Kapitel 3

Quantenoptik makroskopischer Körper

Nachdem wir die Grundlagen der Feldquantisierung in Anwesenheit makroskopischer Körper erarbeitet haben, sind wir nun in der Lage, deren Einfluss auf die Propagation nichtklassischen Lichts sowie auf die Dynamik von Atomen und Molekülen in der Nähe von Oberflächen zu beschreiben. Der wesentliche Vorteil dieser Beschreibungsweise ist, dass keine mikroskopische Beschreibung der makroskopischen Körper notwendig ist, sondern deren Eigenschaften ausschließlich über (experimentell messbare!) Responsefunktionen wie Permittivitäten, Brechungsindizes, Reflexionskoeffizienten etc. in die Quantentheorie eingehen.

3.1 Lichtpropagation durch Medien

In der Vorlesung 'Grundlagen der Photonik' hatten wir gesehen, dass Licht in Quantenzuständen präpariert werden kann, deren Photonenstatistik keine klassische Entsprechung haben.¹ Solche nichtklassischen Zustände besitzen Quanteneigenschaften, die in hochauflösender Spektroskopie oder der Quanteninformationsverarbeitung ihre Anwendung finden. Wir wollen uns hier der Frage zuwenden, wie diese nichtklassischen Eigenschaften bei der Propagation durch Medien beeinflusst werden.

¹Wir hatten dazu spezielle operative Kriterien wie Squeezing und Antibunching betrachtet. In der Vorlesung 'Grundlagen der Photonik' von Prof. Vogel werden allgemeine Kriterien für die Nichtklassizität angegeben.

Von einem in einem kohärenten Zustand $|\alpha\rangle$ präparierten (Einmoden-) Lichtfeld wissen wir, dass dessen Intensität durch $\langle \hat{I}(\mathbf{r}) \rangle = \omega^2 |\mathbf{A}(\mathbf{r})|^2 |\alpha|^2$ gegeben ist. Aus der klassischen Elektrodynamik ist bekannt, dass die Intensität beim Durchgang durch ein Medium nach dem Lambert-Beer-Gesetz exponentiell mit der Propagationslänge abfällt, $I(z) = I(0)e^{-\beta z}$, wobei der Extinktionskoeffizient β über $\beta = \kappa(\omega)\omega/c$ mit dem Imaginärteil $\kappa(\omega)$ des Brechungsindex zusammenhängt. Die kohärenten Zustände waren nun genauso definiert, dass sie den klassischen Lichtzuständen am nächsten kommen. Damit können wir durchaus annehmen, dass die Quanteneigenschaften der kohärenten Zustände beim Durchgang durch ein Medium erhalten bleiben und nur die kohärente Amplitude verändert wird,²

$$|\alpha\rangle \mapsto |\alpha e^{-\beta z/2}\rangle. \tag{3.1}$$

Interessanter wird es, wenn wir uns Superpositionen kohärenter Zustände der Form $|\psi\rangle \propto |\alpha\rangle + |-\alpha\rangle$ ansehen. Solche Zustände haben kein klassisches Pendant, da ihre Wignerfunktion³ in einigen Bereichen des Phasenraumes negativ wird, was als Zeichen von Nichtklassizität gewertet wird. Der dazugehörige Dichteoperator besteht aus Diagonaltermen der Form $|\pm \alpha\rangle\langle\pm\alpha|$, die sich sicherlich ähnlich wie einzelne kohärente Zustände verhalten werden, aber auch aus Nichtdiagonaltermen der Form $|\pm \alpha\rangle\langle\mp\alpha|$, die aus der kohärenten Superposition stammen. Eine klassische Überlegung des Propagationsverhaltens wird hier nicht weiterhelfen, sondern eine Quantentheorie wird vonnöten sein, um die Ausbreitung von Quantenzuständen des Lichts zu erklären.

3.1.1 Input-output-Relationen ohne Verluste

Zur Vorbereitung auf die Theorie der Lichtausbreitung durch verlustbehaftete Medien wollen wir zunächst den einfacheren Fall von verlustlosen Materialien untersuchen. Zur Vereinfachung stellen wir uns eine effektiv eindimensionale Situation vor, in der linear polarisiertes Licht senkrecht auf eine planparallele Platte der Dicke d und dem (reellen) Brechungsindex n auftrifft (Abb. 3.1). Der Operator des elektrischen Feldes wird hier zu einem skalaren

²Wir werden im Verlauf dieses Kapitels sehen, dass dem tatsächlich so ist.

