

2. Zweiniveaumatome

2. ZWEINIVEAUATOME	1
2.1 Das Jaynes-Cummings Modell	2
2.1.1 Das Korrespondenzprinzip	2
2.1.2 Das Modell	3
2.1.3 Hamiltonoperator	3
2.1.4 Näherungsform	5
2.1.5 Dynamik	6
2.1.6 Kollaps	7
2.2 Halbklassische Beschreibung: Das Modell	9
2.2.1 Übersicht	9
2.2.2 Basisoperatoren	10
2.2.3 Hamiltonoperator	11
2.3 Der Dichteoperator	12
2.3.1 Beschreibung eines Ensembles	12
2.3.2 Definition des Dichteoperators	13
2.3.3 Darstellung von Zuständen	14
2.3.4 Rechenregeln für den Dichteoperator	15
2.3.5 Beispiele	16
2.3.6 Pseudospin	17
2.3.7 Der Hamiltonoperator des Pseudospins	19
2.4 Bewegungsgleichung	20
2.4.1 Blochgleichung im Laborsystem	20
2.4.2 Freie Präzession	21
2.4.3 Rotierendes Koordinatensystem	22
2.4.4 Transformation von Zuständen	23
2.4.5 Transformation von Operatoren	24
2.4.6 Transformation des Hamiltonoperators	24
2.4.7 Anwendung auf Blochgleichung	25
2.4.8 Näherungsform	26
2.5 Lösung der Blochgleichung	28
2.5.1 Eigenwerte und Eigenvektoren	28
2.5.2 Verstimmungsabhängigkeit der Energien	29
2.5.3 Präzession und Pulse	30
2.5.4 Relaxationsprozesse	32
2.5.5 Die optische Blochgleichung	33
2.5.6 Stationäre Lösung	34
2.5.7 Intensitätsabhängigkeit	35
2.5.8 Verstimmungsabhängigkeit	36
2.5.9 Transversale Komponenten: Absorption / Dispersion	38
2.5.10 Vergleich klassisches / quantenmechanisches Modell	39

2.1 Das Jaynes-Cummings Modell

2.1.1 Das Korrespondenzprinzip

Klassisch wird die Wechselwirkung zwischen einem Atom und dem Strahlungsfeld durch das Skalarprodukt

Z: Dipol / Feld

$$U = -\vec{E} \cdot \vec{d}$$

beschrieben, wobei \vec{E} das elektrische Feld und \vec{d} das atomare Dipolmoment beschreiben. Gemäß dem Korrespondenzprinzip können wir diese klassische Wechselwirkung in einen Hamiltonoperator umwandeln indem wir die klassischen Variablen durch die entsprechenden quantenmechanischen Operatoren ersetzen.

Den atomaren Dipol schreibt man bekanntlich als

$$\vec{d} = -e \vec{r},$$

wobei $-e$ die Ladung und \vec{r} den Ort des Elektrons bezeichnet. Der entsprechende Operator ist somit proportional zum Ortsoperator des Elektrons. Bekanntlich hat dieser Operator nur zwischen Zuständen mit unterschiedlicher Parität nicht verschwindende Elemente.

Im Falle des Wasserstoffs bedeutet dies z.B. daß der Grundzustand nicht an höherliegende s-Orbitale koppeln kann.

Z: Übergänge im H

Obwohl jedes Atom eine unendliche Zahl von Zuständen besitzt, zwischen denen eine unendliche Zahl von erlaubten Übergängen existieren, ist es in vielen Fällen möglich, alle ausser Zweien zu vernachlässigen. Die beiden relevanten Zustände sind diejenigen, deren Energiedifferenz in der Nähe der Photonenergie liegt.

Z: 2-Niveau System

Der Dipoloperator für diese beiden Zustände besitzt somit lediglich Außerdiagonalelemente,

$$\langle e | \vec{r} | l \rangle = \langle g | \vec{r} | l \rangle = 0 \quad \langle e | \vec{r} | g \rangle = \langle g | \vec{r} | e \rangle^* = \mu_e.$$

Das elektromagnetische Feld kann aber nicht durch einen einzelnen Operator ausgedrückt werden. Statt dessen benutzt man üblicherweise eine Summe über die einzelnen Moden des Feldes.

Davon gibt es aber unendlich viele. Jede einzelne Mode entspricht einem harmonischen Oszillator. Die vollständige Form des Ha-

Z: Feldmoden

Hamiltonoperator ist deshalb bei weitem nicht trivial.

2.1.2 Das Modell

Es gibt jedoch eine vereinfachte Form, die es erlaubt, analytische Resultate zu erhalten und trotzdem einige wesentliche Aspekte der Wechselwirkung exakt beschreibt. Dazu vernachlässigt man sämtliche Moden außer einer. Eine einzelne Mode ist ein relativ leicht zu beschreibendes Objekt.

Die formale Behandlung ist identisch mit der eines harmonischen Oszillators. Die relevanten Operatoren können als Funktion des Auf- und Absteigeoperators a^\dagger und a geschrieben werden.

Z. harmonischer Oszillator

Dieses Modell ist von Jaynes und Cummings entwickelt worden (E.T. Jaynes and F.W. Cummings, Proc. IEEE 51, 89 (1963)). Es war ursprünglich als ein rein theoretisches Modell entwickelt worden, um zu untersuchen, inwiefern sich die Voraussagen der Quantenmechanik von denen der klassischen Theorie, d.h. der Maxwell-Gleichungen unterscheiden würde. Zu dieser Zeit schien es nicht denkbar, daß man mit einzelnen Moden des Strahlungsfeldes oder einzelnen Atomen Experimente durchführen könnte.

Inzwischen ist es aber in verschiedenen Gruppen gelungen, Versuchsaufbauten zu realisieren, in denen diese theoretische Idealsituation in einer sehr guten Näherung erreicht wird. Man muß dafür einerseits die Wechselwirkung mit einer Mode verstärken, andererseits die Wechselwirkung mit allen anderen Moden unterdrücken, so daß die Wechselwirkung des Systems mit einer einzelnen Mode sehr viel stärker wird als die mit allen anderen Moden zusammen.

Z: Resonator

Literatur: P. Goy, J.M. Raimond, M. Gross, and S. Haroche, '*Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission*', Phys. Rev. Lett. 50, 1903-1906 (1983).

H. Walther, '*The single atom maser and the quantum electrodynamics in a cavity*', Physica Scripta T23, 165-169 (1988).

S. Haroche and D. Kleppner, '*Cavity quantum electrodynamics*', Physics Today January 1989, 24-30 (1989).

E.A. Hinds, '*Cavity Quantum Electrodynamics*', in *Adv. atomic, mol. opt. phys.* 28, Editor: D. Bates, Academic Press, Boston (1991).

S. Haroche, '*Cavity Quantum Electrodynamics*', in *Fundamental Systems in Quantum Optics; Proceedings of the Les Houches summer school*, Editor: J. Dalibard, J.M. Raimond, and J. Zinn-Justin, North-Holland, Amsterdam (1992).

H. Walther, '*Experiments on cavity quantum electrodynamics*', Phys. Rep. 219, 263-281 (1992).

2.1.3 Hamiltonoperator

Der Jaynes-Cummings Hamiltonoperator besteht aus drei Teilen

$$\mathcal{H}_{\text{tot}} = \mathcal{H}_{\text{atom}} + \mathcal{H}_{\text{feld}} + \mathcal{H}_{\text{ww}} ,$$

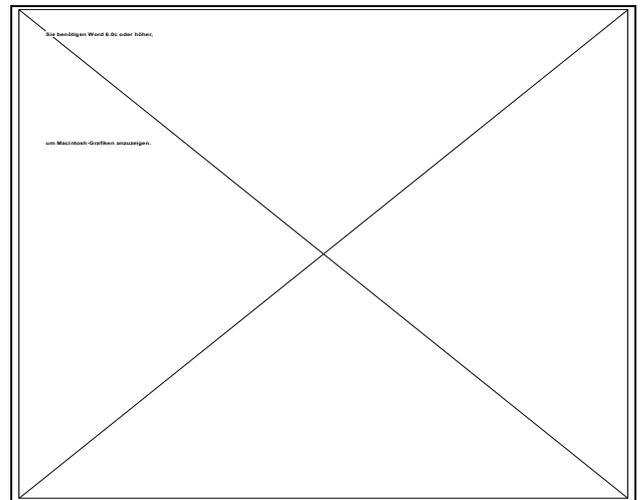
wobei

$$\mathcal{H}_{\text{atom}} = - 1/2 \hbar \omega_0 \sigma_z$$

$$\mathcal{H}_{\text{feld}} = \hbar \omega_L (a^\dagger a + 1/2)$$

das freie Atom und das isolierte elektromagnetische Feld darstellen. Der Operator σ_z ist ein Pauli Spinoperator, der auf das Zweiniveaumatom wirkt, ω_0 bezeichnet die atomare Resonanzfrequenz, und ω_L die Laserfrequenz. Der Ursprung für die Energieachse wurde für das 2-Niveaumatom so gewählt, daß er in der Mitte zwischen den beiden Zuständen liegt. Dies hat keine tiefere Bedeutung, ist aber für die weiteren Rechnungen nützlich.

Die Figur zeigt die beiden Komponenten des Modells. Das „Zweiniveaumatom“ kann hier einerseits wirklich ein Atom beschreiben, oder es kann einen Spin-1/2 darstellen. Die Wechselwirkung zwischen den beiden ist die elektrische oder magnetische Dipol Wechselwirkung. Wir benutzen das Korrespondenzprinzip und schreiben den Wechselwirkungsoperator als



$$\mathcal{H}_{\text{ww}} = \omega_1 (a + a^\dagger) (\sigma_+ + \sigma_-) =$$

$$\omega_1 (a \sigma_+ + a \sigma_- + a^\dagger \sigma_+ + a^\dagger \sigma_-) \approx \omega_1 (a \sigma_+ + a^\dagger \sigma_-)$$

wobei ω_1 die Kopplungsstärke parametrisiert. Diese hängt vom atomaren Dipolmoment, dem Modenvolumen, sowie von der Position des Atoms in der Mode ab. Die Operatoren σ_\pm sind Pauli Spinmatrizen, welche den Übergang vom Grund- zum elektronisch angeregten Zustand des Zweiniveaumatoms beschreiben.

Die erste Form des Hamiltonoperators erhält man direkt aus dem Korrespondenzprinzip indem man den atomaren Dipol durch den entsprechenden Operator ersetzt. Bekanntlich besitzen Atome kein permanentes elektrisches Dipolmoment, d.h. der Dipoloperator besitzt nur Außerdiagonalelemente. Durch geeignete Wahl der Phasen kann der Dipoloperator somit geschrieben werden als

Z: Effekt der einzelnen Terme

$$\sigma_x = (\sigma_+ + \sigma_-) .$$

Der Operator des elektrischen Feldes entspricht der Summe eines Aufsteige- und eines Absteigeoperators

$$\hat{E} \sim a + a^\dagger.$$

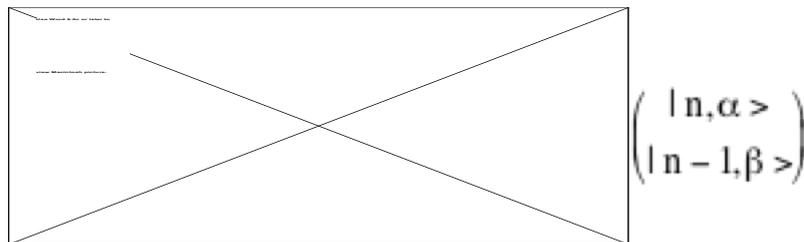
2.1.4 Näherungsform

Die Näherungsform erhält man indem man die Terme $a^\dagger \sigma_+$ und $a \sigma_-$ vernachlässigt. Der erste der beiden Terme beschreibt den Übergang eines Atoms aus dem Grundzustand in den angeregten Zustand während gleichzeitig ein Photon erzeugt wird, der zweite Term den umgekehrten Vorgang. Diese Prozesse sind nicht energieerhaltend und spielen deshalb erst in sehr hoher Ordnung einer Störungsrechnung eine Rolle. Die Näherungsform entspricht der Approximation eines rotierenden Feldes, das in der halb-klassischen Näherung noch diskutiert wird.

Der Operator kann direkt mit einem physikalischen Prozeß verknüpft werden. Der eine beschreibt die Absorption eines Photons, d.h. die Vernichtung eines Photons und die Erhöhung der Energie des atomaren Systems um ein Quant. Der konjugierte Operator beschreibt den umgekehrten Prozeß.

Z: Zweiniveauprozesse

Wenn wir zunächst nur ein Paar von zwei benachbarten Zuständen betrachten, kann der entsprechende Teil des Hamiltonoperators geschrieben werden als



Die zugehörigen Zustände entsprechen

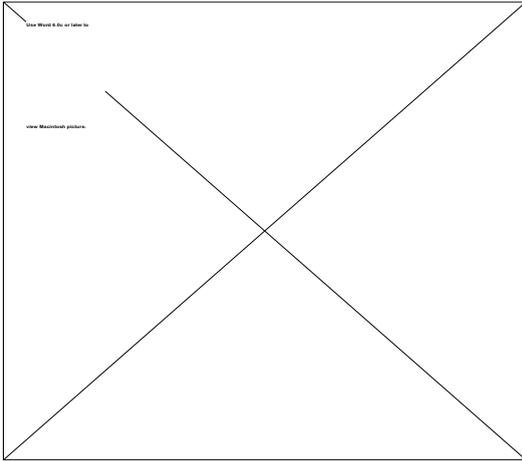
$|n, \alpha \rangle = n$ Photonen im Feld, Atom im Grundzustand

$|n-1, \beta \rangle = n-1$ Photonen im Feld, Atom im angeregten Zustand.

