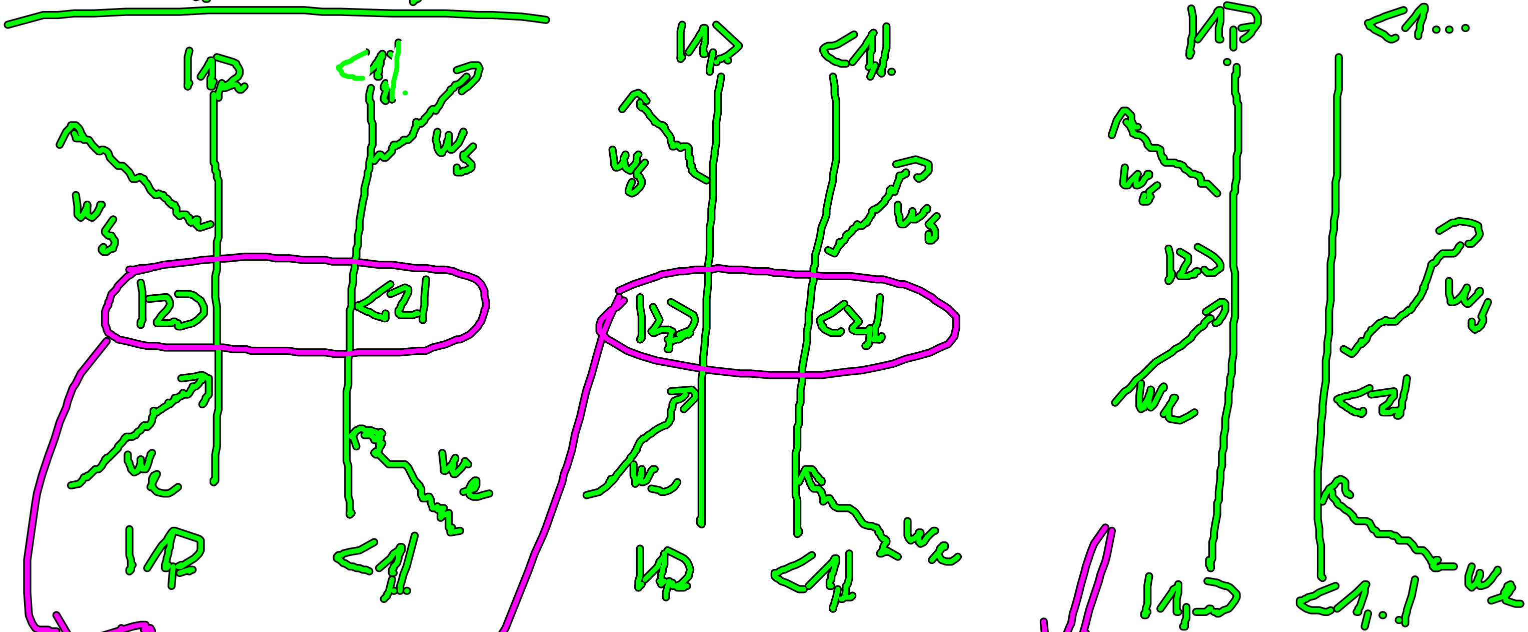
Ramanstreuung



Fluoreszenz

Lebensdauer der Dichte gibt Dynamik vor

Raman Dynamik wird durch Lebensdauer der Kohärenz bestimmt.

$\Downarrow$ Formel ineinander einsetzen

$$S_{SLE}(\omega_a, \omega_s) = S_{Raman}(\omega_a, \omega_s) + S_{Fl}(\omega_a, \omega_s)$$

$$S_{Raman}(\omega_a, \omega_s) = 2\pi \sum_{nm} c_{nm} |\chi_{nm}(\omega_L)|^2 \; \delta(\omega_L(n-m) + \omega_s - \omega_a)$$

$$\chi_{nm}(\omega_L) = \sum_k \frac{d^{12}_{nk} \, d^{12}_{km}}{\omega_L(n-m) + \cancel{\omega_a}_{-\omega_s} + i\gamma}$$