 $^{^3{\}rm Zur}$ Definition der Wignerfunktion und anderer Quasiwahrscheinlichkeitsverteilungen siehe Vorlesung 'Grundlagen der Quantenoptik' von Prof. Vogel.



Abbildung 3.1: Modell eines verlustloses Strahlteiler, modelliert durch ein planares Schichtsystem der Dicke d.

Operator

$$\hat{E}(x) = i \int dk \, c |k| A(k, x) \hat{a}(k) + \text{h.c.},$$
(3.2)

wobei die skalaren Modenfunktionen A(k, x) der Helmholtzgleichung

$$\frac{d^2}{dx^2}A(k,x) + n^2(x)k^2A(k,x) = 0$$
(3.3)

genügen. Der Brechungsindex n(x) ist hier definiert als n(x) = n, $|x| \le d/2$ bzw. n(x) = 1, |x| > d/2. Die Lösungen dieser Helmholtzgleichung sind wieder ebene Wellen, die analog zu den quantenmechanischen Wellenfunktionen an einer Potentialstufe konstruiert werden können.

Wenn eine von links einlaufende ebene Welle e^{ikx} (k > 0) auf die Barriere trifft, so wird sie in einen reflektierten Anteil $R(\omega)e^{-ikx}$ und einen transmitterten Anteil $T(\omega)e^{ikx}$ aufgeteilt. Analog wird eine von rechts (k < 0)auftreffende ebene Welle e^{ikx} in eine reflektierte und eine transmitterte Welle mit Amplituden $R'(\omega)e^{-ikx}$ und $T'(\omega)e^{ikx}$ aufgeteilt (siehe Abb. 3.2). Die Modenfunktionen erhält man demnach zu

$$A(k,x) = \sqrt{\frac{\hbar}{4\pi\varepsilon_0\omega A}} \begin{cases} e^{ikx} + R(\omega)e^{-ikx} & x \le -\frac{d}{2} \\ T(\omega)e^{ikx} & x \ge \frac{d}{2} \end{cases} \qquad k > 0, \quad (3.4a)$$

$$A(k,x) = \sqrt{\frac{\hbar}{4\pi\varepsilon_0\omega A}} \begin{cases} T'(\omega)e^{ikx} & x \le -\frac{d}{2} \\ e^{ikx} + R'(\omega)e^{-ikx} & x \ge \frac{d}{2} \end{cases} \qquad k < 0, \quad (3.4b)$$

Abbildung 3.2: Eine ebene Welle e^{ikx} mit k > 0 (links) bzw. k < 0 (rechts) trifft auf einen Strahlteiler von links bzw. rechts und teilt sich in reflektierte und transmitterte Anteile.

wobei die Transmissions- und Reflexionskoeffizienten von den Details des Strahlteilers abhängen.⁴

Aus den Gleichungen (3.4a) und (3.4b) liest man ab, dass die Modenfunktionen in einlaufende und auslaufende ebene Wellen aufgeteilt werden können. Setzt man diese wieder in die Definition des Feldstärkeoperators ein, kann man das elektrische Feld selbst in einlaufende und auslaufende Felder zerlegen. Bezeichnet man diese mit

$$\hat{E}_{\rm in}(x) = i \int_{0}^{\infty} d\omega \sqrt{\frac{\hbar\omega}{4\pi\varepsilon_0 cA}} \left[e^{ix\frac{\omega}{c}} \hat{a}_1(\omega) + e^{-ix\frac{\omega}{c}} \hat{a}_2(\omega) \right] + \text{h.c.}, \qquad (3.5a)$$

$$\hat{E}_{\text{out}}(x) = i \int_{0}^{\infty} d\omega \sqrt{\frac{\hbar\omega}{4\pi\varepsilon_0 cA}} \left[e^{ix\frac{\omega}{c}} \hat{b}_1(\omega) + e^{-ix\frac{\omega}{c}} \hat{b}_2(\omega) \right] + \text{h.c.}, \qquad (3.5b)$$

so liest man durch Vergleich mit Gl. (3.4a) und (3.4b) die Beziehungen

$$\hat{b}_1(\omega) = T(\omega)\hat{a}_1(\omega) + R'(\omega)\hat{a}_2(\omega)$$
 (3.6a)

$$\hat{b}_2(\omega) = R(\omega)\hat{a}_1(\omega) + T'(\omega)\hat{a}_2(\omega)$$
 (3.6b)

zwischen den photonischen Amplitudenoperatoren der einlaufenden und auslaufenden Wellen ab. Dies sind die sogenannten *input-output-Relationen* für die photonischen Amplitudenoperatoren, die sich offensichtlich auch in Matrixform als $\hat{\mathbf{b}}(\omega) = \mathbf{T}(\omega) \cdot \hat{\mathbf{a}}(\omega)$ schreiben lässt.