Die Differenz der Energie dieser Zustände beträgt

$$(E_1 - E_2) / \hbar = (n+1/2)\omega_L - \omega_0/2 - [(n-1/2)\omega_L + \omega_0/2] = \omega_L - \omega_0,$$

d.h. die Energien sind identisch wenn die Laserfrequenz der Resonanzfrequenz entspricht. Sonst ist die Energiedifferenz gleich der Resonanzverstimmung.



Das System besteht aus einer unendlichen Reihe solcher Zustände, welche als "dressed states" bezeichnet werden: Das Atom ist mit einem Photon "bekleidet". Wenn der Laser mit dem atomaren Übergang resonant ist, so sind jeweils die beiden gekoppelten Zustände beinahe entartet. Die Entartung wird aufgehoben durch die Kopplung zwischen den Zuständen.

2.1.5 Dynamik

Wir gehen hier nicht auf die Berechnung der Dynamik ein, da sie sehr analog dem später zu behandelnden halbklassischen Fall entspricht. Wir diskutieren lediglich einen einfachen Fall, nämlich den, daß das Atom anfangs im angeregten Zustand ist und das Feld n Photonen enthält.

$$\Psi(0) = |\alpha, n\rangle .$$

Man sieht leicht, daß der Kopplungsoperator Übergänge zwischen diesem Zustand und dem Zustand $|\alpha, n-1\rangle$ induziert.

Man kann die Schrödingergleichung für dieses Zweiniveausystem leicht explizit lösen. Damit erhält man die Wahrscheinlichkeit, das Atom im angeregten Zustand zu finden. Als Funktion der Zeit findet man

$$|\langle \Psi(t) | \alpha, n-1 \rangle|^2 = 1/2 (1 + \cos(2 \omega_1 \sqrt{n} t)).$$

Dieses Resultat beschreibt den oszillatorischen Austausch eines Energiequants zwischen dem Atom und dem Feld. Dieses Verhalten entspricht der quantenmechanischen Version der Rabi-Oszillationen, die wir bei der halbklassischen Beschreibung kennenlernen werden. Auf dieser Stufe ist die quan-

Z: Oszillation

tenmechanische Beschreibung somit praktisch äquivalent zur halbklassischen Beschreibung.

Dies ändert sich wenn wir berücksichtigen, daß das Feld sich nicht in einem Zustand mit bestimmter Photonenzahl befindet. Das eigentliche Resultat hängt also davon ab, in welchem Zustand sich das Feld befindet.

Z: Zahlzustände

Für jede mögliche Photonenzahl erhält man eine Oszillation, deren Frequenz proportional zur Wurzel aus der Photonenzahl ist,

Z: Überlagerung

$$\omega_1 \sqrt{n}$$

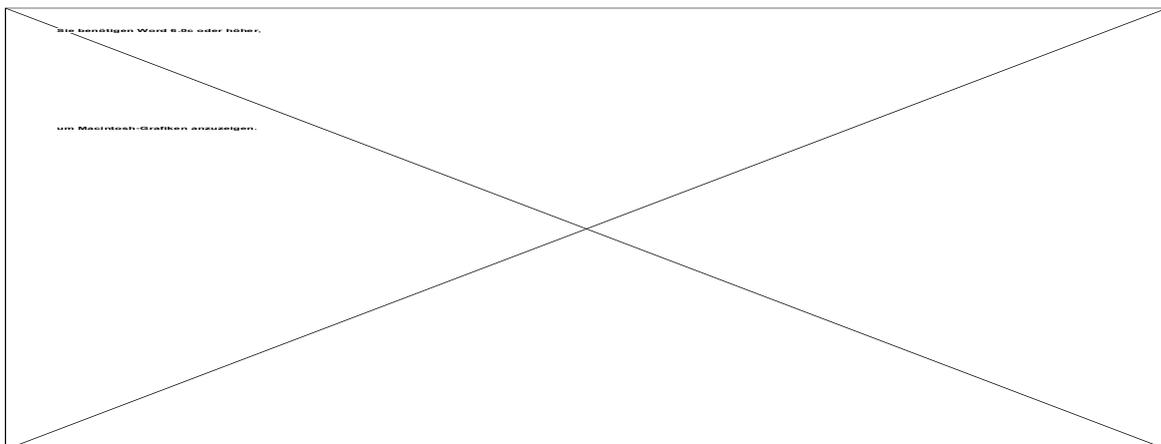
und deren Amplitude durch die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten dieser Photonenzahl gegeben ist. Bei einer Überlagerung von zwei Zahlzuständen erhalten wir also ein Schwebungssignal, das der Differenz der beiden Kopplungsstärken entspricht.

2.1.6 Kollaps

Für eine klassische Lichtquelle ist das Feld in einem thermischen Zustand. In diesem Fall klingt die Oszillation rasch ab und die Wahrscheinlichkeit, das Atom im angeregten Zustand zu finden wird $1/2$, d.h. das Photon ist zwischen dem Atom und der Mode mit gleicher Wahrscheinlichkeit verteilt. Im freien Raum findet diese „Teilung“ zwischen dem Atom und einer unendlichen Zahl von Moden statt, so daß die Wahrscheinlichkeit, daß es sich auf dem Atom befindet, verschwindet.

F: Thermischer Zustand

Kehren wir zum Fall einer einzelnen Mode zurück und betrachten den Fall eines kohärenten Zustandes, was der Wechselwirkung mit einem Laserstrahl entspricht.



Figur 2.6: Cummings Kollaps und „Revival“ für einen kohärenten Zustand mit einer mittleren Photonenzahl $n=10$. Die linke Seite stellt die Besetzungswahrscheinlichkeit der

einzelnen Feldzustände dar, die rechte Seite die Wahrscheinlichkeit, das Atom im angeregten Zustand zu finden als Funktion der Zeit.

Figur 2.6 illustriert diesen Fall. Für einen kohärenten Zustand besitzt die Feldstärke keinen scharfen Wert, sondern eine Verteilung, dessen Breite proportional zur Quadratwurzel aus der mittleren Photonenzahl ist. Ein Atom, welches mit einem solchen Feld in Wechselwirkung tritt, erfährt eine zeitliche Entwicklung, die sich qualitativ von der oszillatorischen Entwicklung unterscheidet, die wir für den Fall eines Zahlzustandes erhielten. In diesem Fall erhält man eine Superposition aller möglichen Frequenzen, welche jeweils proportional zur Quadratwurzel aus der Photonenzahl sind. Diese Frequenzen sind auf der linken Seite von Figur 2.6 dargestellt, jeweils mit der entsprechenden Amplitude, d.h. der Wahrscheinlichkeit ihres Auftretens in der Verteilung des kohärenten Zustandes. Die rechte Seite von Figur 2.6. zeigt dies zeitliche Entwicklung, dies sich aus der Überlagerung dieser Oszillationen ergibt. Aufgrund der Verteilung der Frequenzen ergibt sich eine Dämpfung der Oszillation, wobei die Zerfallszeit indirekt proportional zur Breite der Verteilung der Rabi-Frequenzen ist. Danach erreicht das System einen zeitunabhängigen Zustand, in dem die Hälfte der Atome sich im Grundzustand und die andere Hälfte im angeregten Zustand befindetet.

Die Verteilung der Rabi-Frequenzen ist aber nicht kontinuierlich, sondern diskret. Da nur eine endliche Zahl von Frequenzen zum Signal beiträgt kann es sich nicht um einen wirklich zeitunabhängigen Zustand handeln. Die Diskretisierung der Zustände führt deshalb zu einem Wiederaufleben der Oszillationen. Die Zeit bis zum Erscheinen dieses „Echos“ ist indirekt proportional zum Abstand zwischen den Rabi-Frequenzen [Rempe, 1987 #1758]. Der Zerfall und das Wiederaufleben dieser Oszillationen sind in der Literatur als „Cumming's Kollaps“ und „revival“ bekannt. Sie stellen einen wesentlichen Unterschied zwischen den klassischen Voraussagen für die zeitliche Entwicklung und den quantenmechanischen Voraussagen dar und konnten vor wenigen Jahren erstmals beobachtet werden, und zwar in einem Mikrowellenresonator extrem hoher Güte ($Q \sim 10^{10}$) (G. Rempe, H. Walther, and N. Klein, 'Observation of Quantum Collapse and Revival in a One-Atom Maser', Phys. Rev. Lett. 58, 353-356 (1987)).

2.2 Halbklassische Beschreibung: Das Modell

Literatur:

R.G. Brewer, *Coherent optical spectroscopy*, in *Frontiers of Laser Spectroscopy*, Editor: R. Balian, S. Haroche, and S. Liberman, North Holland (1977).

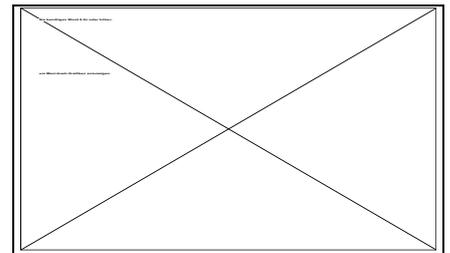
L. Allen and J.H. Eberly, 'Optical resonance and two-level atoms', Dover Publications, Mineola, NY (1987).

Dieter Suter, 'The Physics of Laser-Atom Interaction', Chapter 2.

2.2.1 Übersicht

Der Ausgangspunkt für die halbklassische Beschreibung ist ein Zweiniveaumodell für das atomare System, wobei die beiden Zustände durch einen Dipol-erlaubten Übergang verbunden sind. Dieses quantenmechanische Zweiniveausystem wird von einer klassischen elektromagnetischen Welle getrieben.

Das halbklassische Modell gleicht dem klassischen weitgehend: In beiden Fällen treibt die elektromagnetische Welle einen schwingungsfähigen Dipol. Dieser ist selbst die Quelle einer elektromagnetischen Welle, welche mit der eingestrahnten Welle weiter läuft und sich ihr überlagert. Die in-, resp. außer Phase Komponente dieser Welle führt zu Absorption, resp. Dispersion. Wie im quantenmechanischen Fall schreiben wir für die Zustände des Atoms $|g\rangle$ (Grundzustand) und $|e\rangle$ (angeregter Zustand). Die beiden Zustände sind über einen elektrischen Dipol-Übergang verbunden.



Dies ist offenbar nicht das, was man durch eine direkte Quantisierung des klassischen Mo-

Z: harmonischer. Oszillator

dells erhalten würde: dort hatten wir das Atom als harmonischen Oszillator beschrieben. Dieser müsste quantenmechanisch durch ein nach oben offenes System von äquidistanten Zuständen beschrieben werden. Wir erwarten somit bereits an dieser Stelle, daß das quantenmechanische System sich anders verhalten wird als das klassische.

Wir nehmen an, daß der Übergang elektrisch-Dipol erlaubt ist. Die beiden Zustände haben dann unterschiedliche Parität. Wie im Jaynes-Cummings Modell diskutiert hat der Dipoloperator \hat{d} die Matrixelemente

$$\langle e|\hat{d}|g\rangle = \mu_E \quad \langle g|\hat{d}|e\rangle = \mu_E \quad \langle e|\hat{d}|e\rangle = \langle g|\hat{d}|g\rangle = 0 \quad ,$$

wobei μ_E das reelle Matrixelement des Dipoloperators darstellt.

Ein quantenmechanisches System, das durch zwei Zustände aufgespalten wird,

$$\Psi = c_1 |g\rangle + c_2 |e\rangle$$

kann mit zwei komplexen oder vier reellen Parametern vollständig beschrieben werden. Diese stellen Real- und Imaginärteil der beiden Koeffizienten dar. Das System besitzt in diesem Sinn vier Freiheitsgrade. Da die Phase eines quantenmechanischen Zustandes aber keine physikalische Bedeutung besitzt, können wir aber einen Freiheitsgrad eliminieren; es bleiben dann drei physikalisch relevante Freiheitsgrade.

2.2.2 Basisoperatoren

Das gleiche können wir sofort für den Raum der Operatoren, die auf dieses System wirken, sagen: Die Operatoren können als 2x2 Matrizen dargestellt werden. Wenn wir uns auf hermitesche (selbstadjungierte) Operatoren beschränken, müssen die beiden Diagonalelemente reell sein. Die Realteile der Außerdiagonalelemente müssen gleich sein, die Imaginärteile entgegengesetzt. Somit werden auch die Operatoren durch vier reelle Parameter eindeutig beschrieben.

$$\begin{pmatrix} a & c + id \\ c - id & b \end{pmatrix}$$

Es ist nützlich, für die Beschreibung der Operatoren eine Basis aus Operatoren zu wählen. Alle ändern können dann als Linearkombination dieser Basisoperatoren dargestellt werden. Dafür kommen beliebige vier linear unabhängige Operatoren in Betracht. Eine besonders nützliche Basis besteht aus der Einheitsmatrix, sowie aus den drei Operatoren



Die Matrixelemente sind somit

$$\begin{array}{lll} \langle g|S_x|g\rangle = 0 & \langle g|S_x|e\rangle = 1/2 & \langle e|S_x|e\rangle = 0 \\ \langle g|S_y|g\rangle = 0 & \langle g|S_y|e\rangle = -i/2 & \langle e|S_y|e\rangle = 0 \\ \langle g|S_z|g\rangle = 1/2 & \langle g|S_z|e\rangle = 0 & \langle e|S_z|e\rangle = -1/2 \end{array}$$

Es handelt sich somit jeweils um die Pauli-Matrizen, multipliziert mit 1/2.

Wie man leicht feststellen kann erfüllen diese Operatoren die Vertauschungsrelationen

$$[S_x, S_y] = i S_z \quad \text{und zyklische Permutationen ,}$$

welche aus der quantenmechanischen Theorie des Drehimpulses bekannt sind. Diese drei Operatoren können u.a. die drei kartesischen Komponenten eines Spins 1/2 darstellen.

