

3. Mehrniveausysteme

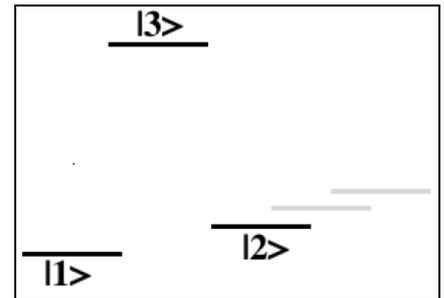
3. MEHRNIVEAUSYSTEME	1
3.1 System und Hamiltonoperator	2
3.1.1 Modellatome	2
3.1.2 Single-Transition Operatoren	2
3.1.3 Hamiltonoperator	4
3.1.4 Wahl der Wechselwirkungsdarstellung	5
3.2 Optisches Pumpen	6
3.2.1 Bewegungsgleichung	6
3.2.2 Adiabatische Näherung	7
3.2.3 Pumprate	9
3.2.4 Pumpprozeß	10
3.2.5 Spektrale Selektion	11
3.2.6 Polarisationsselektion	12
3.3 Effekt auf Kohärenzen	15
3.3.1 Bewegungsgleichung	15
3.3.2 Stationäre Lösung	16
3.3.3 Ramanprozesse	17
3.3.4 Anwendung	18
3.3.5 Weitere Prozesse	19

3.1 System und Hamiltonoperator

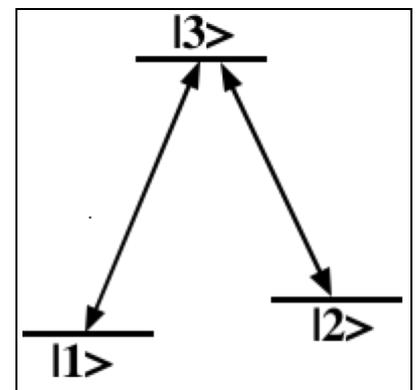
3.1.1 Modellatome

Auch in diesem Kapitel werden wir nicht spezifische physikalische System, wie z.B. ein Natriumatom oder ein H_2 -Molekül diskutieren, sondern ein Modellsystem, das lediglich auf dem Papier existiert. Anstelle der bisherigen 2 Zustände berücksichtigen wir jetzt drei oder mehr.

Ich hatte schon bei der Diskussion des Zweiniveaumodells betont, daß echte Atome immer mehr als zwei Zustände besitzen. Trotzdem ist es möglich, einige Eigenschaften echter Atome anhand von Zweiniveaumatomen zu modellieren. Dementsprechend erwarten wir, daß auch für Dreiniveaumatome einige Eigenschaften durch die bereits diskutierten Resultate erklärt werden können. Insbesondere ist es möglich, gezielt eine Wechselwirkung mit zwei der drei Zustände so zu wählen, daß der dritte Zustand keine Rolle spielt. Die genauen Bedingungen, wann dies möglich ist, werden wir noch diskutieren. Im übrigen werden wir uns in der Folge auf die Diskussion derjenigen Aspekte konzentrieren, welche für dieses System neu sind, welche also in Zweiniveaumatomen nicht auftreten.



Auch wenn wir uns bewusst sind, daß es sich hier um ein Modell handelt, daß kein real existierendes Atom beschreibt, sollten wir uns doch einige Gedanken über die Beziehung zwischen dem Modell und richtigen Atomen machen. Wenn wir von einem freien Atom ausgehen, wo die einzelnen Zustände definitive Paritäten aufweisen, müssen mindestens zwei Zustände gleiche Parität aufweisen. Dies bedeutet, daß das Matrixelement des elektrischen Dipoloperators für den Übergang zwischen diesen beiden Zuständen verschwinden muß. Die beiden anderen Übergänge können aber erlaubte optische Übergänge darstellen. Wir werden deshalb in der Folge von dieser Zuordnung ausgehen: die Übergänge 1-3 und 2-3 sollen optisch erlaubt sein. Der optisch verbotene Übergang kann aber mit einem magnetischen Wechselfeld getrieben werden, falls er einem magnetischen Dipolübergang entspricht. Ein wichtiger Aspekt unseres Modells ist, daß wir annehmen, daß es möglich ist, selektiv mit dem Laser einen der beiden Übergänge zu treiben. Dies kann in wirklichen Systemen durch die geeignete Wahl einer Polarisation oder der Frequenz geschehen.



3.1.2 Single-Transition Operatoren

Für die Beschreibung von Mehrniveaumatomen sind "Single-Transition Operatoren" (STO) recht nützlich: Wie der Name sagt, handelt es sich dabei um Operatoren, die nur

auf einen Übergang wirken, die also ganz analog zu den Spin-1/2 Operatoren der Zweiniveaumatome sind. A. Wokaun and R.R. Ernst, 'Selective excitation and detection in multilevel spin systems: application of single transition operators', J. Chem. Phys. 67, 1752-1758 (1977).

Wir definieren diese Operatoren über ihre Matrixelemente

$$\begin{aligned} \langle r | S_x^{(rs)} | s \rangle &= 1/2 & \langle s | S_x^{(rs)} | r \rangle &= 1/2 \\ \langle r | S_y^{(rs)} | s \rangle &= -i/2 & \langle s | S_y^{(rs)} | r \rangle &= i/2 \\ \langle r | S_z^{(rs)} | r \rangle &= 1/2 & \langle s | S_z^{(rs)} | s \rangle &= -1/2 . \end{aligned}$$

Die übrigen Matrixelemente sind Null.

Wenn man die "passiven" Zustände wegläßt sind sie offenbar identisch zu Spin-1/2 Operatoren. Für jeden Satz von Operatoren gelten die kanonischen Vertauschungsoperatoren für Drehimpulsoperatoren:

Matrixdarstellung

$$[S_x^{(rs)}, S_y^{(rs)}] = i S_z^{(rs)} \text{ und zyklisch .}$$

Diese Operatoren sind jedoch nicht wirkliche Spin-1/2 Operatoren, d.h. sie sind nicht unabhängig voneinander, sofern sie einen Zustand teilen: Ist ein Index der gleiche, wirken also zwei Operatoren auf den gleichen Zustand, dann vertauschen die beiden Operatoren im allgemeinen nicht. Es bestehen die folgenden Vertauschungsrelationen:

$$\begin{aligned} [S_x^{(rt)}, S_x^{(st)}] &= [S_y^{(rt)}, S_y^{(st)}] = i/2 S_y^{(rs)} \\ [S_z^{(rt)}, S_z^{(st)}] &= 0 & [S_x^{(rt)}, S_y^{(st)}] &= i/2 S_x^{(rs)} \\ [S_x^{(rt)}, S_z^{(st)}] &= -i/2 S_y^{(rt)} & [S_y^{(rt)}, S_z^{(st)}] &= i/2 S_x^{(rt)} \end{aligned}$$

Diese Operatoren sind alle spurfrei, d.h. um ein vollständiges System zu erhalten müssen sie durch den Einheitsoperator ergänzt werden. Umgekehrt gibt es einen linearen Zusammenhang:

$$S_z^{(rs)} + S_z^{(st)} + S_z^{(tr)} = 0$$

Eine weitere nützliche Art von Operatoren sind die "Levelshift-Operatoren" $\sigma_i = |i\rangle\langle i|$. Wenn alle diese Operatoren mit den x- und y- Single-Transition Operatoren kombiniert werden, erhält man eine vollständige Basis von Operatoren. Die z-Komponenten der Single-Transition Operatoren können durch die Levelshift-Operatoren ausgedrückt werden:

$$S_z^{(rs)} = (1/2) (\sigma_{rr} - \sigma_{ss}) ,$$

also die Hälfte der Populationsdifferenz.

Wir verwenden diese Operatoren hier für ein Dreiniveausystem. Es sollte aber klar sein, daß die Methode wesentlich allgemeiner ist und für beliebige Systeme anwendbar ist.