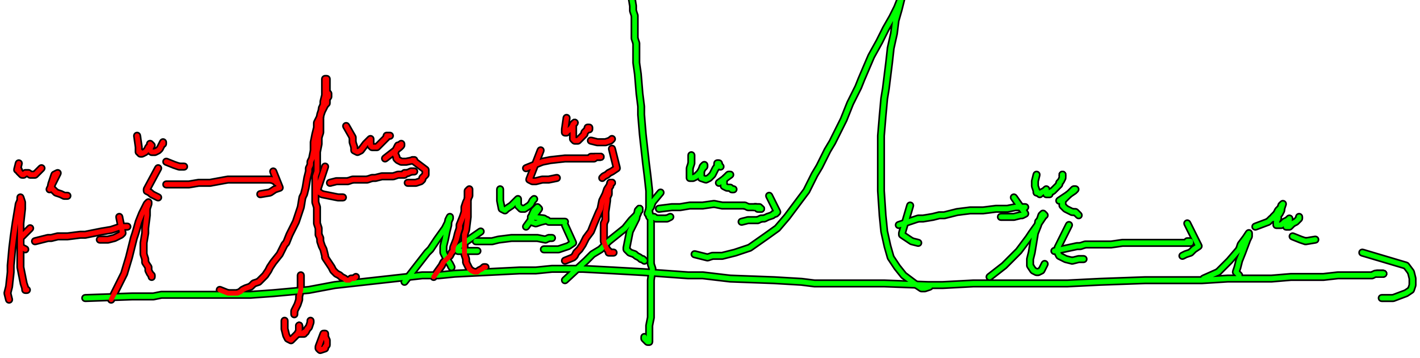
Fehlerkorrektur notwendig

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

$$\frac{2\Gamma}{\omega_L(k-m) + i\Gamma} \; \frac{1}{\omega_L(l-n) - \omega_s + i\Gamma}_{-\omega_s} \; \frac{1}{\omega_L(m-n) - \omega_s - i\Gamma}$$

$$\left(\frac{1}{\omega_L(m-l) - \omega_s + i\Gamma}_{+\omega_s} \quad \frac{1}{\omega_L(l-m) - \omega_s + i\Gamma}_{+\omega_s} \right)$$

Σ Ebenen



VI. Ausblick auf bessere Minimalmodelle

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:

2

koppelt an Reservoir von harm. Oszillatoren

1

$$H = \varepsilon_1 |1\rangle\langle 1| + \varepsilon_2 |2\rangle\langle 2| + \underbrace{\sum_q \hbar\omega_q c_q^\dagger c_q}_{\substack{\text{Energie des harm. Osz.}\\ \text{in BO-Näherung}\\ H_{0,ph}}} + \underbrace{\sum_q g_q |2\rangle\langle 2| (c_q^\dagger + c_q)}_{\substack{\text{lineare Kopplung}\\ \text{zw. Osz. und El.}\\ H_{el,ph}}}$$

Gesucht 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.:

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

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

$+ \ldots$

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

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

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

$$H^2_{el.ph} = \sum_i g_i\,(c_i^+ + c_i)$$

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

F Feynman - Disentanglement Theorem:

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

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

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

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

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

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

$$\rightarrow e^{-\frac{i}{\hbar}\hbar\sum_q \omega_q c_q^+ c_q (t'-t)}\, \sum_q g_q (c_q^+ + c_q)\, e^{\frac{i}{\hbar}\hbar\sum_q \omega_q c_q^+ c_q (t'-t)}$$

$$= e^{-\frac{i}{\hbar}(\varepsilon_1-\varepsilon_2)(t-t_0)}\, tr_B\left(\underbrace{T_\leftarrow \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt' \sum_q g_q \left(c_q^+ e^{-i\omega_q(t'-t)} + c_q e^{i\omega_q(t'-t)}\right)\right)}_{\text{Muß berechnet werden}}\rho_B\right)$$

Lösen

$$R(t) = tr_B\left(T_\leftarrow \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt' \sum_q g_q \left(c^+ e^{-i\omega_q(t'-t)} + c_q e^{i\omega_q(t'-t)}\right)\rho_B\right)\right)$$

Cumulantenentwicklung

<u>Idee</u>:

$$R(t) \approx e^{-\mathcal{F}_1(t) - \mathcal{F}_2(t) \ldots\ldots}$$

$\mathcal{F}_1$: 2. Ordnung in g — $\mathcal{F}_2$: 4. Ordnung in g

0. Ordnung in g

$$R(t)\Big|_0 = tr_B(\rho_B) = 1 = 1 = \Big|_0\, e^{-\mathcal{F}_1(t) - \mathcal{F}_2(t)}$$

1. Ordnung in g

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

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

2. Ordnung in g

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

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

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

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

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

$$\overset{!}{=} -\Gamma_1(t)$$

Müssen wir noch immer nach höher gehen?

Nein! Warum?