Wenn wir den elektrischen Dipoloperator für dieses System in dieser Basis schreiben erhalten wir

$$\hat{\mu} = 2 \mu_E S_x .$$

2.2.3 Hamiltonoperator

Da wir ein einzelnes Atom betrachten, von dem wir annehmen, daß es im Raum in Ruhe sei, und weil die Wellenlänge λ des Laserfeldes groß ist gegenüber der Ausdehnung des Atoms, können wir die räumlichen Koordinaten vernachlässigen und annehmen, das Feld sei (über den Bereich des Atoms) homogen. Unser Modell reduziert sich damit auf ein oszillierendes elektrisches Feld

Z: Atom, Welle

$$E = 1/2 \{E_0 e^{i\omega_L t} + c.c.\}$$

mit der Frequenz ω_L und Amplitude E_0 .

Die elektrische Dipolwechselwirkung kann dann geschrieben werden als

$$\mathcal{H}_{\text{ww}} = - 2 \omega_x \cos(\omega_L t) S_x ,$$

mit der Kopplungskonstante

$$\omega_x = E_0 \mu_E .$$

Wir schreiben für die Anregungsenergie vom Grund- zum angeregten Zustand ω_0 (mit $\hbar=1$). In dieser Form des Hamiltonoperators, wie auch in allen folgenden Rechnungen schreiben wir Energieeinheiten in der Form von Frequenzen. Damit erhalten wir eine direkte Beziehung zu den entsprechenden Experimenten, wo Energiedifferenzen immer als Frequenzen erscheinen. In der hier benutzten Form des Hamiltonoperators ist der Ursprung der Energieachse in der Mitte zwischen den beiden Zuständen. Diese Wahl des Ursprungs ist geeignet, die Symmetrie des Systems deutlich zu machen.

Z: Energie

Der gesamte Hamiltonoperator wird somit

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{atom}} + \mathcal{H}_{\text{ww}} = - \omega_0 S_z - 2 \omega_x \cos(\omega_L t) S_x .$$

Im Hamiltonoperator erscheint das elektrische Feld nicht als Vektor, sondern als ein Skalar. Dies ist ein inhärentes Problem des Zweiniveausystems, das nur gelöst werden kann indem man das Zweiniveaumodell aufgibt und eine vollständigere atomare Struktur mit einer größeren Zahl von Zuständen berücksichtigt.

2.3 Der Dichteoperator

2.3.1 Beschreibung eines Ensembles

In vielen Experimenten, die in diesem Zusammenhang interessieren, besteht das physikalische System aus einem Ensemble von Atomen, welches nicht mit Hilfe einer Wellenfunktion oder Zustandsfunktion beschrieben werden kann.

Als einfaches Beispiel betrachten wir drei Atome, von denen sich zwei im Grundzustand und eines im angeregten Zustand befinden.

Z: Ensemble

Frage: welche Wellenfunktion beschreibt diesen Zustand?

Man könnte versucht sein, diesen Zustand mit der Funktion

$$\Psi = 1/\sqrt{5}(2|g\rangle + |e\rangle)$$

zu schreiben.

Um zu überprüfen, ob dies sinnvoll ist, berechnen wir das elektrische Dipolmoment dieses Zustandes:

$$\langle d \rangle = \langle \Psi | \hat{d} | \Psi \rangle = \mu_e / 5 ((2,1) (0, 1, 1, 0) (2,1)) = \mu_e / 5 ((2,1) (1,2)) = 4\mu_e / 5 .$$

Man würde also voraussagen, daß ein Dipolmoment in Richtung der x-Achse vorliegen würde. Die entspricht nicht der Beobachtung und zeigt, daß unsere Beschreibung des Zustandes mit obiger Funktion falsch ist. Korrekterweise müsste man für jedes einzelne Atom das Dipolmoment ausrechnen und die Resultate addieren.

$$\begin{aligned} \langle d \rangle &= \sum_i \langle d_i \rangle = \mu_e [2((1,0) (0, 1, 1, 0) (1,0)) + ((0,1) (0, 1, 1, 0) (0,1))] \\ &= \mu_e [2((1,0) (0,1)) + ((0,1) (1,0))] = 0 . \end{aligned}$$

Der Schrödinger-Formalismus der Quantenmechanik erlaubt es nicht, direkt Ensembles von gleichartigen Quantensystemen zu behandeln.

Die meisten Experimente werden aber an Ensembles von näherungsweise identischen Systemen durchgeführt. Wenn wir z.B. die Absorption eines Laserstrahls in einem atomaren Gas messen, so stellt die absorbierte Leistung eine Summe über die Beiträge einer ganzen Reihe von Zweiniveausystemen dar. Wenn man dieses System durch eine Zustandsfunktion beschreibt, so ist dies nur dann korrekt, wenn

Z: Laserexperiment

- * alle Atome im gleichen Zustand sind
- * alle Atome die gleichen äußeren Felder spüren

- * keine Wechselwirkungen zwischen den Atomen existieren.

2.3.2 Definition des Dichteoperators

Für die Beschreibung eines solchen Ensembles benötigt man statt dessen den sogenannten Dichteoperator. Er kann am besten definiert werden mit Hilfe der bra-ket Schreibweise

$$\rho = 1/N \sum_{i=1, N} |\psi\rangle\langle\psi| .$$

(U. Fano, 'Description of states in quantum mechanics by density matrix and operator techniques', Rev. Mod. Phys. 29, 74-93 (1957).).

Für ein einzelnes Atom im Zustand

$$\Psi = a|g\rangle + b|e\rangle$$

wird der Dichteoperator

$$\rho = (a|g\rangle + b|e\rangle)(a^*\langle g| + b^*\langle e|) .$$

Die Matrixelemente sind

$$\langle g|\rho|g\rangle = \langle g|(a|g\rangle + b|e\rangle)(a^*\langle g| + b^*\langle e|)|g\rangle = (a\langle g|g\rangle + b\langle g|e\rangle)(a^*\langle g|g\rangle + b^*\langle e|g\rangle) = |a|^2,$$

wobei wir die Orthonormalität der Zustände benutzt haben. Analog erhalten wir

$$\langle e|\rho|e\rangle = \dots = |b|^2$$

$$\langle g|\rho|e\rangle = \langle g|(a|g\rangle + b|e\rangle)(a^*\langle g| + b^*\langle e|)|e\rangle = ab^*$$

$$\langle e|\rho|g\rangle = a^*b .$$

oder in Matrixschreibweise

$$\rho = \begin{pmatrix} |a|^2 & ab^* \\ ba^* & |b|^2 \end{pmatrix}$$

Ein einzelnes Atom im Grundzustand wird demnach durch den Dichteoperator

$$\rho_g = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$$

beschrieben, und eines im angeregten Zustand durch

$$\rho_e = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Für ein Einzelsystem besteht somit eine 1-1 Beziehung zwischen der Zustandsfunktion und dem Dichteoperator.

Der wichtigste Unterschied zwischen dem Dichteoperator und einer Zustandsfunktion besteht darin, daß der Dichteoperator eines Ensembles einfach durch die Summe der Dichteoperatoren der einzelnen Teilsysteme gegeben ist. Wie wir für das einfache Beispiel von 3 Atomen gesehen hatten, ist das bei der Zustandsfunktion nicht der Fall.

Für das aus drei Atomen bestehende Ensemble in unserem Beispiel wird der Dichteoperator

$$\rho = 1/3 \sum_{i=1,3} \rho_i = 1/3 \left(\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \right) = 1/3 \begin{pmatrix} 2 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Die Diagonalelemente stellen direkt die Populationen der entsprechenden Zustände dar. Für das vorliegende Ensemble finden wir somit 2/3 der Atome im Grundzustand, 1/3 im angeregten Zustand.

Der Dichteoperator des Systems beschreibt ein gemittelt Atom. Man kann ihn verwenden um die Zeitabhängigkeit der Mittelwerte zu berechnen. Das bringt den großen Vorteil, daß wir für die Berechnung der Zeitentwicklung des Systems nicht zuerst die Zeitentwicklung jedes einzelnen Atoms berechnen müssen, sondern direkt die Zeitentwicklung des Mittelwertes berechnen können. Voraussetzung dafür ist allerdings daß die verschiedenen Atome gut voneinander isoliert sind und die gleiche Umgebung sehen. Die wichtigsten Abweichungen sind Relaxationseffekte und Inhomogenitäten.

Relaxation kommt durch die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Teilsystemen zustande, sowie durch die Wechselwirkung mit der Umgebung. Diese geschieht vor allem über elektromagnetische Felder und/oder über die translatorischen Freiheitsgrade.

Z: Relaxation / Wechselwirkung

Die wichtigsten inhomogenen Effekte sind die Dopplerverbreiterung aufgrund der thermischen Geschwindigkeit der Atome.

Z: Inhomogenitäten

2.3.3 Darstellung von Zuständen

Wie jeder quantenmechanische Operator kann auch der Dichteoperator in einem geeigneten Satz von Basisoperatoren aufgespannt werden. Für das Zweiniveausystem besteht ein besonders geeigneter Satz von Basisoperatoren aus den Drehimpulsoperatoren

S_x , S_y und S_z , die oben definiert wurden. Wir schreiben die Entwicklungskoeffizienten als s_x , s_y , and s_z , so daß der Dichteoperator folgende Form erhält

$$\rho' = a \mathbf{1} + s_x S_x + s_y S_y + s_z S_z .$$

Die Diagonalelemente des Dichteoperators stellen Populationswahrscheinlichkeiten dar, z.B. ρ_{11} die Wahrscheinlichkeit, daß sich das Atom im Grundzustand befindet. Die Summe der Diagonalelemente muß deshalb immer gleich 1 sein,

$$\sum_i \rho_{ii} = \text{Sp}\{\rho\} = \sum_i p_i = 1 ,$$

da sich jedes System in irgendeinem Zustand befinden muß. Damit wird der Koeffizient a bestimmt als $1/2$ und der Dichteoperator wird

$$\rho' = 1/2 \mathbf{1} + s_x S_x + s_y S_y + s_z S_z .$$

Z: Matrixform

Der Einheitsoperator $\mathbf{1}$ ist zeitunabhängig und trägt zu keiner beobachtbaren Größe bei; Im Sinne einer Abkürzung ist es deshalb häufig einfacher, diesen Teil des Dichteoperators herauszulösen und den reduzierten Dichteoperator

$$\rho = s_x S_x + s_y S_y + s_z S_z ,$$

zu betrachten, dessen Spur verschwindet.

Als Beispiel betrachten wir unser Standard-Ensemble:

$$\rho = \begin{pmatrix} 2/3 & 0 \\ 0 & 1/3 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} 1/2 & 0 \\ 0 & 1/2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1/6 & 0 \\ 0 & -1/6 \end{pmatrix}$$

Die Diagonalelemente können somit kleiner, gleich oder größer als Null sein. Sie stellen somit nicht Populationen dar. In Experimenten misst man aber meist nicht Populationen, sondern Populationsdifferenzen, und diese sind die gleichen bei ρ und ρ' .

Die Entwicklungskoeffizienten s_x , s_y , und s_z sind die Komponenten eines Spinvektors. Wenn wir ein Spin-1/2 System betrachten, so entspricht dies genau den 3 kartesischen Komponenten des Drehimpulsvektors.

2.3.4 Rechenregeln für den Dichteoperator

Ausgehend von der Schrödingergleichung

$$\mathbf{H}\Psi = -i \hbar \dot{\Psi},$$

welche bekanntlich die Lösung

$$\Psi(t) = \Psi(0) e^{-i\mathcal{H}t}$$

hat, finden wir die Bewegungsgleichung für den Dichteoperator als

$$\dot{\rho} = \text{Error!} |\Psi\rangle\langle\Psi| = -i\mathcal{H}|\Psi\rangle\langle\Psi| + |\Psi\rangle\langle -i\mathcal{H}\Psi| = -i\mathcal{H}|\Psi\rangle\langle\Psi| + |\Psi\rangle\langle\Psi| i\mathcal{H} = -i [\mathcal{H}, \rho].$$

Diese Gleichung ist auch als Liouville-Schrödinger Gleichung bekannt.

Die Lösung finden wir durch einsetzen der Lösung der Schrödingergleichung:

$$\rho(t) = |\Psi(t)\rangle\langle\Psi(t)| = e^{-i\mathcal{H}t} |\Psi(0)\rangle\langle\Psi(0)| e^{i\mathcal{H}t} = e^{-i\mathcal{H}t} \rho(0) e^{i\mathcal{H}t}.$$

Der Erwartungswert einer Observablen A für den Zustand, welcher durch den Dichteoperator ρ beschrieben wird, kann ebenfalls aus der Definition des Dichteoperators hergeleitet werden. Man findet

$$\langle A \rangle = \text{Sp}\{\rho A\} = \text{Sp}\{A\rho\}.$$

Für die Berechnung von Erwartungswerten ist es wichtig, dass die Spur eines Operators unter zyklischen Vertauschungen invariant bleibt,

$$\text{Sp}\{ABC\} = \text{Sp}\{BCA\} = \text{Sp}\{CAB\}.$$

Daraus folgt zum Beispiel

$$\text{Sp}\{\rho(t) A\} = \text{Sp}\{e^{-i\mathcal{H}t} \rho(0) e^{i\mathcal{H}t} A\} = \text{Sp}\{\rho(0) e^{i\mathcal{H}t} A e^{-i\mathcal{H}t}\} = \text{Sp}\{\rho(0) A(t)\}.$$

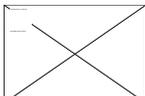
Diese Umformung entspricht dem Übergang vom Schrödingerbild zum Heisenbergbild: Im Schrödingerbild ist der Zustand zeitabhängig, während die Observable invariant ist, im Heisenbergbild entwickelt sich die Observable. Für diese läuft die Zeitentwicklung umgekehrt als für den Dichteoperator.