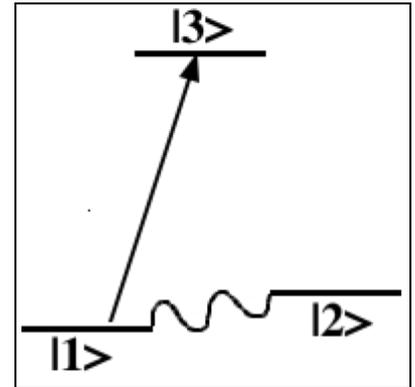
3.1.3 Hamiltonoperator

Wir betrachten zunächst den Hamiltonoperator des ungestörten Systems. Er läßt sich am einfachsten über Levelshiftoperatoren σ_i ausdrücken

$$\mathcal{H}_0 = \sum_i E_i \sigma_i ,$$

wo E_i die Energien der Zustände 1-3 darstellen.

An dieses System koppeln wir ein Laserfeld an, welches mit einem einzelnen Übergang in Resonanz treten soll



$$\mathcal{H}_{int} = - 2 \omega_{13} S_x^{(13)} \cos(\Omega_{13} t) .$$

Die Schreibweise ist in offensichtlicher Analogie zum Zweiniveausystem gewählt worden. ω_{13} beschreibt die Stärke der Kopplung, Ω_{13} die Frequenz.

Auch in diesem Fall ist es sinnvoll, in ein rotierendes Koordinatensystem überzugehen, wo wir einen zeitunabhängigen Hamiltonoperator erhalten. Dies kann man offenbar mit dem Transformationsoperator

$$U = \exp[i t \{ \Omega_{13} S_z^{(13)} \}]$$

erreichen. Die Anwendung der Transformation ergibt nach Eliminierung der gegenläufigen Komponente

$$\mathcal{H}^r = U^{-1} (\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{int}) U + i \dot{U}^{-1} U = \sum_i E_i \sigma_i - \omega_{13} S_x^{(13)} - \Omega_{13} S_z^{(13)} .$$

Die Energie der beiden Zustände, welche durch das eingestrahelte Feld gekoppelt werden, sind nach dieser Transformation wie im **Z: Energien** Zweiniveaufall nur noch um das effektive Feld, welches aus dem Verstimmungsbeitrag und der Kopplungsstärke gebildet wird, voneinander getrennt. Der dritte Zustand wird durch diese Transformation nicht verändert.

3.1.4 Wahl der Wechselwirkungsdarstellung

Während diese Transformation nützlich ist und das Ziel, den Hamiltonoperator zeitunabhängig zu machen, erreicht hat, kann man sich leicht vorstellen, daß man noch einfachere Formen des Hamiltonoperators erzeugen kann. Als ersten Schritt erweitern wir die Analogie zum Zweiniveausystem indem wir den Ursprung der Energieachse (der bisher nicht spezifiziert war) zwischen die beiden Zustände 1 und 3 setzen. Außerdem können wir offenbar die Energie des Zustandes 2 beliebig wählen. Es ist deshalb sinnvoll, diesen Null zu setzen.

Diese Umformung kann aus dem Laborsystem direkt erreicht werden, indem wir für den Transformationsoperator den Ausdruck

$$U_1 = \exp[i t \{ \Omega_{13} S_z^{(13)} - \frac{E_1 + E_2}{2} (\sigma_1 + \sigma_2) - E_3 \sigma_3 \}] \quad \boxed{\text{Matrixdarstellung}}$$

wählen. Der zweite Term verschiebt die Zustände 1 und 2 um ihren Mittelwert, der dritte Term verschiebt den Zustand 3 in den Ursprung der Energieachse. Da beide Zusatzterme mit dem Wechselwirkungsoperator $S_x^{(13)}$ vertauschen, tragen sie lediglich zur Verschiebung der Energien aller drei Zustände bei, welche durch $i \dot{U}^{-1} U$ erzeugt wird. Die Transformation mit diesem Operator ergibt

$$\mathcal{H}^r = U_1^{-1}(t) (\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{int}}) U_1(t) + i \dot{U}_1^{-1}(t) U_1(t) \approx -\delta_{13} S_z^{(13)} - \omega_{13} S_x^{(13)}.$$

$\delta_{13} = (E_3 - E_1) - \Omega_{13}$ stellt die Verstimmung des Lasers von der atomaren Resonanzfrequenz dar.

3.2 Optisches Pumpen

3.2.1 Bewegungsgleichung

Wenn wir den Effekt des Hamiltonoperators auf unser System, d.h. auf den Dichteoperator diskutieren, so brauchen wir nicht jeden beliebigen Dichteoperator zu diskutieren: Wir können die Linearität der Schrödingergleichung verwenden und einzelne Elemente oder Kombinationen von Elementen diskutieren. Der allgemeine Fall ergibt sich gemäß dem Superpositionsprinzip aus der Linearkombination der betrachteten Fälle.

Wir betrachten zunächst den Effekt der Kopplung auf die Populationen, d.h. wir nehmen an, daß der Dichteoperator anfänglich diagonal ist. Wir können ihn dann schreiben als

$$\rho(0) = \sum_i \rho_{ii}(0) \sigma_i .$$

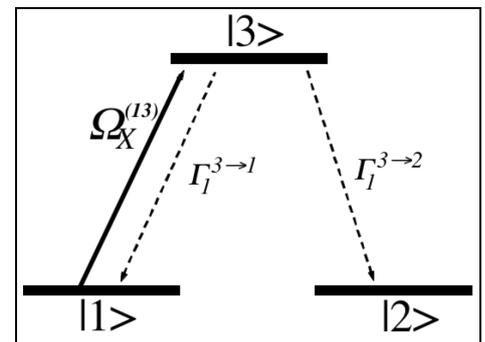
Im thermischen Gleichgewicht sind beide Grundzustände gleich besetzt, während wir die Besetzung des angeregten Zustandes vernachlässigen können:

$$\rho_{th}(0) = 1/2 (\sigma_1 + \sigma_2) .$$

Wir erweitern die Schrödingergleichung um die Relaxationsterme. Die gesamte Bewegungsgleichung kann dann als

$$\dot{\rho} = -i [\mathcal{H}^r, \rho] + \hat{\Gamma}_1 \rho + \hat{\Gamma}_2 \rho$$

geschrieben werden. Dabei steht der Superoperator $\hat{\Gamma}_1$ für den Austausch von Populationen, und $\hat{\Gamma}_2$ für die Pha-



senrelaxation der Kohärenzen. Wir schreiben die einzelnen Raten z.B. als $\Gamma_1^{3 \rightarrow 1}$: diese bezeichnet den Populationstransfer von Niveau $|3\rangle$ nach $|1\rangle$. Für die Kohärenzen nehmen wir eine einheitliche Zerfallsrate Γ_2 an.

Wir schreiben die Bewegungsgleichungen wie üblich indem wir den Dichteoperator in der Basis der Operatoren aufspannen. Für die Entwicklungskoeffizienten wählen wir die Schreibweise

$$\rho(t) = \sum_i \rho_{ii}(t) \sigma_i + \sum_{ij} x_{ij} S_x^{(ij)} + \sum_{ij} y_{ij} S_y^{(ij)} .$$

Damit wird die Bewegungsgleichung

$$\dot{\rho}_{11} = -\omega_{13}/2 y_{13} + \Gamma_1^{3 \rightarrow 1} \rho_{33}$$

$$\dot{\rho}_{22} = \Gamma_1^{3 \rightarrow 2} \rho_{33}$$

$$\dot{\rho}_{33} = \omega_{13}/2 y_{13} - \Gamma_1 \rho_{33} = \omega_{13}/2 y_{13} - (\Gamma_1^{3 \rightarrow 1} + \Gamma_1^{3 \rightarrow 2}) \rho_{33}$$

$$\dot{x}_{13} = \Delta\omega_0 y_{13} - \Gamma_2 x_{13}$$

$$\dot{y}_{13} = -\Delta\omega_0 x_{13} + \omega_{13}(\rho_{11} - \rho_{33}) - \Gamma_2 y_{13}$$

Die weiteren Terme sind unter den hier gemachten Annahmen identisch Null. Die Größe

$$\Gamma_1 = \Gamma_1^{3 \rightarrow 1} + \Gamma_1^{3 \rightarrow 2}$$

ist die gesamte Zerfallsrate des angeregten Zustandes. Die Lebensdauer des Grundzustandes haben wir als unendlich angenommen.