Die Transmissions- und Reflexionskoeffizienten von beiden Seiten sind allerdings nicht unabhängig voneinander. Wenn die Amplitudenoperatoren am

⁴Siehe auch das Kapitel zu den Fresnelkoeffizienten.

Eingang bosonische Operatoren waren, dann müssen es auch die Operatoren am Ausgang sein, also muss gelten

$$\left[\hat{b}_{1}(\omega), \hat{b}_{1}^{\dagger}(\omega)\right] := 1 = |T(\omega)|^{2} + |R'(\omega)|^{2},$$
 (3.7a)

$$\left[\hat{b}_{2}(\omega), \hat{b}_{2}^{\dagger}(\omega)\right] := 1 = |T'(\omega)|^{2} + |R(\omega)|^{2},$$
 (3.7b)

$$\left[\hat{b}_2(\omega), \hat{b}_1^{\dagger}(\omega)\right] := 0 = T^*(\omega)R(\omega) + R'^*(\omega)T'(\omega).$$
(3.7c)

Die beiden Gleichungen (3.7a) und (3.7b) implizieren Photonenzahlerhaltung, während Gl. (3.7c) eine Phasenbeziehung zwischen den Koeffizienten liefert, speziell gilt |T| = |T'| und |R| = |R'|. Die Phasen können nun beispielsweise so gewählt werden, dass $T' = T^*$ und $R' = -R^*$ ist. Die Transmissionsmatrix $T(\omega)$ nimmt also die Form

$$\boldsymbol{T}(\omega) = \begin{pmatrix} T(\omega) & R(\omega) \\ -R^*(\omega) & T^*(\omega) \end{pmatrix}$$
(3.8)

an. Die input-output-Relationen entsprechen also einer unitären Transformation.

Quantenzustandstransformation

Die Beziehung (3.6a) ist zunächst nur eine Relation zwischen den Amplitudenoperatoren. Die Transformation von Quantenzuständen wird darauf aufbauend wie folgt realisiert. Der Dichteoperator $\hat{\rho}$ kann als Funktion der Amplitudenoperatoren angesehen werden, damit wird $\hat{\rho}_{in} \equiv \hat{\rho}_{in}[\hat{\mathbf{a}}(\omega), \hat{\mathbf{a}}^{\dagger}(\omega)]$. Wenn wir einen solchen Dichteoperator gegeben haben, der funktional von den Amplitudenoperatoren der einlaufenden Felder abhängt, dann wollen wir diesen auch nach der Transformation am Strahlteiler in diesen Operatoren darstellen. Die input-output-Relationen geben uns nun an, wie diese Transformation aussieht. Wenn nun aber Operatoren wie $\hat{\mathbf{b}}(\omega) = \hat{U}^{\dagger}\hat{\mathbf{a}}(\omega)\hat{U}$ transformiert werden, so ändert sich ein Quantenzustand wie $\hat{\rho}_{out} = \hat{U}\hat{\rho}_{in}\hat{U}^{\dagger}$, also mit der inversen unitären Transformation. Damit erhalten wir die Vorschrift für die Quantenzustandstransformation als

$$\hat{\varrho}_{\text{out}}[\hat{\mathbf{a}}(\omega), \hat{\mathbf{a}}^{\dagger}(\omega)] = \hat{\varrho}_{\text{in}}[\boldsymbol{T}(\omega)^{+} \cdot \hat{\mathbf{a}}(\omega), \boldsymbol{T}^{T}(\omega) \cdot \hat{\mathbf{a}}^{\dagger}(\omega)].$$
(3.9)