2.3.5 Beispiele

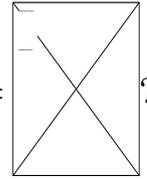
1) Erwartungswert des Dipolmomentes für das 3-Atom Ensemble.

$$\text{Lösung: } \langle d \rangle = \text{Sp}\{\hat{d}\rho\} = \mu_e \text{Sp}\left\{\begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 2/3 & 0 \\ 0 & 1/3 \end{pmatrix}\right\} = \mu_e \text{Sp}\left\{\begin{pmatrix} 0 & 1/3 \\ 2/3 & 0 \end{pmatrix}\right\} = 0$$

2) Gegeben sein ein Zustand $|\Psi\rangle = \text{Error!}$. Schreiben Sie den entsprechenden Dichteoperator.

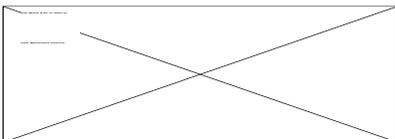
Lösung: $\rho =$ 

3) Welche Wellenfunktion entspricht dem Dichteoperator $\rho =$

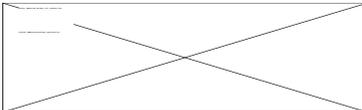


Lösung: keine !!

4) Berechnen Sie die Zeitentwicklung des Dichteoperators in der Eigenbasis des Hamiltonoperators.

Lösung: $\rho(t) =$  .

5) Überprüfen Sie damit die Schrödingergleichung.

Lösung: **Error!** $\rho(t) =$ 

$-i[\mathcal{H}, \rho(t)] =$  .

2.3.6 Pseudospin

Die Bewegungsgleichungen eines solchen Zweiniveausystems wurden erstmals von Felix Bloch genau diskutiert (F. Bloch, 'Nuclear induction', Phys. Rev. 70, 460-485 (1946).), und zwar für die Beschreibung der magnetischen Resonanz. Die Zweiniveausysteme waren in diesem Zusammenhang Spin-1/2 Systeme. Die resultierenden Bewegungsgleichungen sind deshalb als Blochgleichungen bekannt. Etwa 10 Jahre später zeigten Feynman, Vernon und Helwarth (FVH) daß jedes Zweiniveausystem den gleichen Bewegungsgleichungen gehorcht und deshalb mit Hilfe der Blochgleichungen diskutiert werden kann (R.P. Feynman, F.L. Vernon, and R.W. Helwarth, 'Geometrical representation of the Schrödinger equation for solving maser problems', J. Appl. Phys. 28, 49-52 (1957)). Aufgrund dieser Analogie bezeichnet man allgemein Zweiniveausysteme gerne als Pseudo-Spin 1/2 Systeme und diskutiert die Bewegungsgleichungen indem man Teile des Systems als Spin-Komponenten bezeichnet und die Wechselwirkung mit äusseren Feldern auf magnetische Wechselwirkungen zurückführt.

In diesem Bild entspricht der Grundzustand des Systems z.B. dem +1/2 Zustand des Pseudo-Spins, während der angeregte Zustand dem -1/2 Zustand entspricht. Die Energiedifferenz zwischen Grund- und angeregtem Zustand entspricht der Zeeman-Aufspaltung. Die z-Komponente des Pseudospins beschreibt die Populationsdifferenz zwischen den beiden Zuständen. Im Fall des optischen Zweiniveausystems beschreiben die x- und y-Komponenten die quantenmechanische Kohärenz zwischen den beiden Zuständen,

welche physikalisch ein oszillierendes elektrisches Dipolmoment beschreibt. Dieser Pseudospin ist außerordentlich hilfreich für die Visualisierung der zeitlichen Entwicklung des Systems, welche exakt auf die Bewegung eines Drehimpulses zurückgeführt werden kann, der an ein magnetisches Moment gekoppelt ist.

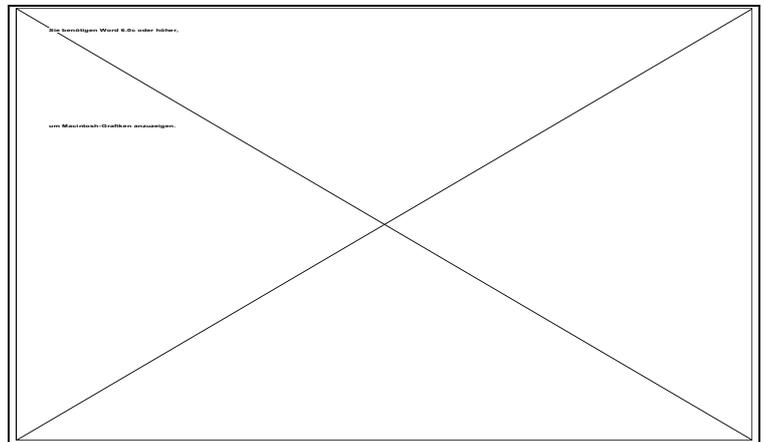
Die Gleichungen werden deshalb als optische Blochgleichungen bezeichnet.

Handelt es sich um einen optischen Übergang, so gibt es keine solche Beziehung, aber, wie FVH gezeigt haben, können wir sie als die Komponenten eines Pseudo-Spins betrachten, welcher die Entwicklung des Systems beschreibt. Seine z-Komponente beschreibt die Populationsdifferenz: Für $s_z = 1$ sind alle Atome im Grundzustand $|g\rangle$, und die Energie des Systems erreicht ein Minimum,

Z: Pseudospin-Analogie

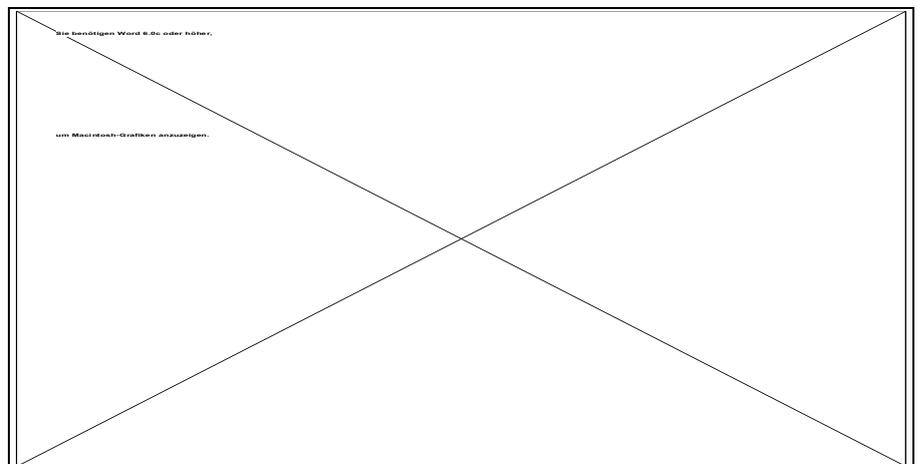
$$\text{Sp}\{\mathcal{H}\rho\} = -\omega_0/2.$$

Die Figur illustriert die Orientierung des Pseudospins $\hat{\sigma}$ und zeigt die entsprechende Wellenfunktion und den Dichteoperator, der diesen Zustand beschreibt. Da wir den Teil eliminiert haben, der proportional zum Einheitsoperator ist, wird der Dichteoperator spurfrei.



Die transversalen Komponenten des Pseudo-Spins $\hat{\sigma}$ bezeichnen das optische Dipolmoment des Atoms und entsprechen dem quantenmechanischen Analogon der oszillierenden Dipolmomente der Lorentz-Lorenz Theorie. Wie in der Figur gezeigt bezeichnen sie eine kohärente Superposition der beiden Zustände.

Die Orientierung des Pseudospins in der transversalen Ebene bezeichnet die Phase des oszillierenden Dipolmomentes, in direkter Analogie zur komplexen Notation für die Beschreibung des elektrischen Feldes.



2.3.7 Der Hamiltonoperator des Pseudospins

Wir benutzen die FVH-Analogie, um diesen Hamiltonoperator

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{atom}} + \mathcal{H}_{\text{ww}} = -\omega_0 S_z - 2\omega_x \cos(\omega_L t) S_x .$$

auf denjenigen eines Spin-1/2 Systems in einem Magnetfeld zurückzuführen. Die elektronische Anregungsenergie

$$\omega_0 = \mu_z B_z$$

entspricht der Zeeman Energie $\mu_z B_z$ aufgrund der Aufspaltung der Spinzustände in einem starken Magnetfeld, welches parallel zur z-Achse orientiert ist.

Die Kopplung an das oszillierende Laserfeld ist äquivalent zur Wechselwirkung eines Spins 1/2 mit einem oszillierenden Magnetfeld parallel zur x-Achse, wobei die Kopplungsstärke

Z / F : NMR

$$\omega_x = 1/2 \mu_x B_x$$

beträgt und B_x die Amplitude des magnetischen Wechselfeldes beträgt.

2.4 Bewegungsgleichung

2.4.1 Blochgleichung im Laborsystem

Die Bewegungsgleichung für den Dichteoperator lautet

$$\dot{\rho}(t) = -i[\mathcal{H}(t), \rho(t)]$$

Für diese Bewegungsgleichung existiert keine geschlossene Lösung wenn der Hamiltonoperator zeitabhängig ist. Eine solche Lösung würde in der Angabe der Zeitabhängigkeit aller vier Matrixelemente des Dichteoperators bestehen. Für die formale Beschreibung ist es aber nützlicher, nicht die eigentlichen Matrixelemente ρ_{ij} zu betrachten, sondern den Dichteoperator in einer Basis von Operatoren zu entwickeln.

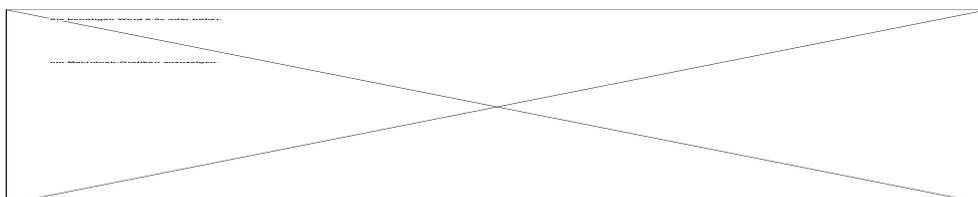
Meistens benutzt man dafür die Basis der Spinoperatoren. Die Basis selbst bleibt zeitunabhängig, während die Entwicklungskoeffizienten als zeitabhängig betrachtet werden:

$$\rho(t) = s_x(t) S_x + s_y(t) S_y + s_z(t) S_z .$$

Diese Entwicklung erlaubt uns, die Schrödingergleichung in ein lineares System von gewöhnlichen Differentialgleichungen umzuformen, dessen Variablen die Entwicklungskoeffizienten des Dichteoperators sind:

$$\begin{aligned} \dot{\rho} &= \dot{s}_x(t) S_x + \dot{s}_y(t) S_y + \dot{s}_z(t) S_z = \\ &= -i[\mathcal{H}, \rho(t)] = -i[-\omega_0 S_z - 2 \omega_x \cos(\omega_L t) S_x, s_x(t) S_x + s_y(t) S_y + s_z(t) S_z] . \\ &= -i\{-\omega_0 (s_x(t) [S_z, S_x] + s_y(t) [S_z, S_y] + s_z(t) [S_z, S_z]) \\ &\quad - 2 \omega_x \cos(\omega_L t) (s_x(t) [S_x, S_x] + s_y(t) [S_x, S_y] + s_z(t) [S_x, S_z])\} . \\ &= -i\{-\omega_0 i (s_x(t) S_y - s_y(t) S_x) - 2 \omega_x \cos(\omega_L t) i (s_y(t) S_z - s_z(t) S_y)\} . \\ &= \{-\omega_0 (s_x(t) S_y - s_y(t) S_x) - 2 \omega_x \cos(\omega_L t) (s_y(t) S_z - s_z(t) S_y)\} . \end{aligned}$$

Für die Entwicklungskoeffizienten erhalten wir damit eine Bewegungsgleichung, die in Matrixschreibweise folgende Form hat:



Diese Gleichung ist identisch mit der klassischen Bewegungsgleichung für einen Drehimpuls. Die drei Entwicklungskoeffizienten sind die Komponenten eines Drehimpulsvektors im dreidimensionalen Raum. Die Kraft, welche dessen zeitliche Entwicklung bestimmt, entspricht somit einem Drehmoment. Die statische Komponente ω_0 wirkt entlang der z-Achse und die zeitabhängige ($2 \omega_x \cos(\omega_L t)$) entlang der x-Achse. Die beiden Komponenten haben üblicherweise eine sehr unterschiedliche Größenordnung. Die Stärke der statischen Komponente beträgt in der Optik etwa 10^{14} - 10^{15} Hz, die der oszillierenden ist üblicherweise kleiner als 10^9 Hz. In der Kernspinresonanz liegt die statische bei etwa 10^8 Hz, die oszillierende ist $< 10^5$ Hz.

2.4.2 Freie Präzession

Die einzige triviale Lösung finden wir für den Fall verschwindender Kopplung,

$$\omega_x = 0 \quad ,$$

d.h. für freie Atome. In diesem Fall ist die z-Komponente zeitunabhängig

$$s_z(t) = s_z(0) \quad ,$$

wie wir bereits bei der allgemeinen Diskussion der Zeitentwicklung gesehen hatten: die Diagonalelemente des Dichteoperators sind zeitunabhängig.

Es bleiben die beiden transversalen Komponenten, welche durch ω_0 aneinander gekoppelt sind:

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} s_x \\ s_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \omega_0 \\ -\omega_0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} s_x \\ s_y \end{pmatrix} .$$

Die Kopplungsmatrix entspricht offenbar einer Drehmatrix. Die Lösung wird damit

$$s_x(t) = s_x(0) \cos(\omega_0 t) + s_y(0) \sin(\omega_0 t)$$

$$s_y(t) = s_y(0) \cos(\omega_0 t) - s_x(0) \sin(\omega_0 t) \quad .$$

Wenn wir dieses Resultat mit dem Resultat für die z-Komponente kombinieren, finden wir, daß der Pseudospin um die z-Achse präzediert, d.h. um das virtuelle Magnetfeld.