3.2.2 Adiabatische Näherung

Die allgemeine Lösung dieses Gleichungssystems ist viel zu kompliziert um nützliche Aussagen zu erlauben. Wir betrachten deshalb nur Spezialfälle, d.h. wir machen sinnvolle Näherungen. Die erste Näherung, die wir betrachten, ist die sogenannte adiabatische Näherung. Sie wird in vielen Zusammenhängen benutzt, so z.B. auch bei der quantenmechanischen Behandlung von Molekülen; dort ist sie als Born-Oppenheimer Näherung bekannt.

Dabei teilt man die Rechnung in zwei Teile auf, die auf unterschiedlichen Zeitskalen ablaufen: im ersten Schritt **Z: festes Kerngerüst** hält man die Kerne fest und diskutiert die Bewegung der Elektronen in einem Potential, das durch ein starres Kerngerüst erzeugt wird.

Wenn man die stationäre Lösung der elektronischen Zustände gefunden hat erlaubt man wiederum eine Bewegung der Kerne, wobei **Z: Potential** man annimmt, daß diese Bewegung sehr viel langsamer ist als die Bewegung der Elektronen, so daß diese sich immer in einem stationären Zustand für die aktuelle Kernkonfiguration befinden.

Im optischen Dreiniveausystem kann man in gewissen Fällen eine ähnliche Aufteilung in schnelle und langsame Variablen machen. Eine sinnvolle Wahl für "schnelle" Variablen sind die optischen Kohärenzen: in vielen Fällen sind sie stark gedämpft, d.h. Γ_2 ist groß.

Wenn die Laserintensität genügend klein ist,

Z: Einschwingen

$$\omega_x \ll \Gamma_2 ,$$

dann bleiben die optischen Kohärenzen klein,

$$xy_{13} \ll 1 ,$$

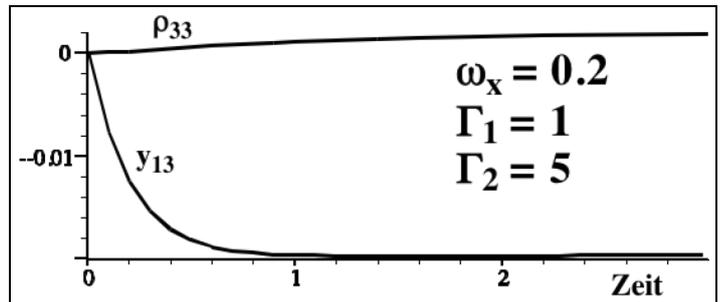
und erreichen in kurzer Zeit einen quasistationären Wert, der durch die Lösung des Zweiniveausystems gegeben ist. Die Populationen bleiben in der Nähe des thermischen Gleichgewichtes,

$$\rho_{33} \ll 1, \quad \rho_{11} \sim \rho_{22} \sim 0.5 .$$

Da die Kopplung an den dritten Zustand proportional zur Population des angeregten Zustandes ist, können wir sie in erster Näherung zu vernachlässigen.

Wir lösen deshalb zunächst nur die Bewegungsgleichung für die beiden Zustände $|1\rangle$ und $|3\rangle$. Wir beschränken uns zudem hier auf die stationären Lösungen. Diese können wir direkt aus der Lösung für das Zweiniveausystem übernehmen wenn wir zunächst die Näherung machen, daß der gesamte Zerfall des angeregten Zustandes in den Grundzustand $|1\rangle$ geht, $\Gamma_1 = \Gamma_1^{3 \rightarrow 1}$.

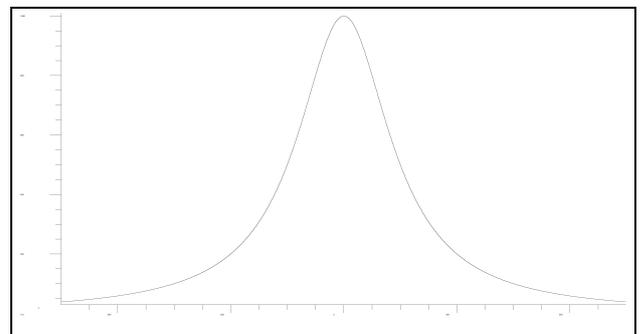
Eine numerische Integration der Bewegungsgleichungen zeigt, daß das System wirklich in kurzer Zeit einen quasistationären Zustand erreicht. Da hier die optische Rabi-Frequenz kleiner ist als die Dämpfungsrate findet man keine Oszillation, sondern lediglich eine fast exponentielle Annäherung an den quasistationären Zustand.



Aus den Ergebnissen für das Zweiniveausystem entnehmen wir für die Population des angeregten Zustandes

$$\rho_{33} = \rho_{11} \frac{\Gamma_2}{2 \Gamma_1} \frac{\omega_x^2}{\Delta\omega_0^2 + \Gamma_2^2} ,$$

wobei wir angenommen haben, daß die Kopplung ans Laserfeld schwach sei, so daß wir die Leistungsverbreiterung vernachlässigen können. Wesentlich an diesem Resultat ist die



Tatsache, daß die Population des angeregten Zustandes proportional zur Besetzung des Grundzustandes ρ_{11} ist.

3.2.3 Pumprate

Wir können jetzt den Zerfall von ρ_{33} nach ρ_{22} wieder "einschalten". Natürlich hat der zusätzliche Zerfallskanal einen Einfluß auf die zeitliche Entwicklung der anderen Terme. Das ursprüngliche Resultat bleibt aber eine gute Näherung für den quasistationären Zustand. Insbesondere das Verhältnis zwischen der Population des angeregten Zustandes und derjenigen des Grundzustandes ist weiterhin im wesentlichen gegeben durch den obigen Ausdruck.

Im folgenden interessiert uns die zeitliche Entwicklung der Population ρ_{22} . Da dieser Zustand nicht an das optische Feld koppelt, erhalten wir als einzigen Beitrag

$$\frac{d}{dt} \rho_{22}(t) = \Gamma_1^{3 \rightarrow 2} \rho_{33} \quad .$$

Wir eliminieren die Population des angeregten Zustandes indem wir die quasistationäre Lösung einsetzen:

$$\frac{d}{dt} \rho_{22}(t) = \Gamma_1^{3 \rightarrow 2} \rho_{33} = \Gamma_1^{3 \rightarrow 2} \rho_{11} \frac{\Gamma_2}{2\Gamma_1} \frac{\omega_x^2}{\Delta\omega_0^2 + \Gamma_2^2}$$

Unter der Annahme, daß die Population des angeregten Zustandes klein sei erhalten wir somit eine Bewegungsgleichung für die Populationen des Grundzustandes

$$\frac{d}{dt} \rho_{22}(t) = - \frac{d}{dt} \rho_{11}(t) = - k \rho_{11}(t) \quad ,$$

wobei die Pumprate

$$k = \Gamma_1^{3 \rightarrow 2} \frac{\rho_{33}}{\rho_{11}} = \Gamma_2 \frac{\Gamma_1^{3 \rightarrow 2}}{\Gamma_1^{3 \rightarrow 1} + \Gamma_1^{3 \rightarrow 2}} \frac{\omega_x^2}{2(\Delta\omega_0^2 + \Gamma_2^2)}$$

beträgt. Mit dieser Rate wird also Population vom Zustand 1 zum Zustand 2 gebracht.