Die jeweils inversen Transformationen von Operatoren und Zuständen sind nichts anderes als Konsequenzen der quantenmechanischen Betrachtungsweise. Im Schrödingerbild entwickeln sich die Zustände mit der Zeit und die Operatoren bleiben fest, während es im Heisenbergbild genau andersherum ist. Beide Bilder müssen aber zu denselben Erwartungswerten für Operatoren führen, deshalb gilt $\langle \hat{O}(t) \rangle = \langle \hat{U}^{\dagger} \hat{O} \hat{U} \hat{\varrho} \rangle = \langle \hat{O} \hat{U} \hat{\varrho} \hat{U}^{\dagger} \rangle$. Die inputoutput-Relationen (3.6a) entsprechen somit einer diskreten zeitlichen Entwicklung im Heisenbergbild, die Quantenzustandstransformation (3.9) dem Schrödingerbild.

Beispiele für Quantenzustandstransformationen

Als erstes Beispiel betrachten wir die Transformation kohärenter Zustände. Das elektromagnetische Feld, das auf dem Strahlteiler auftrifft, sei also in einem zweimodigen kohärenten Zustand präpariert, $|\alpha\rangle = |\alpha_1, \alpha_2\rangle$. Der dazugehörige Dichteoperator ist

$$\hat{\varrho}_{\rm in} = |\boldsymbol{\alpha}\rangle\langle\boldsymbol{\alpha}| = \hat{D}(\boldsymbol{\alpha})|0,0\rangle\langle0,0|\hat{D}^{\dagger}(\boldsymbol{\alpha}), \qquad (3.10)$$

wobei $\hat{D}(\boldsymbol{\alpha}) = \hat{D}(\alpha_1)\hat{D}(\alpha_2)$ der zweimodige kohärente Verschiebungsoperator ist,⁵ den wir in der Form

$$\hat{D}(\boldsymbol{\alpha}) = e^{\boldsymbol{\alpha}^T \cdot \hat{\mathbf{a}}^{\dagger} - \boldsymbol{\alpha}^+ \cdot \hat{\mathbf{a}}}$$
(3.11)

schreiben können. Wenden wir nun die Quantenzustandstransformation (3.9) an und ersetzen $\hat{\mathbf{a}}$ mit $T^+ \cdot \hat{\mathbf{a}}$ und $\hat{\mathbf{a}}^{\dagger}$ mit $T^T \cdot \hat{\mathbf{a}}^{\dagger}$, dann ist äquivalent dazu, die kohärente Amplitude $\boldsymbol{\alpha}$ durch $T \cdot \boldsymbol{\alpha}$ zu ersetzen, weil

$$e^{\boldsymbol{\alpha}^{T}\cdot\boldsymbol{T}^{T}\cdot\hat{\mathbf{a}}^{\dagger}-\boldsymbol{\alpha}^{+}\cdot\boldsymbol{T}^{+}\cdot\hat{\mathbf{a}}} = e^{(\boldsymbol{T}\cdot\boldsymbol{\alpha})^{T}\cdot\hat{\mathbf{a}}^{\dagger}-(\boldsymbol{T}\cdot\boldsymbol{\alpha})^{+}\cdot\hat{\mathbf{a}}}.$$
(3.12)

Damit wird der Verschiebungsoperator zu $\hat{D}(\boldsymbol{T} \cdot \boldsymbol{\alpha})$ und wir erhalten

$$\hat{\varrho}_{\text{out}} = |\boldsymbol{T} \cdot \boldsymbol{\alpha}\rangle \langle \boldsymbol{T} \cdot \boldsymbol{\alpha}| = |T\alpha_1 + R\alpha_2, -R^*\alpha_1 + T^*\alpha_2\rangle \langle T\alpha_1 + R\alpha_2, -R^*\alpha_1 + T^*\alpha_2|,$$
(3.13)

was besagt, dass ein zweimodiger kohärenter Zustand wieder in einen solchen übergeht, wobei die kohärenten Amplituden gerade wie die input-output-Relationen (3.6a) transformiert werden,

$$\alpha_1' = T\alpha_1 + R\alpha_2, \quad \alpha_2' = -R^*\alpha_1 + T^*\alpha_2.$$
(3.14)

Damit sehen wir, dass sich die kohärenten Zustände wie klassisches Licht verhalten, indem ihre Amplituden unabhängig voneinander transformiert werden.

⁵Dieser wurde in der Vorlesung 'Grundlagen der Photonik' definiert.