Für die optische Polarisation des Systems,

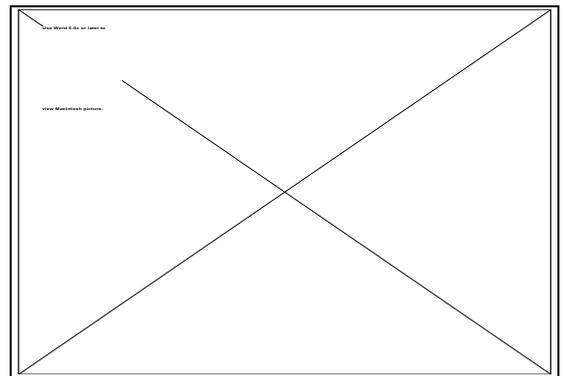
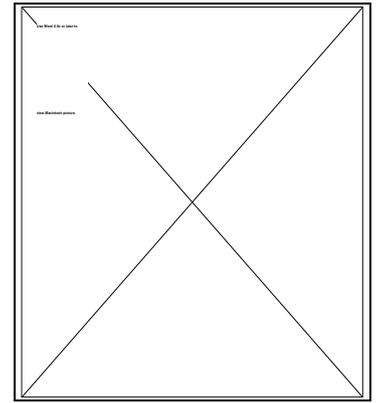
$$2 \mu_E \text{Sp}\{\rho(t) S_x\} = \mu_E s_x(t) = \\ = \mu_E (s_x(0) \cos(\omega_0 t) + s_y(0) \sin(\omega_0 t)),$$

entspricht diese Präzession einer Oszillation mit der Frequenz ω_0 , wie in der rechten Hälfte der Figur dargestellt. Diese Oszillation ist das quantenmechanische Analogon des oszillierenden Dipols der Lorentz-Lorenz Theorie.

2.4.3 Rotierendes Koordinatensystem

Die vorliegende Form der Bewegungsgleichung ist in zwei Beziehungen unbefriedigend: Im Fall verschwindender Kopplung finden wir eine Präzession des Pseudo-Spins mit der atomaren Resonanzfrequenz $\omega_0/2\pi$, welche im sichtbaren oder infraroten Teil des Spektrums von der Größenordnung von 10^{14} - 10^{15} Hz ist. Diese Präzessionsfrequenz ist nicht direkt beobachtbar. Hingegen maskiert sie langsamere Bewegungsprozesse, die eigentlich interessanter sind.

Das zweite Problem ist die Zeitabhängigkeit des Hamiltonoperators - dadurch erhält man keine analytische Lösung für die Bewegungsgleichung. Beide Probleme können eliminiert werden wenn wir eine Koordinatentransformation auf die Bewegungsgleichungen anwenden, so daß sie nicht mehr im Laborsystem geschrieben werden. Wir verwenden statt dessen ein System, das gegenüber dem Laborsystem um die z-Achse rotiert. Indem wir uns mit diesem System mitdrehen klammern wir die schnelle Bewegung des pseudo-Spins aus der Betrachtung aus. Die selbe Transformation eliminiert gleichzeitig die Zeitabhängigkeit des Hamiltonoperators und ermöglicht es damit, eine analytische Lösung der Bewegungsgleichungen zu finden. Mathematisch entspricht diese Koordinatentransformation einer unitären Transformation, welche wir unten im Detail diskutieren. Physikalisch erhält man diese Transformation über eine Rotation des Koordinatensystems um die z-Achse. Weil ein rotierendes Koordinatensystem kein Inertialsystem ist, erwarten wir, daß die Bewegungsgleichungen korrigiert werden müssen wenn wir sie im rotierenden Koordinatensystem schreiben. Dies geschieht durch die Einführung eines zusätzlichen Terms, ähnlich wie der Zentrifugalkraft, resp. der Corioliskraft.



Für die Herleitung der Bewegungsgleichungen im rotierenden Koordinatensystem suchen wir zunächst die mathematische Form der Transformation. Anstelle der üblichen Basis $|g\rangle, |e\rangle$ benutzen wir eine zeitabhängige Basis

$$|g^r\rangle = |g\rangle e^{i\omega_L t/2} \quad |e^r\rangle = |e\rangle e^{-i\omega_L t/2} .$$

In Vektorschreibweise entspricht dies einer Transformation

$$\begin{pmatrix} |g^r\rangle \\ |e^r\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e^{i\omega_L t/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\omega_L t/2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |g\rangle \\ |e\rangle \end{pmatrix} = U(t) \begin{pmatrix} |g\rangle \\ |e\rangle \end{pmatrix}$$

Wir können den Transformationsoperator U schreiben als

$$U(t) = e^{i\omega_L t S_z} ,$$

Tutorial: Funktion eines Operators

was einer Rotation um die z -Achse mit der Frequenz ω_L des Laserfeldes entspricht.

Diese Wechselwirkungsdarstellung wird deshalb als rotierendes Koordinatensystem bezeichnet. Zur Illustration berechnen wir die transversalen Komponenten $s_x(t), s_y(t)$ eines Zustandes

Beweis: Anfangszustand = (1,1)

$$\Psi(t) = \begin{pmatrix} e^{i\omega_L t/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\omega_L t/2} \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} |1\rangle \\ |1\rangle \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} |\cos(\omega_L t/2) + i \cdot \sin(\omega_L t/2)\rangle \\ |\cos(\omega_L t/2) - i \cdot \sin(\omega_L t/2)\rangle \end{pmatrix} .$$

Wir erhalten

$$s_x(t) = \cos^2(\omega_L t/2) - \sin^2(\omega_L t/2) = \cos(\omega_L t) .$$

$$s_y(t) = 2 \cos(\omega_L t/2) \sin(\omega_L t/2) = \sin(\omega_L t) ,$$

also tatsächlich einen Zustand, der in der xy -Ebene um die z -Achse rotiert.

2.4.4 Transformation von Zuständen

Ein quantenmechanischer Zustand

$$\Psi(t) = c_g |g\rangle + c_e |e\rangle = c_g |g^r\rangle e^{-i\omega_L t/2} + c_e |e^r\rangle e^{i\omega_L t/2}$$

besitzt die beiden Darstellungen

$$\Psi^{\text{lab}}(t) = \begin{pmatrix} c_g \\ c_e \end{pmatrix} \quad \Psi^r(t) = \begin{pmatrix} c_g e^{-i\omega_L t/2} \\ c_e e^{i\omega_L t/2} \end{pmatrix} = U^{-1} \Psi^{\text{lab}}(t)$$

Der obere Index bezeichnet die Basiszustände, welche für die entsprechende Darstellung verwendet wurden. Die Transformation der Zustandsfunktion ist deshalb das Inverse der Transformation der Basiszustände.

2.4.5 Transformation von Operatoren

Die Transformation der Zustandsfunktion impliziert für die Transformation des Dichteoperators

$$\rho^r = (|\Psi\rangle\langle\Psi|)^r = U^{-1}|\Psi\rangle\langle\Psi|U = U^{-1}\rho U .$$

Die gleichen Transformationseigenschaften müssen auch für alle Observablen gelten, da die Erwartungswerte unabhängig von der Basis sein müssen, in der sie berechnet werden :

$$\langle A \rangle = \text{Sp}\{\rho A\} = \text{Sp}\{\rho^r A^r\} .$$

Wir benutzen die Transformation für den Dichteoperator

$$\langle A \rangle = \text{Sp}\{\rho^r A^r\} = \text{Sp}\{U^{-1}\rho U A^r\} = \text{Sp}\{\rho U A^r U^{-1}\} ,$$

wobei im letzten Schritt die Invarianz der Spur unter zyklischen Vertauschungen verwendet wurde. Somit muß gelten

$$A = U A^r U^{-1} \quad \text{oder} \quad A^r = U^{-1} A U$$

Diese Beziehung gilt für alle Observablen. Lediglich der Hamiltonoperator ist eine Ausnahme, da er nicht nur eine Observable ist, sondern gleichzeitig der Erzeuger der Bewegung des Systems.

2.4.6 Transformation des Hamiltonoperators

Für die Herleitung der Bewegungsgleichung im rotierenden Koordinatensystem betrachten wir die zeitliche Ableitung des Zustandes



Wir benutzen die Schrödingergleichung im Laborsystem und schreiben den Zustand im rotierenden Koordinatensystem. Damit finden wir



Der Hamiltonoperator soll der Erzeuger der zeitlichen Entwicklung bleiben. Deshalb müssen wir fordern, daß seine Darstellung im rotierenden Koordinatensystem gegeben ist durch

$$\mathcal{H}^r = U^{-1} \mathcal{H}^{\text{lab}} U + i \dot{U}^{-1} U .$$

Dies ist die allgemeine Form der Transformation des Hamiltonoperators. Zusätzlich zur üblichen Transformation eines Operators

$$U^{-1} \mathcal{H}^{\text{lab}} U$$

erhalten wir einen Korrekturterm

$$i \dot{U}^{-1} U ,$$

welcher nicht verschwindet wenn der Transformationsoperator U zeitabhängig ist.

- Er berücksichtigt die Tatsache, daß das rotierende Koordinatensystem kein Inertialsystem darstellt und kann als eine Analogie zur Corioliskraft der klassischen Mechanik gesehen werden.
- Er hängt nicht vom Hamiltonoperator ab, sondern lediglich vom Transformationsoperator U .

2.4.7 Anwendung auf Blochgleichung

Wir wenden diese allgemeine Form auf den Hamiltonoperator an und finden

$$\mathcal{H}^r = U^{-1}(t) \mathcal{H}_{\text{atom}} U(t) + U^{-1}(t) \mathcal{H}_{\text{ww}} U(t) + i \dot{U}^{-1} U(t) .$$

Wegen $U \mathcal{H}_{\text{atom}} = \mathcal{H}_{\text{atom}} U$ ist der erste Term invariant unter der Transformation, d.h.

$$U^{-1}(t) \mathcal{H}_{\text{atom}} U(t) = \mathcal{H}_{\text{atom}} = - \omega_0 S_z .$$

Wegen

$$e^{-i\phi S_z} S_x e^{i\phi S_z} = S_x \cos\phi + S_y \sin\phi$$

gilt

$$\begin{aligned}
 U^{-1}(t) \mathcal{H}_{\text{WW}} U(t) &= -2 \omega_x \cos(\omega_L t) [S_x \cos(\omega_L t) + S_y \sin(\omega_L t)] \\
 &= -2 \omega_x [S_x \cos^2(\omega_L t) + S_y \cos(\omega_L t) \sin(\omega_L t)] = -\omega_x [S_x (1 + \cos(2\omega_L t)) + S_y \sin(2\omega_L t)] \\
 &= -\omega_x S_x - \omega_x (S_x \cos(2\omega_L t) + S_y \sin(2\omega_L t)) .
 \end{aligned}$$

Schliesslich ist

$$\square^{-1} U(t) = (d/dt e^{-i\omega_L t S_z}) e^{i\omega_L t S_z} = -i \omega_L S_z ,$$

so daß

$$\mathcal{H}^r = -\Delta\omega_0 S_z - \omega_x S_x - \omega_x S_x \cos(2\omega_L t) - \omega_x S_y \sin(2\omega_L t)$$

mit

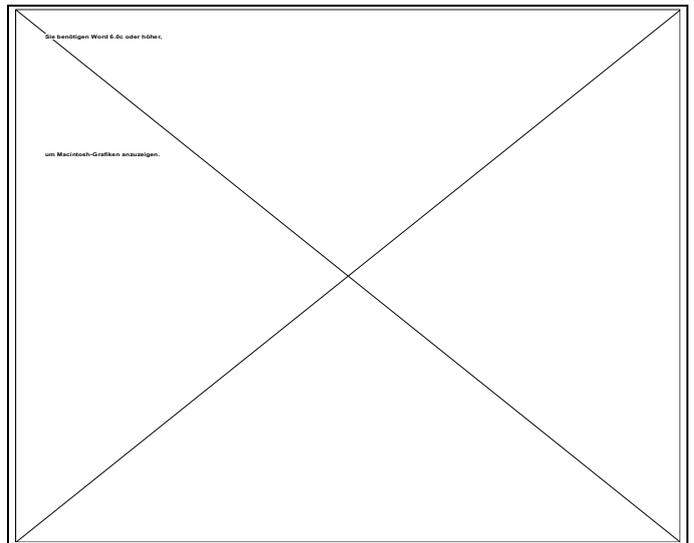
$$\Delta\omega_0 = \omega_0 - \omega_L .$$

Die Wechselwirkungsenergie mit dem statischen Magnetfeld ist somit um eine Photonenenergie reduziert. Der Wechselwirkungsterm besteht aus zwei Teilen, einem zeitunabhängigen und einem zeitabhängigen Teil, der mit der doppelten Laserfrequenz um die z-Achse rotiert. Diese Aufteilung hat auch eine physikalische Interpretation: Die beiden Beiträge entsprechen den zirkular polarisierten Komponenten eines linear polarisierten Feldes.

Diejenige Komponente, welche im Laborsystem in die gleiche Richtung rotiert wie das Koordinatensystem wird im rotierenden System zeitunabhängig, während die andere Komponente hier mit der doppelten Frequenz rotiert.

2.4.8 Näherungsform

Wir können eine vereinfachte Bewegungsgleichung gewinnen wenn wir die rasch rotierende Komponente vernachlässigen. Man kann durch Störungsrechnung zeigen, daß diese Komponente in niedrigster Ordnung vernachlässigt werden kann, also dann wenn das Wechselfeld klein ist im Vergleich zum statischen Feld. Ich möchte mich hier aber auf qualitative Argumente beschränken: Die Möglichkeit, diesen Term zu vernachlässigen ergibt sich daraus, daß sein zeitlicher Mittelwert verschwindet. Diese Näherung ist die direkte Analogie zur Vernachlässigung derjenigen Terme des Jaynes-



Cummings Operators, die nicht energieerhaltend sind, also z.B. denjenigen Term, der gleichzeitig das Atom anregt und ein Photon erzeugt.