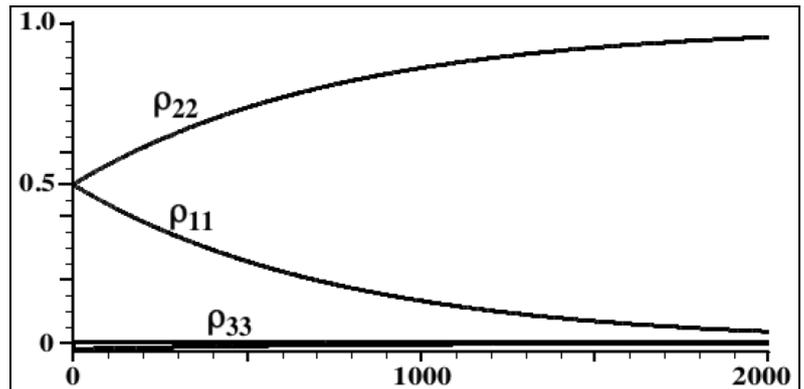
Für resonante Anregung reduziert sich dieser Ausdruck zu

$$k = \frac{\Gamma_1^{3 \rightarrow 2}}{\Gamma_1^{3 \rightarrow 1} + \Gamma_1^{3 \rightarrow 2}} \frac{\omega_x^2}{2\Gamma_2} \quad ,$$

also auf das Quadrat der optischen Rabi-Frequenz dividiert durch die transversale Relaxationsrate und multipliziert mit dem Verzweigungsverhältnis der spontanen Emissionsraten. Sie ist somit proportional zur Absorptionsrate und damit zur Intensität des Lasers. Sie nimmt genau wie die Absorption mit zunehmender Verstimmung ab: Für Verstimmungen groß gegenüber der optischen Linienbreite sinkt sie quadratisch gegen Null. Es müssen deshalb nur Pumpprozesse betrachtet werden, die nahe bei der Resonanz ablaufen - wiederum eine Rechtfertigung für das Zweiniveaumodell.

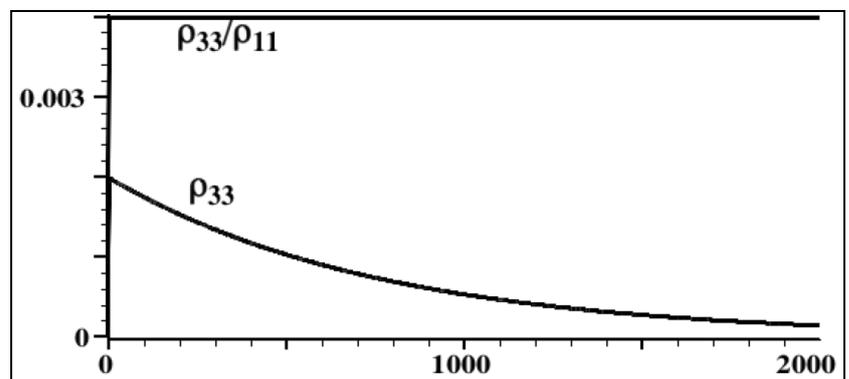
3.2.4 Pumpprozess

Die Änderung der Populationen, die durch den hier beschriebenen Pumpprozess abläuft, geschieht nun auf einer deutlich langsameren Zeitskala als die vorhin beschriebene Annäherung an den quasistationären Zustand. Das vorhin beschriebene Einschwingverhalten ist auf dieser Zeitskala nicht mehr sichtbar. Offenbar sind die Populationen zeitabhängig.



Wir können jetzt noch überprüfen, ob die gemachten Annahmen sinnvoll waren. Im wesentlichen hatten wir aus der Lösung des Zweiniveausystems übernommen, daß das Verhältnis

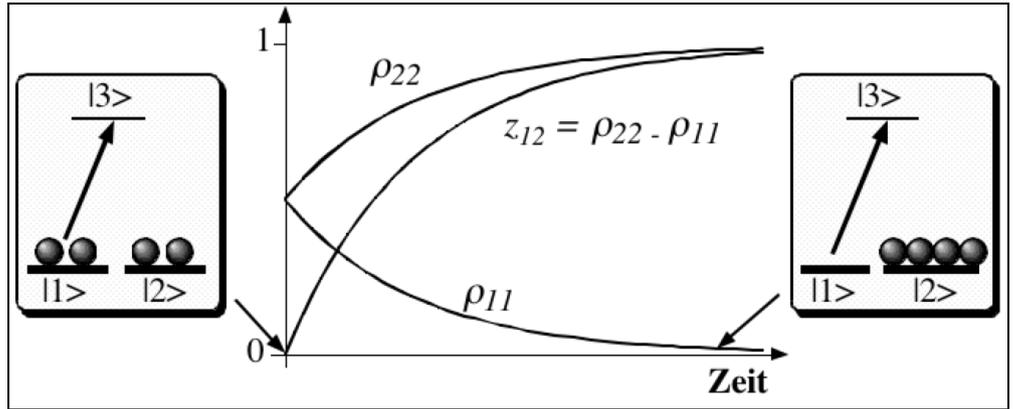
$$\rho_{33}/\rho_{11}$$



zwischen den Populationen im Dreiniveausystem gleich bleibt wie für das Zweiniveausystem bestimmt. Eine numerische Integration der Bewegungsgleichungen für das volle System bestätigt diese Annahme: Obwohl die Population ρ_{33} durch das optische Pumpen abnimmt bleibt das Verhältnis ρ_{33}/ρ_{11} in guter Näherung konstant. Der Wert von 0.004 entspricht der Voraussage durch die Lösung des Zweiniveausystems:

$$\rho_{33}/\rho_{11} = \frac{\omega_x^2}{2\Gamma_1 \Gamma_2} = 0.04/(2 \cdot 5) = 0.004 .$$

Unter den hier gemachten Annahmen wird also die gesamte atomare Population vom Zustand 1 in den Zustand 2 gebracht. Das System befindet sich anfänglich im thermischen Gleichgewicht, d.h. beide Grundzustände sind zu 50% besetzt. Unter dem Einfluß des optischen Pumpens wird eine ungleiche Besetzung erzeugt. Die Populationsdifferenz z_{12} nimmt somit von 0 auf 1 zu.



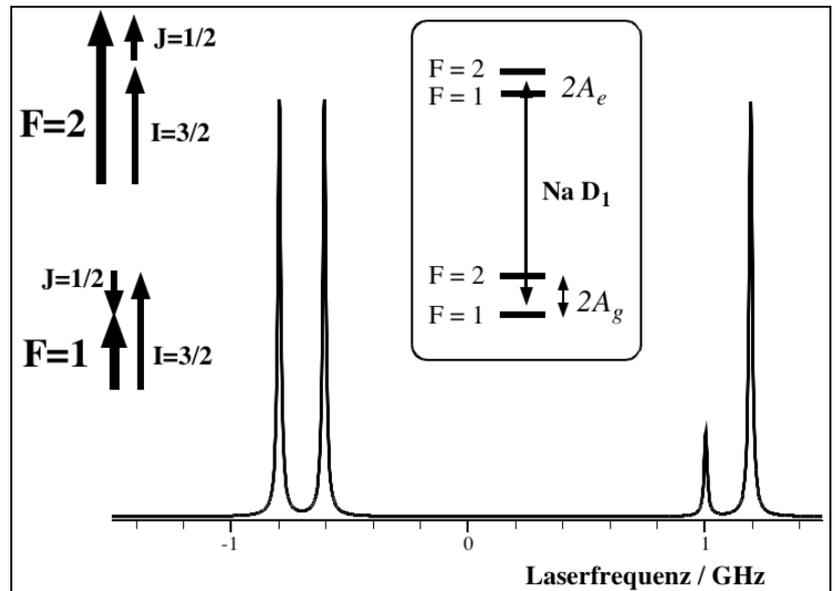
3.2.5 Spektrale Selektion

Optisches Pumpen tritt auf wenn mehrere Grundzustände vorhanden sind und nicht alle an den Laser koppeln.

