{ca})\delta_{ca}$$

$$+ \frac{\bar{I}}{\hbar} e^{\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_c t - \varepsilon_a t_0)} T_{ca}(\omega_{ca})\delta_{ca}$$

$$+ \sum_c |T_{ca}(\omega_{ca})|^2$$

$$\Rightarrow \quad \Big\| \quad \mathrm{Im}\, T_{aa}(\omega_{aa} = 0) = -\frac{1}{2\hbar} \underbrace{\sum_c |T_{ca}(\omega_{ca})|^2}_{\text{Totale Streuamplitude}} \quad \Big\|$$

Optisches Theorem

Streuamplitude

(Ursprünge für ähnliche optische Theoreme gehen auf Rayleigh)

Man kann die Streuamplitude sowohl in der Zeit- oder Frequenzdomäne auswerten

Hier Beispiel Frequenz:

$$T_{ca}(\omega_{ca}) = -\int d\omega\, E(\omega)\, \widetilde{T}_{ca}^{(1)}(\omega)\, \delta(\omega_{ca} - \omega)$$

$$+ \frac{1}{2\pi\hbar}\int d\omega_1 \int d\omega_2\, E(\omega_1) E(\omega_2)\, \widetilde{T}_{ca}^{(2)}(\omega_2, \omega_1)\, \delta(\omega_{ca} - \omega_1 - \omega_2)$$

$$-\frac{1}{4\pi^2\hbar^2}\int d\omega_1\int d\omega_2\int d\omega_3\, E(\omega_1)E(\omega_2)E(\omega_3)\; \tilde{T}^{(3)}_{ca}(\omega_3,\omega_2,\omega_1)\;\delta(\omega_{ca}-\omega_1-\omega_2-\omega_3)$$

Nackte Übergangsamplitude (ohne Feld)
bare Transitionamplitude

Zur Herleitung: $H_I(\tau) = \int d\omega\, e^{i\omega t} E(\tau)\mu$

mit $\tilde{T}^{(1)}_{ca}(\omega_1) = \mu_{ca}$

$$\tilde{T}^{(2)}_{ca}(\omega_2,\omega_1) = \sum_{\nu} \frac{\mu_{c\nu}\;\mu_{\nu a}}{\omega_1-\omega_{\nu a}+i\eta}$$

$$\tilde{T}^{(3)}_{ca}(\omega_3,\omega_2,\omega_1) = \sum_{\nu_1\nu_2} \frac{\mu_{c\nu_2}\;\mu_{\nu_2\nu_1}\;\mu_{\nu_1 a}}{(\omega_1+\omega_2-\omega_{\nu_2 a}+i\eta)\;(\omega_1-\omega_{\nu_1 a}+i\eta)}$$

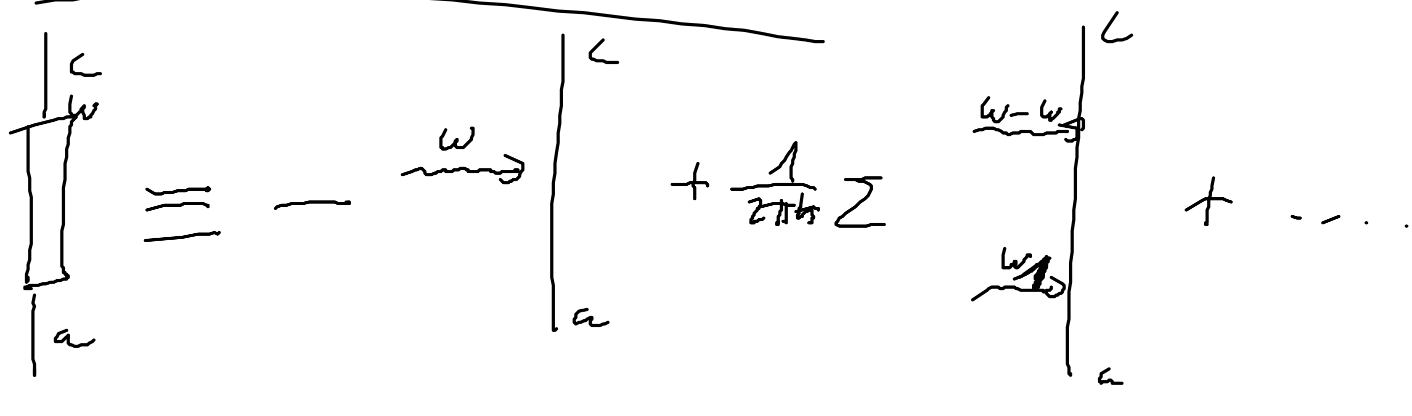
...