Der Hamiltonoperator für das rotierende Koordinatensystem wird dann

$$\mathcal{H}^f \approx -\Delta\omega_0 S_z - \omega_x S_x$$

Diese Näherung, bei der man die gegenläufig rotierende Komponente vernachlässigt, wird als „rotating wave approximation“ bezeichnet. In zweiter Ordnung erzeugt die gegenläufige Komponente eine Verschiebung der Resonanzfrequenz um den Betrag

$$\Delta\omega_{BS} = \omega_x^2 / (4\omega_L),$$

Z: BS-Shift

welche in der magnetischen Resonanz als Bloch-Siegert shift bezeichnet wird (F. Bloch and A. Siegert, 'Magnetic resonance for nonrotating Fields', Phys. Rev. 57, 522-527 (1940).) und in der Laserspektroskopie als dynamischer Stark-Effekt. Dieser nichtresonante Effekt skaliert invers proportional zur Resonanzfrequenz und direkt proportional mit der Intensität. Er ist vor allem dann wichtig wenn bei hohen Intensitäten mit hoher Auflösung gearbeitet wird.

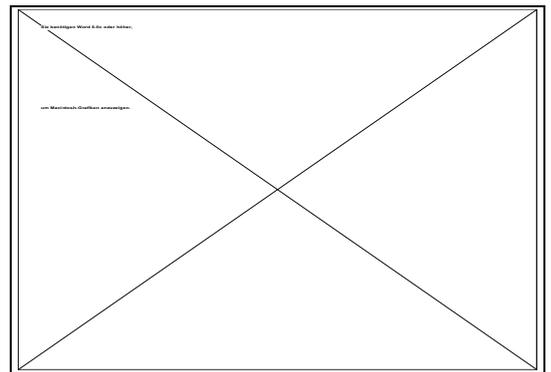
Rein mathematisch gesehen ist die Transformation ins rotierende System wie wir sie oben definiert haben nicht eindeutig, da die Laserfrequenz ω_L positives oder negatives Vorzeichen haben kann. Physikalisch hingegen ist nur diejenige Variante sinnvoll, bei der die verbleibende longitudinale Komponente $\Delta\omega_0$ minimiert wird. Dies bedeutet daß das Koordinatensystem bezüglich dem Laborsystem in die gleiche Richtung rotiert wie der Pseudospin unter dem Einfluß des internen Hamiltonoperators. Im rotierenden Koordinatensystem präzediert der Pseudospin ebenfalls, aber mit einer reduzierten Frequenz $\Delta\omega_0$, die gegenüber der Präzessionsfrequenz im Laborsystem um die Laserfrequenz reduziert wurde. Diese Frequenz kann auch verschwinden oder negativ werden.

2.5 Lösung der Blochgleichung

2.5.1 Eigenwerte und Eigenvektoren

Wie andere lineare Differentialgleichungssysteme kann man die quantenmechanischen Bewegungsgleichungen dadurch lösen, daß man die Eigenwerte und Eigenvektoren bestimmt. Im Fall des Zweiniveausystems können wir dies direkt erreichen indem wir das Feynman-Vernon-Hellwarth Bild verwenden. Es liefert die Eigenwerte und Eigenvektoren über rein geometrische Überlegungen, ohne eine eigentliche Diagonalisierung des Hamiltonoperators.

Wie bei der Einführung des Pseudospins gezeigt und beim Übergang ins rotierende Koordinatensystem benutzt kann man die beiden Komponenten des Hamiltonoperator als Magnetfelder interpretieren, welche an das magnetische Moment des Pseudospins koppeln. Die beiden Komponenten sind parallel zur z-, resp. x-Achse ausgerichtet. In Frequenzeinheiten ist die z-Komponente durch die Frequenzverstimmung $\Delta\omega_0 = \omega_0 - \omega_L$ gegeben und die x



Komponente ω_x entspricht der Wechselwirkung zwischen dem atomaren Dipolmoment und dem Laserfeld. Ihre Vektorsumme liegt somit in der xz-Ebene. Das effektive Feld ω_{eff} , die Vektorsumme der beiden Komponenten, liegt in der xz Ebene, unter einem Winkel

$$\theta = \tan^{-1} (\omega_x / \Delta\omega_0)$$

von der z-Achse. Die Stärke dieses Feldes ist

$$\omega_{\text{eff}} = (\Delta\omega_0^2 + \omega_x^2)^{1/2} .$$

Wir wissen bereits, daß der Hamiltonoperator diagonal ist, wenn wir nur eine Feldkomponente haben, welche parallel zur z-Achse ausgerichtet ist. Es muß somit möglich sein, den Hamiltonoperator auf Diagonalform zu bringen indem wir die z-Achse des Koordinatensystems in Richtung des effektiven Feldes wählen. Ausgehend vom rotierenden Koordinatensystem xyz erreicht man dies, indem man eine (zeitunabhängige) Rotation um die y-Achse durchführt:

$$\mathcal{H}^d = e^{i\theta S_y} \mathcal{H}^r e^{-i\theta S_y} = - \omega_{\text{eff}} S_z' .$$

Die beiden Exponentialoperatoren rotieren den Hamiltonoperator um einen Winkel θ von der z-Achse in die Richtung des effektiven Feldes. Der obere Index d zeigt an, daß der Hamiltonoperator in dieser Basis diagonal ist.

In dieser Basis sehen wir sofort, daß die Eigenwerte

$$\lambda_{\pm} = \pm 1/2 \omega_{\text{eff}} = \pm 1/2 (\omega_x^2 + \Delta\omega_0^2)^{1/2}$$

Z: Spin 1/2 in ω_{eff}

sind.

Die Eigenvektoren sind parallel, resp. antiparallel zur Richtung des effektiven Feldes. In der Basis des rotierenden Koordinatensystems ist ihre Darstellung

$$\xi_+ = \begin{bmatrix} \text{---} \\ \text{---} \end{bmatrix} \quad \xi_- = \begin{bmatrix} \text{---} \\ \text{---} \end{bmatrix} .$$

Diese Zustände sind Superpositionszustände zwischen Grund- und angeregtem Zustand. In einem quantenmechanischen Bild ist das Photon aufgrund der Wechselwirkung teilweise an das Atom gebunden, aber es wird nicht vollständig absorbiert. Man bezeichnet diese Zustände häufig als „dressed states“, also bekleidete Zustände, in Analogie zur Situation die wir beim Jaynes-Cummings Modell diskutiert haben.

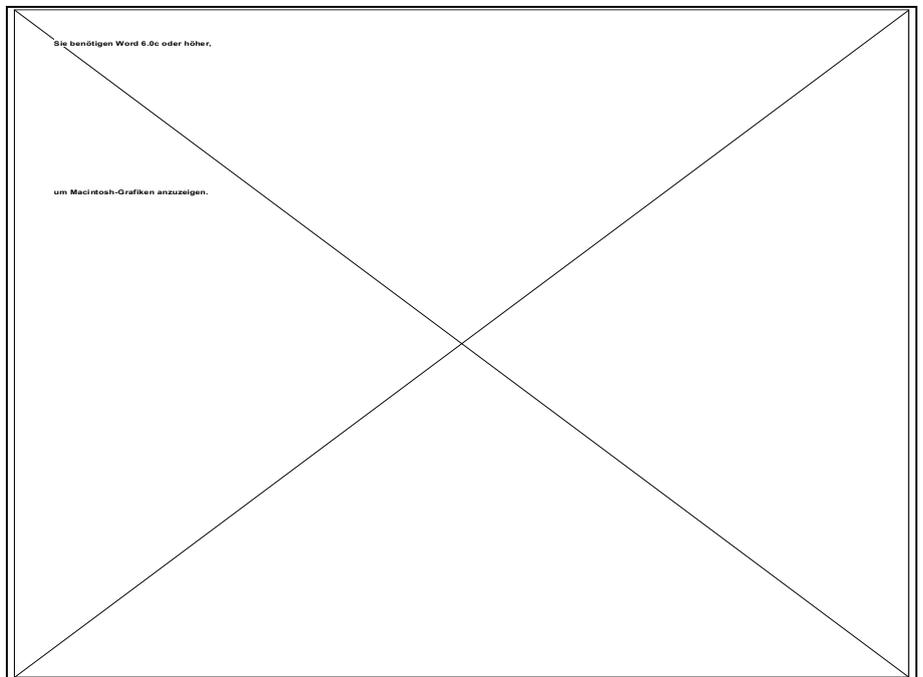
2.5.2 Verstimmungsabhängigkeit der Energien

Die Energie dieses Zustandes hängt nicht nur vom internen Hamiltonoperator des Atoms ab, sondern auch von der Frequenz und der Amplitude des Laserfeldes.

Die Figur zeigt die Abhängigkeit der Energien der bekleideten Zustände von der Laserfrequenz. Wir betrachten zunächst den Fall daß die Kopplung ans äußere Feld verschwindet, $\omega_x \rightarrow 0$. Die Eigenwerte werden dann

$$\lambda_{\pm} = \pm 1/2 \Delta\omega_0^2 ,$$

sind also direkt gleich der Laserverstimmung. Am Ursprung der x-Achse, bei $\Delta\omega_0 = 0$, sind die beiden Zustände somit entartet.



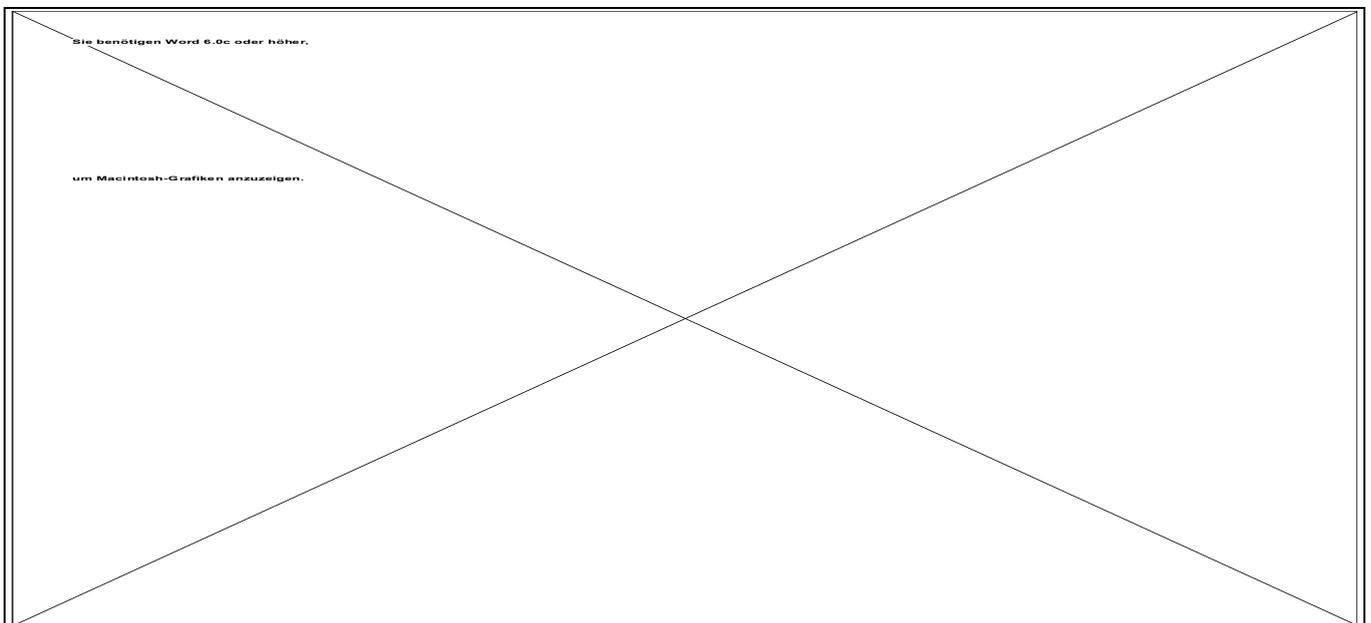
Wenn wir die Kopplung ans äußere Feld mit berücksichtigen, so verschwindet diese Entartung. Offenbar sind die Zustände an dieser Stelle um $\pm\omega_x$ aufgespalten. Wird die

Laserverstimmung groß gegenüber der Kopplungsstärke, so nähern sich die Energien wieder dem Fall des ungestörten Atoms, wie man leicht aus der geometrischen Darstellung der Feldkomponenten ersehen kann. Offenbar ist also der Einfluß der Kopplung auf die Energien am größten wenn die Laserverstimmung verschwindet, also dann wenn der Laser resonant mit dem atomaren Übergang ist.

Der Effekt des Lasers ist nicht nur für die Energien am größten, sondern auch für die Eigenvektoren. Dies kann man ebenfalls sehr einfach mit geometrischen Argumenten nachvollziehen: auf der Resonanz ist die Richtung des effektiven Feldes orthogonal zur Richtung des statischen Feldes. Die Eigenvektoren des gekoppelten Systems, welche parallel zum effektiven Feld liegen, sind somit orthogonal zu den Eigenvektoren des ungekoppelten Systems. Dies ist in der Figur durch die kleinen Bilder dargestellt, welche die Richtung des effektiven Feldes für negative, verschwindende, und positive Laserverstimmung zeigen.

2.5.3 Präzession und Pulse

Die zeitliche Entwicklung des Systems ist damit beinahe trivial. Wie wir beim freien Atom gesehen hatten erhalten wir in einem statischen Feld eine Präzessionsbewegung des Spinvektors um dieses Feld. Dies entspricht aber gerade der jetzigen Situation. Das Feld ω_{eff} ist hier um den Winkel θ von der z-Achse geneigt, so daß die Präzessionsbewegung um diese Richtung erfolgen muß.



Die Anfangsbedingungen bestimmen die Details dieser Präzessionsbewegung. Die Länge des Spinvektors und der Winkel zwischen dem Vektor und der Präzessionsachse bleiben hierbei konstant.

Eine besonders wichtige Anfangsbedingung ist das thermische Gleichgewicht. Der Pseudospinvektor ist dann parallel zur positiven z-Achse ausgerichtet.