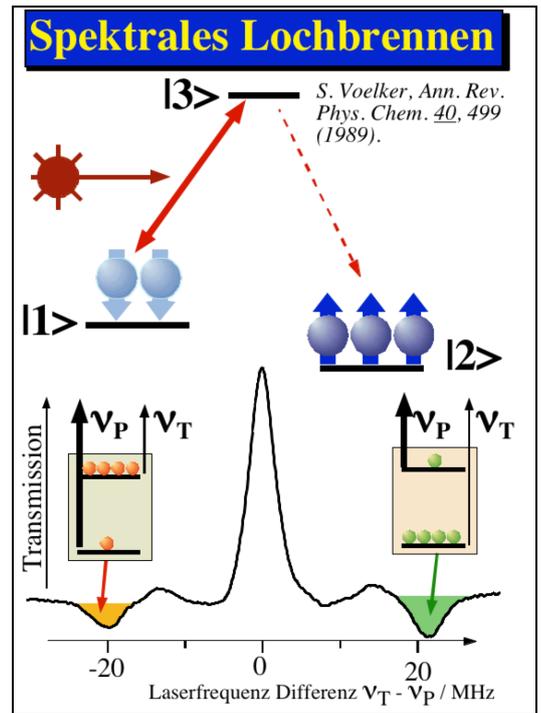
Dies ist z. B. dann gegeben, wenn die Grundzustände nicht entartet sind und der Laser schmalbandig ist, so daß er nur nicht mit allen Übergängen resonant ist. Dies entspricht zum Beispiel dem Hyperfeinpumpen. Dieses tritt u.a. in allen Alkaliatomen auf: die Hyperfeinwechselwirkung spaltet die Grundzustände auf.

Z: nicht entartete Zustände

Beim Natrium z.B. beträgt diese Aufspaltung 1.8 GHz, beim Cäsium 9 GHz. Ein schmalbandiger Laser koppelt somit nur an einen der Übergänge vom Grundzustand in einen elektronisch angeregten Zustand. In einem solchen System ist es möglich, alle Atome in einen bestimmten Hyperfeinzustand zu pumpen: indem man eine der beiden niederfrequenten Linien bestrahlt werden nur Atome im $F=2$ Zustand angeregt, so daß längerfristig alle im $F=1$ Zustand landen.



Ähnliche Effekte treten auch in Festkörpern auf. Sie werden dann eher als spektrales Lochbrennen bezeichnet. Als Beispiel betrachten wir wiederum ein System, das im Grundzustand aufgespalten ist. Wenn wir auf dem Übergang 13 einstrahlen und alle Atome in den Zustand 2 bringen sollte offenbar die Absorption auf der Laserfrequenz abnehmen - umgekehrt sollte sie bei der Frequenz des Übergangs 2-3 zunehmen. Man kann dies überprüfen indem man einen zweiten Laser über das Spektrum fährt. Wenn man dies in einem Festkörper tut, so findet man i.a. eine inhomogen verbreiterte Linie, d.h. es gibt bei jeder Laserfrequenz eine Absorption. Wenn die Frequenz des Testlasers aber gleich der des Pumplasers, so nimmt die Absorption ab - die Transmission nimmt zu. Man bezeichnet dies als ein spektrales Loch in der inhomogen verbreiterten Resonanzlinie. In einem gewissen Abstand vom Loch findet man auch sogenannte Antilöcher - hier ist die Transmission reduziert, da die Anzahl Atome mit dieser Energie zugenommen haben. Der Abstand zwischen dem Loch und dem Antiloch entspricht gerade dem Energieunterschied zwischen den beiden Grundzuständen. Das Spektrum ist im allgemeinen symmetrisch, da beide Zustände gefüllt, resp. entleert werden können.



3.2.6 Polarisationsselektion

Auch wenn die Grundzustände die gleiche Energie aufweisen ist es häufig möglich, die Einstrahlung so zu wählen, daß nicht alle Zustände gleich stark an das Laserfeld koppeln. Die klassische Möglichkeit besteht in der Wahl der Polarisation: je nach Polarisation des Lichtes koppeln unterschiedliche Drehimpulszustände unterschiedlich stark an den Laser.

Z: entartete Grundzustände

Ein einfaches Beispiel dafür sind wieder die Alkaliatome, wobei wir dabei den Kernspin vernachlässigen. Damit besitzt das Atom im Grundzustand ein einzelnes s-Elektron, also einen Gesamtdrehimpuls $J=1/2$: Der Elektronenspin kann parallel oder antiparallel zur Quantisierungsachse orientiert sein. Wenn wir einen elektronisch angeregten Zustand wählen, der ebenfalls einen Drehimpuls $J'=1/2$ aufweist, so haben wir insgesamt 4 mögliche Zustände. Aufgrund der Drehimpulserhaltung bei der Absorption von Licht kann somit zirkular polarisiertes Licht nur die Übergänge 1-4 oder 2-3 treiben, während Licht, das parallel zur Quantisierungsachse polarisiert ist, an die Übergänge 1-3 und 2-4 koppelt.

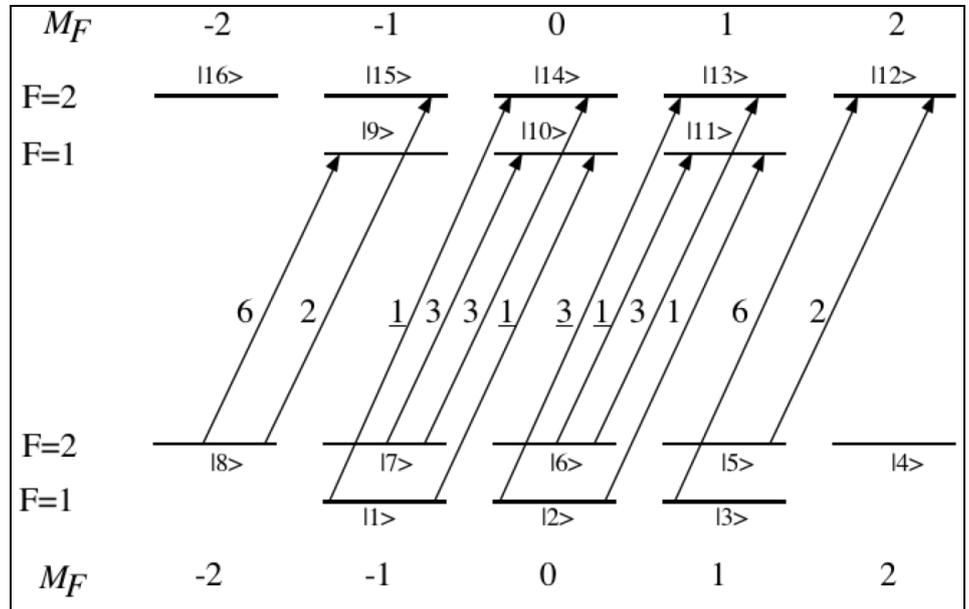
Z: $J=1/2, J'=1/2$

Pumpen mit σ_+ -Licht ergibt in diesem Fall eine vollständige Polarisation, d.h. alle Atome werden in den Zustand 2 ge-