Die Teile der ~~Streumatrix~~ Übergangsamplitude werden bewertet in folgender Art

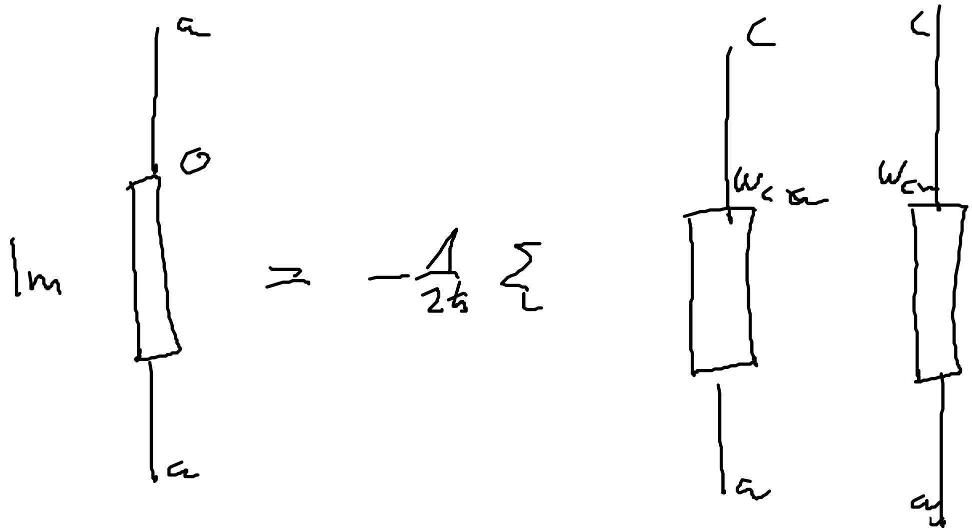
(i) Jeder Übergang bringt ein Dipolelement mit.

(ii) Propagation zwischen zwei Streuzuständen erfolgt über die Greenfkt. (Argument ist die Summe aller vorherigen Frequenzen bezüglich der Übergangsfrequenz)

Diagrammatische Darstellung



optisches Theorem



Beispiel Ein k-Photon Prozess kann in ω-Operator über die Kramers-Heisenberg Relation beschrieben werden.

$$R_{a\to c} \propto \left|T^{(k)}_{ca}(\omega_1,\dots,\omega_k)\right|^2 \delta\left(\sum_{n=1}^{k}\omega_n - \omega_{ca}\right)$$

Nimmt an dass nur der k Pfad beiträgt!

Achtung im Allgemeinen können verschiedene Pfade interferieren!

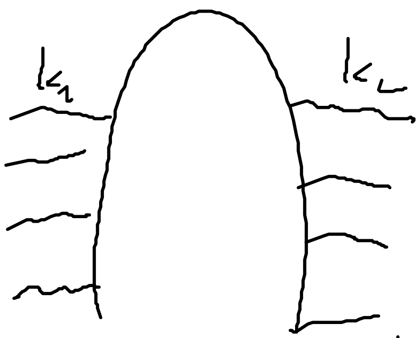
Interferenzeffekte

Gibt es Prozesse mehrerer Ordnung, so müssen die Amplituden addiert werden, **nicht** die Übergangsraten!

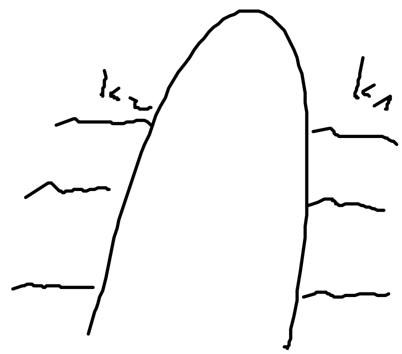
Nehmen wir an, wir haben Prozesse der Ordnung k_1 und k_2 die beitragen. $k_1+k_2=$ Ordnung

$$\Delta N_{abs} \propto \Big| T_{cw}^{(k_1)}(\omega_1,\dots,\omega_{k_1})\, \delta_\Delta\Big(\sum_{i=1}^{k_1} \omega_i-\omega_{cw}\Big) + T_{cw}^{(k_2)}(\omega_{k_1+1},\dots,\omega_{k_1+k_2})\, \delta_\Delta\Big(\sum_{i=k_1+1}^{k_1+k_2} \omega_i-\omega_{cw}\Big)\Big)\Big|$$

Vergleich mit Schleifendiagrammen



bzw.



Hier wird $T_{cw}^{(k_1)}\, T_{cw}^{(k_2)*}$ + c.c. als Interferenzkorrektur zwischen den beiden Prozessen aufgeführt.