Wenn wir uns weiter auf den Fall der resonanten Einstrahlung konzentrieren sehen wir, daß das effektive Feld parallel zur x-Achse liegt, daß der Pseudospin somit in der yz-Ebene präzediert.

Z: Präzession um x

Die Präzessionsbewegung dauert so lange wie die Kopplung an das äußere Feld. Es ist somit möglich, beliebige Präzessionswinkel einzustellen, indem man die Stärke der Kopplung und die Dauer der Einstrahlung wählt. Ein wichtiger Fall ist z.B. die Drehung um 90 Grad, also ein Präzessionswinkel von $\pi/2$. Während der Ausgangszustand

Z: $\pi/2$ Puls

$$(s_x, s_y, s_z) = (0, 0, 1)$$

Z: Population im GZ

einer Populationsdifferenz entspricht, ist im Endzustand

$$(s_x, s_y, s_z) = (0, 1, 0)$$

Z: Kohärenz

die Populationsdifferenz Null, doch die transversale Komponente des Pseudospins maximal. Wie wir gezeigt hatten entspricht diese im Fall des optischen Systems einem oszillierenden Dipolmoment.

Eine Rotation um $\pi/2$ wird als 90 Grad oder $\pi/2$ Puls bezeichnet. Ein solcher Puls wird dazu verwendet, einen Zustand mit möglichst großem optischen Dipolmoment zu erzeugen.

Z: $\pi/2$ Puls

Ein weiterer wichtiger Fall entspricht dem π -Puls, also einer Drehung um 180 Grad. Aus dem thermischen Anfangszustand erhält man somit den Endzustand

$$(s_x, s_y, s_z) = (0, 0, -1),$$

Z: Invertierte Populationen

was offenbar einem Austausch der Populationen zwischen Grund- und angeregtem Zustand entspricht. Man spricht von einer Populationsinversion.

Als eine Art Nebenrechnung kann man versuchen, einen solchen Zustand durch eine Boltzmann-Verteilung darzustellen.

Wie man leicht sieht entspricht ein solcher Zustand einer negativen Temperatur.

Z: Zustände mit $T > 0$, $T = \infty$, $T < 0$

Da Zustände mit höherer Temperatur allgemein Zuständen mit höherer Energie entsprechen schliessen wir, daß negative Temperaturen höher sind als alle positiven Temperaturen.

2.5.4 Relaxationsprozesse

Die Präzessionsbewegung, die wir als Lösung der Hamilton'schen Bewegungsgleichung kennengelernt haben erklärt natürlich nicht die Wechselwirkung zwischen Licht und Atomen allgemein. In tatsächlichen Experimenten erreichen die Systeme einen stationären Zustand, ihre Eigenschaften werden zeitunabhängig (abgesehen von der Oszillation des elektrischen Dipolmoments mit der Laserfrequenz). Die zeitliche Entwicklung zu diesem Gleichgewichtszustand und den Zustand selber können wir nur bestimmen wenn wir auch die Relaxationsprozesse berücksichtigen. Darunter faßt man alle Prozesse zusammen, die nicht im Hamiltonoperator enthalten sind. Wir gehen hier nicht auf die physikalischen Hintergründe ein, sondern beschreiben sie mit Hilfe der beiden phänomenologischen Parameter Γ_1 und Γ_2 .

Γ_1 ist die reziproke Lebensdauer des angeregten Zustandes und beschreibt den Transfer von Population vom angeregten Zustand zum Grundzustand

$$\dot{\rho}_{11} = -\dot{\rho}_{22} = \Gamma_1 \rho_{22} ,$$

d.h. pro Zeiteinheit fällt ein konstanter Anteil in den Grundzustand zurück.

Wir möchten die Relaxation in die Bewegungsgleichung für den Pseudospin einsetzen. Die longitudinale Relaxation betrifft zunächst nur die z-Komponente

$$s_z = (\rho_{11} - \rho_{22}) = ((1 - \rho_{22}) - \rho_{22}) = 1 - 2\rho_{22} ,$$

wobei wir benutzt haben daß die Summe der Populationen gleich 1 ist. Die Population des angeregten Zustandes kann somit geschrieben werden als

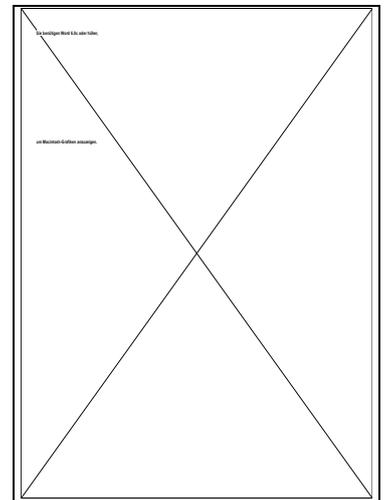
$$\rho_{22} = (1 - s_z)/2 .$$

Damit wird der Beitrag von Γ_1 zur Bewegungsgleichung

$$\dot{s}_z = \dot{\rho}_{11} - \dot{\rho}_{22} = 2 \Gamma_1 \rho_{22} = \Gamma_1 (1 - s_z) .$$

Gleichgewicht, d.h. ein stationärer Zustand, $\dot{s}_z = 0$ wird somit erreicht für $s_z = 1$, d.h. wenn alle Atome sich im Grundzustand befinden.

In freien Atomen wird dieser Prozeß durch die spontane Emission getrieben, aber die Wechselwirkung mit der Umgebung kann ebenfalls zu Relaxationsprozessen führen. Da-



runter fallen z.B. die Wechselwirkung mit anderen Atomen oder räumliche Bewegungen, wie z.B. Phononen in Festkörpern.

Die transversalen Komponenten zerfallen mit der Rate Γ_2

$$\dot{\rho}_{\pm} = -\Gamma_2 \rho_{\pm} \quad \dot{\rho}_{\pm} = -\Gamma_2 \rho_{\pm} ,$$

welche ebenfalls einen Beitrag der spontanen Emission beinhaltet: wenn der angeregte Zustand zerfällt muß auch die Superposition zwischen Grund- und angeregtem Zustand zerfallen. In freien Atomen beträgt die transversale Relaxationsrate die Hälfte der longitudinalen Rate,

$$\Gamma_2 = \Gamma_1/2.$$

Zusätzliche Beiträge stammen von der Wechselwirkung mit der Umgebung. Da bei der Relaxation der transversalen Komponenten keine Energieübertragung erfolgt, sind diese Prozesse meist effizienter als die Relaxation der Populationen, so daß die transversale Relaxationsrate meistens größer ist als die longitudinale, $\Gamma_2 > \Gamma_1$. Insbesondere führen auch inhomogene Wechselwirkungen wie der Dopplerschift zum Zerfall der Kohärenz.

2.5.5 Die optische Blochgleichung

Um die vollständige Lösung zu erhalten gehen wir aus vom Hamilton'schen Teil der Bewegungsgleichung, d.h. von der Liouville-Schrödinger Gleichung

$$\dot{\rho} = -i[\mathcal{H}, \rho] ,$$

welche in unserer Operatorenbasis die Form

$$\begin{aligned} d/dt (s_x S_x + s_y S_y + s_z S_z) &= -i [-\Delta\omega_0 S_z - \omega_x S_x, s_x S_x + s_y S_y + s_z S_z] \\ &= -i (-\Delta\omega_0 s_x [S_z, S_x] - \Delta\omega_0 s_y [S_z, S_y] - \omega_x s_y [S_x, S_y] - \omega_x s_z [S_x, S_z]) \\ &= (-\Delta\omega_0 s_x S_y + \Delta\omega_0 s_y S_x - \omega_x s_y S_z + \omega_x s_z S_y) \end{aligned}$$

Identifikation der Koeffizienten ergibt

$$\dot{\rho}_{\pm} = \Delta\omega_0 s_y$$

$$\dot{\rho}_{\pm} = -\Delta\omega_0 s_x + \omega_x s_z$$

$$\dot{\rho}_{\pm} = -\omega_x s_y$$

Unter Berücksichtigung der Relaxationsprozesse wird daraus

$$\begin{aligned} \dot{s}_x &= \Delta\omega_0 s_y - \Gamma_2 s_x \\ \dot{s}_y &= -\Delta\omega_0 s_x + \omega_x s_z - \Gamma_2 s_y \\ \dot{s}_z &= -\omega_x s_y + \Gamma_1(1-s_z) . \end{aligned}$$

Diese Bewegungsgleichung für das quantenmechanische Zweiniveausystem war von Felix Bloch untersucht worden, als er die magnetische Resonanz von Spin-1/2 Systemen betrachtete (F. Bloch, 'Nuclear induction', Phys. Rev. 70, 460-485 (1946).). Nachdem Feynman, Vernon und Hellwarth gezeigt haben, daß die gleichen Gleichungen auch optische Zweiniveausysteme beschreiben, wurden sie in der optischen Spektroskopie als die optischen Blochgleichungen bekannt (L. Allen and J.H. Eberly, 'Optical resonance and two-level atoms', Dover Publications, Mineola, NY (1987).).

Die Relaxationsraten definieren eine natürliche Frequenzskala für das System. Es ist deshalb manchmal nützlich, die Bewegungsgleichungen in skalierten, dimensionslosen Frequenzen zu schreiben. Wir schreiben

$$\delta = \Delta\omega_0/\Gamma_2 \text{ und } \kappa = \omega_x/\Gamma_2,$$

und erhalten damit

$$\begin{aligned} \dot{s}_x &= \Gamma_2(\delta s_y - s_x) \\ \dot{s}_y &= \Gamma_2(-\delta s_x - \kappa s_z - s_y) \\ \dot{s}_z &= \Gamma_2(\kappa s_y - (\Gamma_1/\Gamma_2)(s_z-1)) . \end{aligned}$$

2.5.6 Stationäre Lösung

Die Blochgleichung hat die folgende stationäre Lösung:

$$(s_x, s_y, s_z)_\infty = (1/(1+\delta^2+\kappa^2\Gamma_2/\Gamma_1)) (\delta \kappa, \kappa, 1 + \delta^2) .$$

Mit dimensionsbehafteten Größen erhalten wir dafür

$$(s_x, s_y, s_z)_\infty = 1/(\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2 + \omega_x^2 \Gamma_2/\Gamma_1) (\Delta\omega_0 \omega_x, \omega_x \Gamma_2, \Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2) .$$

In freien Atomen beträgt die transversale Relaxationsrate die Hälfte der longitudinalen. In diesem Fall vereinfacht sich der Ausdruck zu

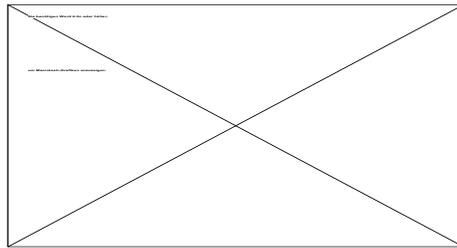
$$(s_x, s_y, s_z)_\infty = 1/(\Gamma_1^2 + 4 \Delta\omega_0^2 + 2 \omega_x^2) (4\Delta\omega_0 \omega_x, 2\omega_x \Gamma_1, \Gamma_1^2 + 4\Delta\omega_0^2) .$$

Bevor wir diese Lösung im Detail diskutieren schreiben wir sie um indem wir den Sättigungsparameter

$$s = \begin{matrix} \square \\ \diagup \quad \diagdown \\ \square \end{matrix} .$$

einführen. Der Zähler ist proportional zum Quadrat des Dipolmatrixelementes und zum Quadrat der Feldstärke, d.h. proportional zur Intensität des Lasers und damit zur Anzahl der einfallenden Photonen. Der Nenner enthält die Relaxationsrate und die Laserverstimmung und kann als die Tendenz des Systems, Photonen nicht aufzunehmen, resp. sie wieder zu emittieren verstanden werden. Der Sättigungsparameter ist eine dimensionlose Größe, welche proportional zur Intensität des Laserfeldes ist. Wir können ihn als Parametrisierung der Laserintensität betrachten, wobei die Einheiten an das System angepaßt sind.

Damit wird der stationäre Zustand



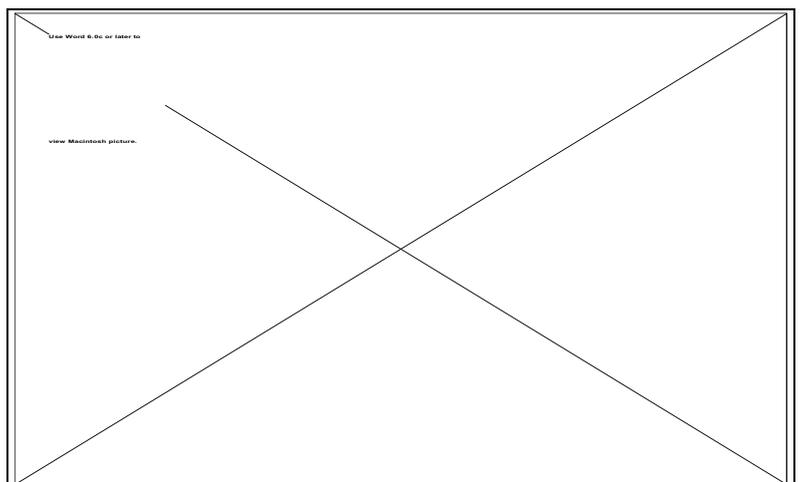
Für $s=1$ verringert sich die longitudinale Komponente $s_z = 1/(1+s)$ auf $1/2$, so daß sich ein Viertel der Atome sich im angeregten Zustand befindet ($3/4$ in $lg>$). $s < 1$ entspricht offenbar "niedriger" Intensität, d.h. einer Intensität, die noch störungstheoretisch behandelt werden kann, während $s > 1$ starke Sättigung bedeutet.