Z: Pumpen mit σ_+

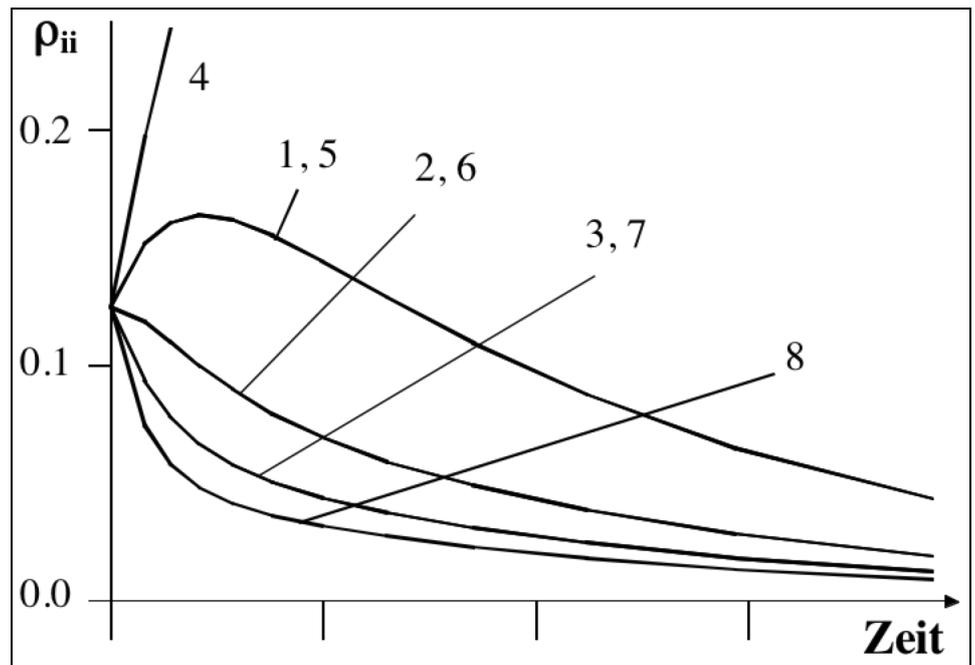
bracht, welcher nicht an das Laserfeld koppelt. Es ist somit auf diese Weise möglich, alle atomaren Spins parallel auszurichten. Dies Möglichkeit hat auch große praktische Bedeutung, da man damit eine Polarisation erreicht, die um viele Größenordnungen über der thermischen Polarisation liegt. So kann man damit z.B. die Empfindlichkeit für die magnetische Resonanz um bis zu einen Faktor 10^6 erhöhen.

Wenn wir jetzt wieder das vollständige Termschema des Natriums betrachten, finden wir, daß ähnliche Effekte auftreten: Aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung spalten sowohl der Grundzustand wie auch der angeregte Zustand in zwei Multiplets mit unterschiedlichem Gesamtdrehimpuls auf: $F=1$, resp. $F=2$. Diese Multiplets sind jeweils $2F+1$ fach entartet.



Wird dieses System mit zirkular polarisiertem Licht bestrahlt, so gilt die Auswahlregel, daß sich die magnetische Quantenzahl m_F um eins erhöhen muß. Die meisten Grundzustände koppeln deshalb an zwei angeregte Zustände im $F=1,2$ Multiplet. Die $m_F=1$ Zustände können aber nur noch an das $F=2$ Multiplet koppeln, der $m_F=2$ Zustand gar nicht mehr, da der angeregte Zustand keinen $m_F=3$ Zustand enthält.

Wenn ein solches System sich im thermischen Gleichgewicht befindet, ist die Population aller 8 Grundzustände etwa gleich, bei 0.125. Wird das System mit Licht bestrahlt, können alle außer dem $F=2$, $m_F=2$ Zustand Licht absorbieren, so daß ihre Population abnimmt. Die angeregten Atome fallen jedoch wieder in den Grundzustand zurück, wobei die



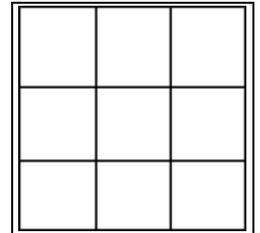
Verteilung bei der spontanen Emission auch durch Stöße beeinflusst werden kann. Wenn man den experimentell realisierbaren Fall annimmt, daß die zurückfallenden Atome alle Unterzustände gleichmäßig bevölkern, so erhält man zu Beginn eine Zunahme der Populationen der Zustände 1, 4 und 5, während alle anderen abnehmen. Längerfristig gehen die Zustände 1 und 5 ebenfalls zurück, während sich alle Atome im Zustand 4, welcher kein Licht absorbiert, ansammeln.

3.3 Effekt auf Kohärenzen

3.3.1 Bewegungsgleichung

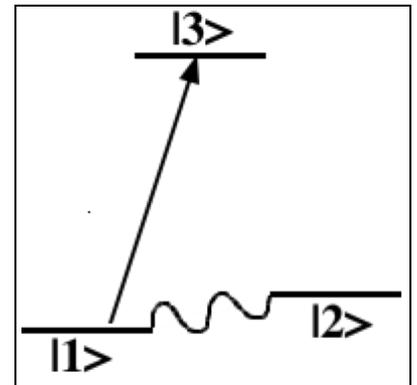
Wenn wir die Bewegungsgleichungen des Dreiniveausystems analysieren müssen wir nicht alle möglichen Anfangsbedingungen analysieren.

Wir können die Linearität der Schrödingergleichung nutzen: Wir können den Dichteoperator in einige geeignete Teile aufspalten und deren Zeitentwicklung analysieren. Der allgemeine Fall kann anschließend als Superposition der Einzelfälle diskutiert werden.



Wie wir gesehen hatten brauchen wir die Anfangspopulation des Zustandes $|2\rangle$ nicht zu berücksichtigen, da sie durch den Hamiltonoperator nicht beeinflusst wird. Wir konnten außerdem die Populationsdifferenz $\rho_{11}-\rho_{33}$ und die Kohärenzen x_{13} relativ einfach behandeln, indem wir sie auf das Zweiniveausystem zurückführten.

Die einzigen Terme im Dichteoperator, die wir noch diskutieren müssen, sind die Kohärenzen S_{xy}^{12} und S_{xy}^{23} , also die Elemente, welche das Untersystem $|1\rangle$ - $|3\rangle$, welches vom Laser getrieben wird, an den "zusätzlichen" Zustand $|2\rangle$ koppeln. Wie wir sehen werden ergeben sich dabei qualitativ neue Konsequenzen. Insbesondere ist es hier nicht mehr möglich, die Behandlung des Zweiniveausystems als Grundlage zu verwenden.

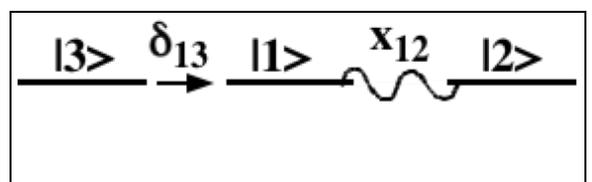


Für die explizite Behandlung diskutieren wir nur einen dieser Fälle und wählen als Beispiel

$$\rho_0 = x_{12} S_x^{(12)},$$

also eine Kohärenz im Grundzustand.

Für die Diskussion der Bewegungsgleichung betrachten wir nur die einfachste Version des Hamiltonoperators, indem wir annehmen daß das Laserfeld resonant einstrahlt ($\delta_{13} = 0$), so daß die



beiden Zustände $|1\rangle$ und $|3\rangle$ im rotierenden Koordinatensystem entartet sind. Außerdem wählen wir wie in der Einleitung gezeigt das Bezugssystem so, daß der Zustand $|2\rangle$ ebenfalls die gleiche Energie besitzt. Der Hamiltonoperator enthält dann nur noch den Kopplungsterm

$$\mathcal{H}^r = - \omega_{13} S_x^{(13)}.$$

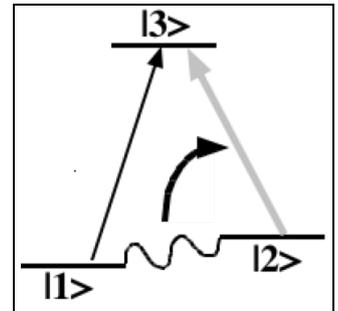
Mit den anfänglich gegebenen Vertauschungsrelationen für Single Transition Operatoren

$$[S_x^{(rt)}, S_x^{(st)}] = i/2 S_y^{(rs)}$$

finden wir für die explizite Form der Schrödingergleichung

$$d/dt \rho_0 = -i [\mathcal{H}, \rho_0] = -i [-\omega_{13} S_x^{(13)}, x_{12} S_x^{(12)}] = \text{Error!} \omega_{13} x_{12} S_y^{(23)}.$$

Offenbar erzeugt der Laser aus der Grundzustandskohärenz eine optische Kohärenz im Übergang 23. Die einfallende Laserwelle erzeugt somit eine Kohärenz in einem Übergang, mit dem sie nicht resonant ist. Dies ist ein qualitativ neues Ergebnis und stellt neben dem optischen Pumpen das zweite Resultat dar, das nicht mit dem Zweiniveaumodell verträglich ist.



3.3.2 Stationäre Lösung

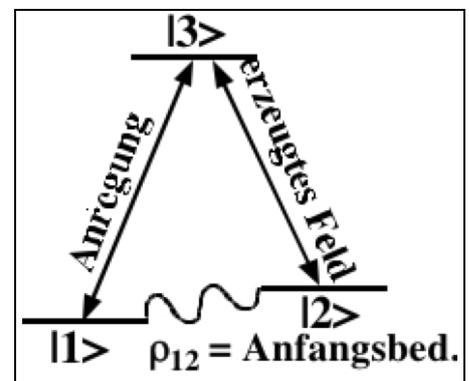
Wir interessieren uns hier zunächst nur für die stationäre Lösung der Bewegungsgleichung. Auch dafür ist eine vollständige Lösung etwas aufwendig, da wir dafür das gesamte Dreiniveausystem lösen müßten. Wir beschränken uns deshalb auf den Fall wo der Dichteoperator nur leicht gestört wird. Wir können dann annehmen, daß das Element ρ_{12} gleich dem Anfangswert $\rho_{0,12}$ bleibt und müssen nur den stationären Wert von y_{23} berechnen. Die Bewegungsgleichung für die enthält außer dem Hamilton'schen Beitrag auch die Phasenrelaxation der optischen Kohärenzen:

$$d/dt y_{23} = \text{Error!} \omega_{13} x_{12} - \gamma y_{23}.$$

Offenbar ist die stationäre Kohärenz in diesem Übergang also

$$y_{23\infty} = \frac{1}{2} \frac{\omega_{13}}{\gamma} x_{12}.$$

Im Laborsystem stellt diese Kohärenz einen oszillierenden elektrischen Dipol dar und somit eine Quelle für eine optische Welle. Diese Welle ist aber gegenüber der einfallenden Welle in der Frequenz verschoben, wie man leicht sieht, wenn man das System im Laborsystem betrachtet: Der Energieunterschied zwischen der einfallenden Welle und der auslaufenden Welle entspricht gerade dem Energieunterschied zwischen den beiden Grundzuständen. Ein solcher Prozeß, bei dem die Photonen ihre



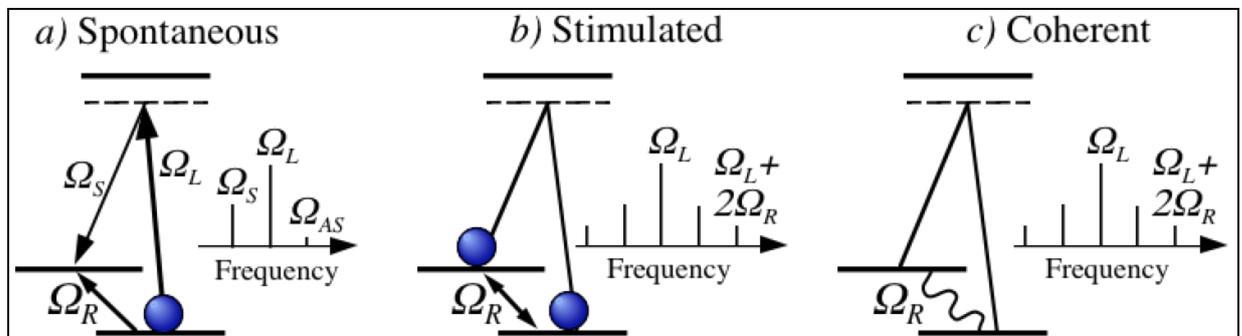
Energie ändern, wird als Ramanprozeß bezeichnet. Wesentlich ist hier auch, daß die optische Welle eine bestimmte Phase aufweist (es wurde y_{23} erzeugt, nicht x_{23}), welche durch die Phase der Kohärenz und der einlaufenden Laserwelle bestimmt wird.

In der Sprache der nichtlinearen Optik wird ein solcher Prozess als Dreiwellen-Mischprozess bezeichnet: zwei einlaufende (eine optische und eine RF-Welle) werden zu einer auslaufenden (optischen) Welle gemischt.

Z: Wellenmischprozess

3.3.3 Ramanprozesse

Die Bezeichnung erinnert an den indischen Physiker Sir **Chandrasekhara Venkata Raman** (rä'men; 1888-1970). Er erhielt 1930 den Nobel Preis für die Entdeckung des Raman Effekts.



Der ursprünglich von Raman entdeckte Prozess, welcher heute als spontane Ramanstreuung bezeichnet wird, kann als inelastische Streuung von Photonen an einer Probe verstanden werden. In den meisten Fällen wird ein Teil der Photonenenergie in vibratorische Energie des Materials umgewandelt. Das gestreute Licht hat somit eine niedrigere Energie als das einfallende Licht. Der umgekehrte Prozess, bei dem also die Energie des gestreuten Photons höher ist als die des einfallenden Photons, ist dann möglich, wenn das System Moleküle in vibratorisch angeregten Zuständen enthält. Im allgemeinen entstehen somit zwei Seitenbänder, wobei das energetisch niedriger liegende als Stokes-Seitenband, das energetisch höher liegende als anti-Stokes Seitenband bezeichnet wird. Die entsprechenden Prozesse heißen Stokes- und anti-Stokes Prozess. Da sich mehr Moleküle im vibratorischen Grundzustand befinden als im vibratorisch angeregten Zustand ist der Stokes-Prozess häufiger als der Anti-Stokes Prozess und das Stokes-Seitenband intensiver als das anti-Stokes Seitenband.

Bei hoher Laserintensität kann ein weiterer Ramanprozess auftreten, der als stimulierte Ramanstreuung bezeichnet wird: das Seitenband wird, wie bei einem Laser, stimuliert verstärkt und deshalb sehr viel intensiver. Die Intensität der Seitenbänder ist nicht mehr proportional zur Intensität des einfallenden Lichtes wie beim spontanen Prozess, sondern wächst nichtlinear an. Außerdem entstehen Seitenbänder höherer Ordnung.

Die kohärente Ramanstreuung hat wiederum etwas andere Eigenschaften. Der Name entsteht dadurch, daß das Seitenband oder die Seitenbänder eine feste Phasenbeziehung zum Träger aufweist, im Gegensatz zur stimulierten Streuung, wo die Phase zufällig ist. Die Intensität des Seitenbandes ist, wie man aus der Herleitung sieht, proportional zur Intensität des anregenden Laserfeldes. Außerdem ist der Prozess symmetrisch bezüglich Vorzeichen der Energiedifferenz.

Kohärente Ramanstreuung wurde zunächst von (J.A. Giordmaine and W. Kaiser, 'Light scattering by coherently driven lattice vibrations', Phys. Rev. 144, 676-688 (1966)) diskutiert, wobei sie sich an Molekülen orientierten.

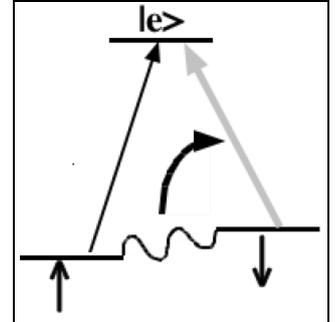
3.3.4 Anwendung

Man kann sich jetzt natürlich die Frage stellen, ob dieser Prozeß einfach ein quantenmechanisches Kuriosum darstellt, oder ob man ihn auch nutzbringend anwenden kann. Es stellt sich heraus, daß es tatsächlich verschiedene Anwendungen gibt. Die wichtigste, die wir intensiv nutzen, ist die Möglichkeit, damit Kohärenz aus einem Übergang in einen anderen Übergang zu transferieren, wo sie besser detektiert werden kann.

Dies ist z.B. dann der Fall, wenn sich die Kohärenz zunächst in einem verbotenen Übergang befindet, also einem Übergang, für den die Übergangsmatrixelemente verschwinden.