2.5.7 Intensitätsabhängigkeit

Für freie Atome wird dieser Wert erreicht wenn

$$\omega_x^2 = 1/2 \Gamma_1^2 + 2 \Delta\omega_0^2.$$

Bei dieser Intensität wird also der Sättigungsparameter eins und die Populationsdifferenz ist auf die Hälfte reduziert. Für noch höhere Intensität nimmt die Populationsdifferenz weiter ab, doch sie verschwindet erst für unendlich hohe Intensität. Für alle endlichen Intensitäten bleibt die Population des angeregten Zustandes unter derjenigen des Grundzustandes - dies im Gegensatz zur Anregung durch einen π -Puls.



Eine weitere interessante Größe ist die Rate r , mit der Photonen gestreut werden. Wir berücksichtigen hier nur die spontane Emission aus dem angeregten Zustand. Die Zahl der Atome im angeregten Zustand beträgt

$$\begin{aligned}\rho_{22} &= 1/2(1-s_{z\infty}) = 1/2 [1 - (\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2)/(\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2 + \omega_x^2\Gamma_2/\Gamma_1)] = \\ &= 1/2 \omega_x^2\Gamma_2/\Gamma_1 / (\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2 + \omega_x^2\Gamma_2/\Gamma_1) .\end{aligned}$$

Diese multiplizieren wir mit der spontanen Emissionsrate Γ_1 und erhalten

$$r = (\kappa^2\Gamma_2/2(1+\delta^2+\kappa^2\Gamma_2/\Gamma_1)) = (\omega_x^2\Gamma_2/2(\Gamma_2^2+\Delta\omega_0^2+\omega_x^2\Gamma_2/\Gamma_1)).$$

Energieerhaltung erfordert daß diese Rate auch die Rate ist, mit der Photonen aus dem Laserstrahl entfernt werden, d.h. mit der sie absorbiert werden.

Z: Absorption / spontane Emission

Bei geringer Intensität, $\omega_x \ll \Gamma_1, \Gamma_2$ können wir die Rate annähern mit

$$r \sim (\omega_x^2\Gamma_2/2(\Gamma_2^2+\Delta\omega_0^2)) ,$$

d.h. sie wird proportional zur Laserintensität. Für niedrige Intensitäten ist die Absorption somit konstant. Wird der dritte Term im Nenner aber groß gegen die beiden ersten, so finden wir

$$r \rightarrow (\omega_x^2\Gamma_2/2(\omega_x^2\Gamma_2/\Gamma_1)) = \Gamma_1/2 .$$

Dies entspricht auch den Erwartungen: bei hoher Sättigung befindet sich die Hälfte der Atome im angeregten Zustand, so daß die Anzahl der gestreuten Photonen bei $\Gamma_1/2$ sättigt.

Die Streurrate fängt somit zunächst proportional zur Intensität an und nähert sich dem Grenzwert $\Gamma_1/2$.

Z: r(I)

2.5.8 Verstimmungsabhängigkeit

Die Verstimmungsabhängigkeit dieser Funktion gibt uns somit die Form der Absorptionslinie. Man erkennt leicht, daß die Funktion ihr Maximum erreicht wenn die Verstimmung verschwindet, $\Delta\omega_0 = 0$.

Für große Verstimmungen, $\Delta\omega_0 \gg \Gamma_2$, ω_x nimmt die Funktion quadratisch mit der Verstimmung ab. Ihre Form

Z: Absorptionslinie

entspricht somit qualitativ der Lorentzlinie. Die Analogie wird exakt wenn man den Term $\omega_x^2 \Gamma_2 / \Gamma_1$ im Nenner vernachlässigt, was dann möglich ist, wenn die Intensität niedrig ist.

Wir haben aber bei der Diskussion des klassischen Lorentz-Lorenz Modells gesehen, daß die Absorption und die Dispersion aus dem oszillierende elektrischen Dipolmoment berechnet werden können. Dies ist auch im halbklassischen Modell möglich. Hier wird das Dipolmoment durch die transversalen Komponenten des Pseudospins beschrieben:

$$P = \text{Sp}\{\rho \hat{d}\} = \mu_e \text{Sp}\{\rho S_x\} = \mu_e s_x .$$

Das Außerdiagonalelement des Dichteoperators gibt somit direkt die Amplitude des oszillierenden Dipolmomentes an.

Die Rechnungen, die wir hier durchführen, sind alle im rotierenden Koordinatensystem. Beim Übergang zum Laborsystem werden die x- und y-Komponenten gemischt. Beide bezeichnen das gleiche oszillierende Dipolmoment, sie sind lediglich um 90 Grad phasenverschoben. Für das transmittierte Lichtfeld ist deshalb direkt die komplexe optische Polarisation

$$s_{xy} = s_x + i s_y$$

die Quelle des optischen Feldes. In direkter Analogie zur Diskussion von Absorption und Emission beim Lorentz-Lorenz Modell können wir auch hier voraussagen, daß Real- und Imaginärteil zu Dispersion und Absorption führen.

Wir berechnen deshalb alle drei Komponenten als Funktion der Laserverstimmung. Bei der z-Komponente

$$\begin{aligned} s_{z\infty} &= (\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2) / (\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2 + \omega_x^2 \Gamma_2 / \Gamma_1) = \\ &= 1 - (\omega_x^2 \Gamma_2 / \Gamma_1) / (\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2 + \omega_x^2 \Gamma_2 / \Gamma_1) \end{aligned}$$

sehen wir, daß der Nenner auf der Resonanz minimal wird. Der Bruch wird somit maximal und die Funktion insgesamt wieder minimal. Mit **Z: $s_z(\Delta\omega_0)$** zunehmender Verstimmung steigt die Funktion an und nähert sich asymptotisch dem Wert 1 wenn der Verstimmungsterm groß wird gegenüber den anderen Termen

$$\Delta\omega_0^2 \gg \Gamma_2^2 + \omega_x^2 \Gamma_2 / \Gamma_1 .$$

Somit bleibt das System in der Nähe des Gleichgewichts wenn die Verstimmung groß wird.

2.5.9 Transversale Komponenten: Absorption / Dispersion

Bei den transversalen Termen

$$(s_x, s_y)_\infty = (\Delta\omega_0 \omega_x, \omega_x \Gamma_2) / (\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2 + \omega_x^2 \Gamma_2 / \Gamma_1)$$

beträgt der Gleichgewichtswert für große Verstimmung offenbar Null, da hier der Verstimmungsterm im Nenner dominiert. Allerdings fällt die x-Komponente mit $1/\Delta\omega_0$ ab, die y-Komponente mit $1/\Delta\omega_0^2$.

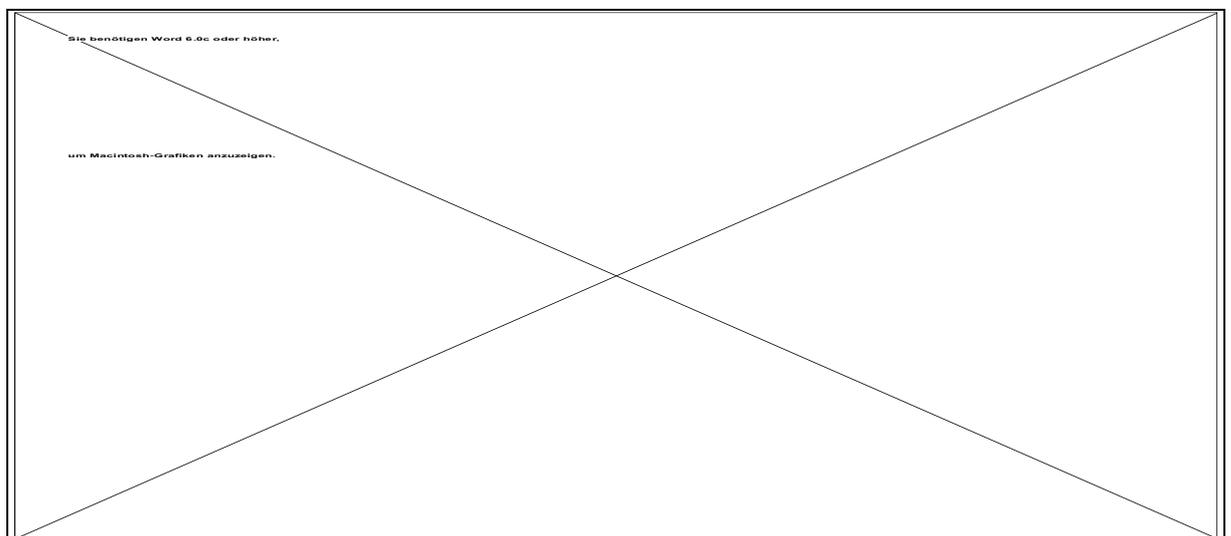
Das Verhalten bei der Resonanz ist jedoch für die beiden Terme unterschiedlich: Die x-Komponente, welche im Zähler proportional zu $\Delta\omega_0$ ist, weist auf der Resonanz einen Nulldurchgang auf, während die y-Komponente hier ihr Maximum erreicht.

Z: Absorption / Dispersion

Die beiden Kurven zeigen offenbar qualitativ das gleiche Verhalten wie im Falle des Lorentz-Lorenz Modells. Für kleine Intensitäten,

$$\omega_x^2 \ll \Gamma_1 \Gamma_2, \Delta\omega_0^2 \Gamma_1 / \Gamma_2,$$

erhalten wir das bekannte Lorentzprofil der Breite Γ_2 . Der dritte Term im Nenner beschreibt den Effekt einer Leistungsverbreiterung, also einer Verbreiterung der Resonanzlinie bei hohen Leistungen.



Die Figur zeigt die Abhängigkeit der drei Komponenten des Pseudospins von der normierten Laserverstimmung $\delta = \Delta\omega_0 / \Gamma_2$. Die linke Seite stellt das Verhalten der drei Komponenten einzeln dar. Die rechte Seite zeigt das Verhalten der drei Komponenten in Vektorform auf der Einheitskugel. Der Pfeil zeigt den Gleichgewichtszustand auf der Resonanz als Funktion der Laserverstimmung (Kurve). Die transversalen Komponenten beschreiben Absorption und Dispersion des Mediums. Im Grenzfall geringer Intensität (s

→ 0), sind diese Resultate identisch wie diejenigen der Lorentz-Lorenz Theorie. Die z-Komponente, welche die Populationsdifferenz darstellt, strebt für große Verstimmung gegen 1, was zeigt, daß sich die Atome dann hauptsächlich im Grundzustand aufhalten. In der Nähe der Resonanz hingegen nimmt die Population des angeregten Zustandes mit zunehmender Laserintensität zu.

2.5.10 Vergleich klassisches / quantenmechanisches Modell

Der wichtigste Unterschied zwischen dem klassischen und dem quantenmechanischen Dipolmoment ist die maximale Größe, die das induzierte Dipolmoment erreichen kann. Im klassischen Fall hatten wir gefunden, daß das induzierte Dipolmoment proportional zum elektrischen Feld ist,

$$\vec{P} = \chi \epsilon_0 \vec{E} .$$

Damit kann das induzierte Dipolmoment beliebig groß werden wenn nur das Anregungsfeld entsprechend stark ist. Im quantenmechanischen Fall hingegen kann das induzierte Dipolmoment eine maximale Größe nicht überschreiten. Mathematisch wird diese maximale Größe durch die Bedingung für die Spur des Dichteoperators gegeben

$$\text{Sp}\{\rho^2\} = 1/2(1+s_x^2+s_y^2+s_z^2) \leq 1 \text{ oder } s_x^2+s_y^2+s_z^2 \leq 1 .$$

Im FVH-Bild impliziert diese Beziehung daß die Länge des Spinvektors beschränkt ist: Der Vektor muß in der Einheitskugel liegen. Endet er auf der Kugeloberfläche, so befindet sich das System in einem reinen Zustand, d.h. alle beteiligten Atome sind im gleichen quantenmechanischen Zustand. Dies sind genau diejenigen Zustände, die mit Hilfe eines Zustandsvektors beschrieben werden können. Für einen gemischten Zustand ($\text{Sp}\{\rho^2\} < 1$), kann der Vektor kürzer sein, aber nie länger.

Der Unterschied kann auch auf die Struktur der Energieniveaus zurückgeführt werden: Auch in der Quantenmechanik können Oszillatoren beliebig große Auslenkung erfahren, sofern es sich z.B. um harmonische Oszillatoren handelt. Der Grund ist der, daß ein harmonischer Oszillator ein nach oben unbegrenztes Spektrum besitzt. Ein Zweiniveausystem, hingegen, ist sowohl nach unten wie nach oben beschränkt. Jedes Atom kann deshalb maximal ein Photon absorbieren, während ein harmonischer Oszillator immer ein weiteres Photon absorbieren und damit in einen höheren Zustand übergehen kann. Die Beschränkung der Energieaufnahme durch die quantenmechanische Struktur limitiert auch die Oszillationsamplitude.

Z: Unterschiede / Modelle

Für kleine Amplituden,

$$s_x, s_y \ll 1 , s_z \approx 1 ,$$

bei denen sich das System hauptsächlich im Grundzustand befindet, verhält sich das quantenmechanische Zweiniveausystem wie ein klassischer Dipol. Der stationäre Zustand wird hier

$$(s_x + i s_y)_\infty \sim \omega_x (\Delta\omega_0 + i \Gamma_2) / (\Gamma_2^2 + \Delta\omega_0^2).$$

Wir vergleichen dies mit dem Lorentz-Lorenz Modell, wo die Schwingungsamplitude

$$x_0 = e E_0 / (2 m \omega_0) (\Delta + i \gamma) / (\Delta^2 + \gamma^2)$$

beträgt. Offenbar sind die beiden Resultate voll kompatibel.

Dies ist auch der Bereich, in dem Störungsrechnung nützlich ist. Das Resultat der Störungsrechnung ist deshalb identisch zum Resultat des klassischen harmonischen Oszillators des Lorentz-Lorenz Modells (W. Heitler, 'The quantum theory of radiation', Dover Publications, New York (1953)). Bis zur Entwicklung des Lasers war es in der Optik selten möglich, diesen Bereich zu verlassen.