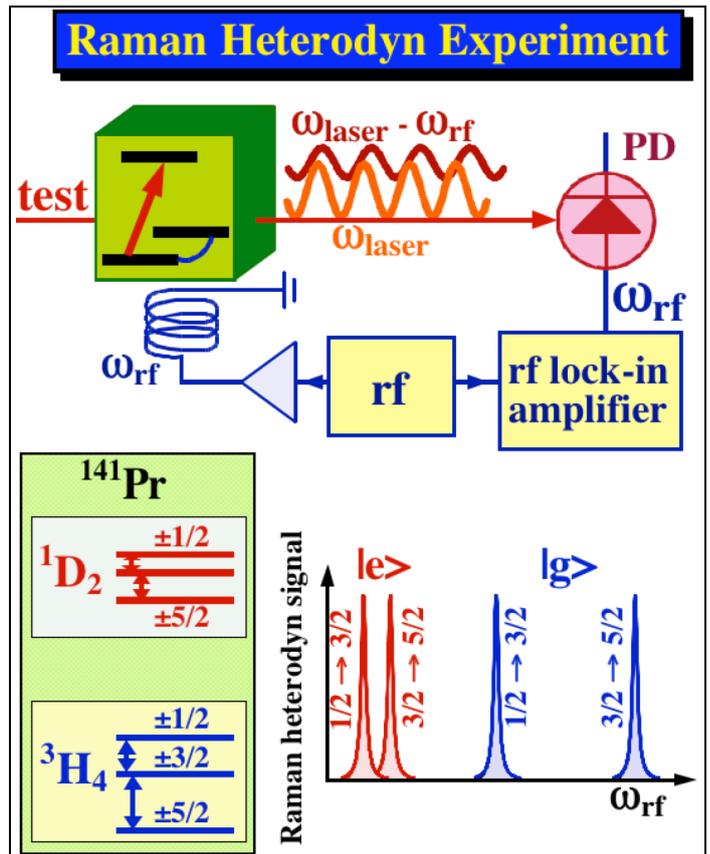
Z: Paritäten, Transfer

Ein anderer wichtiger Fall ist der, daß die Kohärenz sich in einem Übergang zwischen zwei unterschiedlichen Spinzuständen befindet. Dann handelt es sich um einen NMR oder ESR Übergang.



In diesem Fall kann der Übergang magnetisch-Dipol erlaubt sein. Die Kohärenz kann dann z.B. durch Einstrahlen eines Radiofrequenzfeldes erzeugt werden, und es ist möglich, sie durch eine direkte Messung des magnetischen Dipolmomentes, z.B. über den Faraday Effekt nachzuweisen.

Es gibt aber auch die Möglichkeit, sie über kohärente Ramanstreuung nachzuweisen. Wie wir gesehen haben wird dann einem resonanten Laserstrahl ein frequenzverschobenes Seitenband aufgeprägt. Dieses kann z.B. dadurch nachgewiesen werden, daß man es zusammen mit dem ursprünglichen Laserstrahl auf einen Photodetektor fallen läßt. Da dieser ein Signal erzeugt, das proportional zum Quadrat des elektrischen Feldes ist, erzeugen die beiden gegeneinander frequenzverschobenen Felder ein Schwebungssignal, dessen Frequenz gerade gleich der Differenzfrequenz zwischen den beiden optischen Feldern und damit gleich der eingestrahlenen Radiofrequenz ist. Dieses Schwebungssignal kann relativ einfach nachgewiesen werden indem man einen phasenempfindlichen Nachweis mit der Radiofrequenz als Referenz durchführt.



In diesem Beispiel verwenden wir es für den Nachweis der magnetischen Resonanz an ^{141}Pr . Dieser Kern hat einen Kernspin von $5/2$. Aufgrund der Wechselwirkung zwischen dem Kernquadrupolmoment und dem elektrischen Feldgradienten spalten die Kernspin-zustände auf, bleiben aber paarweise entartet. Magnetische Dipolübergänge sind erlaubt für Zustände mit $\Delta m = \pm 1$, d.h. von $\pm 1/2$ nach $\pm 3/2$ und $\pm 3/2$ nach $\pm 5/2$. Diese können nachgewiesen werden indem man ein Radiofrequenzfeld einstrahlt und gleichzeitig ein Laserfeld auf einen optischen Übergang einstrahlt. Der Grundzustand ergibt in diesem Fall zwei Übergänge.

Der gleiche Prozeß kann aber auch mit Kohärenzen im elektronisch angeregten Zustand ablaufen. Man erhält deshalb zwei weitere Übergänge aus dem elektronisch angeregten Zustand.

3.3.5 Weitere Prozesse

Abschließend soll hier noch erwähnt werden, daß diese Analyse natürlich nicht vollständig war: wir haben die Erzeugung optischer Polarisation im Übergang 23 diskutiert,

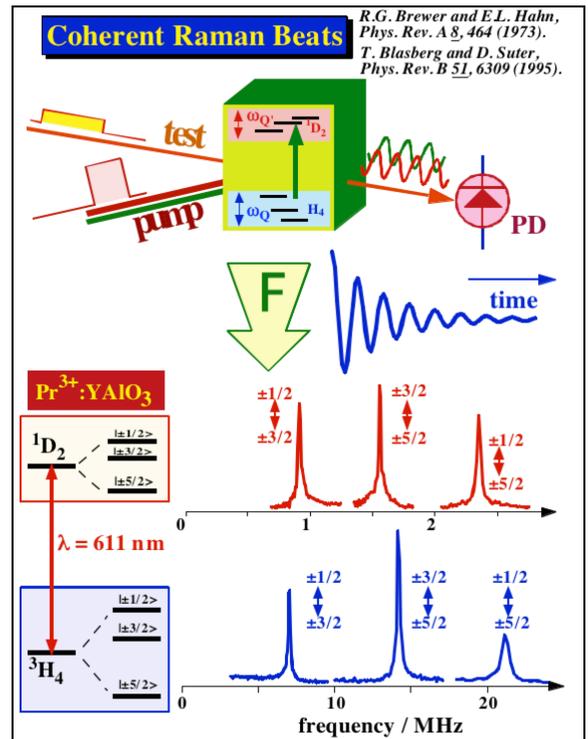
aber z.B. den umgekehrten Prozess, also die Rückwirkung auf die Kohärenz im Grundzustand, vernachlässigt.

Er tritt natürlich ebenfalls auf und wird als Raman-Anregung bezeichnet wenn er dazu verwendet wird, zwischen den beiden Zuständen eine Kohärenz zu erzeugen. Man verwendet dafür zwei Laser, welche jeweils an einen optischen Übergang koppeln, oder einen Laser, der an beide koppelt. Bei diesem Prozess entsteht also ebenfalls Kohärenz in einem Übergang, der nie an ein externes Feld gekoppelt war.

Z: Raman-Anregung

Solche Ramanprozesse werden z.B. in der Laserkühlung verwendet um zu sehr tiefen Temperaturen zu gelangen. Wir verwenden sie für die optische Anregung vom magnetischen Resonanzübergängen. Man benötigt dafür z.B. einen Laserpuls, der mit zwei optischen Übergängen gleichzeitig resonant ist.

Die auf diese Weise erzeugte Kohärenz kann wiederum über kohärente Ramanstreuung nachgewiesen werden. Der wesentliche Unterschied zwischen diesem Experiment und dem Raman-Heterodyn Experiment ist somit, daß die Anregung im einen Fall durch eine Radiofrequenzfeld, im anderen durch einen Laserpuls geschieht. Bei einer solchen gepulsten Anregung erhält man außerdem ein oszillierendes Signal, welches zunächst Fouriertransformiert werden muß, bevor es als Spektrum interpretiert werden kann.



Während die Raman-Anregung Kohärenz erzeugt, haben Laserpulse auch auf schon vorhandene Kohärenzen einen wesentlichen Einfluß. So ändern sie ihre Präzessionsfrequenz, was als "light shift" bezeichnet wird, und ihre Dämpfung wird erhöht.