Ein weiteres Beispiel soll nun zeigen, dass sich nichtklassische Zustände gänzlich anders verhalten. Nehmen wir an, das elektromagnetische Feld am Eingang sei ein Produktzustand aus zwei Fockzuständen mit jeweils einem Photon, $|\psi_{in}\rangle = |1,1\rangle$. Unter Verwendung der Transformationmatrix (3.8) wird der transformierte Zustand am Ausgang zu

$$\begin{aligned} |\psi_{\text{out}}\rangle &= \hat{a}_{1}^{\dagger}\hat{a}_{2}^{\dagger}|0,0\rangle = (T\hat{b}_{1}^{\dagger} - R^{*}\hat{b}_{2}^{\dagger})(R\hat{b}_{1}^{\dagger} + T^{*}\hat{b}_{2}^{\dagger})|0,0\rangle \\ &= \left[TR(\hat{b}_{1}^{\dagger})^{2} - T^{*}R^{*}(\hat{b}_{2}^{\dagger})^{2} + \left(|T|^{2} - |R|^{2}\right)\hat{b}_{1}^{\dagger}\hat{b}_{2}^{\dagger}\right]|0,0\rangle \\ &= \sqrt{2}TR|2,0\rangle - \sqrt{2}T^{*}R^{*}|0,2\rangle + \left(|T|^{2} - |R|^{2}\right)|1,1\rangle. \end{aligned}$$
(3.15)

Im Gegensatz zum vorherigen Beispiel ist dies kein Produktzustand mehr, sondern im allgemeinen ein verschränkter Zustand.⁶ Insbesondere verschwindet für einen symmetrischen Strahlteiler mit $T = R = 1/\sqrt{2}$ die ursprüngliche $|1,1\rangle$ -Komponente und es verbleibt ein maximal verschränkter Bellzustand

$$|\psi_{\text{out}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|2,0\rangle - |0,2\rangle\right) .$$
 (3.16)

Dies ist ein Resultat quantenmechanischer Interferenz am Strahlteiler, bei der die quantenmechanischen Amplituden und nicht die Intensitäten aufaddiert werden. Diesen Interferenzeffekt von Photonen nennt man auch Hong-Ou-Mandel-Effekt.⁷

3.1.2 Absorbierende Strahlteiler

Die input-output-Relationen (3.6a) sind eine Konsequenz der Photonenzahlerhaltung am verlustlosen Strahlteiler und werden so an realistischen Objekten nicht gelten können, da in Anwesenheit von Absorption $|T|^2 + |R|^2 < 1$ gilt und damit die Unitarität der Transformation verletzt wird. Wir müssen hier also auf die makroskopische QED zurückgreifen und die input-output-Relationen aus der makroskopischen Felddarstellung mit den dynamischen Variablen $\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r}, \omega)$ herleiten.

 $^{^6{\}rm Zur}$ genauen Definition des Begriffes Verschränkung muss ich Sie auf die Vorlesung 'Grundlagen der Quantenoptik' verweisen.

⁷Zuerst experimentell gezeigt in C.K. Hong, Z.Y. Ou, and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **59**, 2044 (1987).

Wie schon zuvor beschränken wir uns auf eine eindimensionale Feldausbreitung. Der Operator des elektrischen Feldes ist somit

$$\hat{E}(x) = i\sqrt{\frac{\hbar}{\pi\varepsilon_0\mathcal{A}}} \int_0^\infty d\omega \int dx' \frac{\omega^2}{c^2} \sqrt{\varepsilon_{\mathrm{I}}(x',\omega)} G(x,x',\omega) \hat{f}(x',\omega) + \mathrm{h.c.} \quad (3.17)$$

mit der eindimensionalen Greenschen Funktion

$$-\frac{\partial^2}{\partial x^2}G(x,x',\omega) - \frac{\omega^2}{c^2}\varepsilon(x,\omega)G(x,x',\omega) = \delta(x-x').$$
(3.18)

Für ein homogenes Medium mit ortsunabhängiger Permittivitä
t $\varepsilon(\omega)$ ist die Lösung dieser Gleichung

$$G(x, x', \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk}{2\pi} \frac{e^{ik(x-x')}c^2}{\omega^2 \varepsilon(\omega) - c^2 k^2} = -\left[2i\frac{\omega}{c}n(\omega)\right]^{-1} \exp\left[i\frac{\omega}{c}n(\omega)|x-x'|\right]$$
(3.19)

mit $n(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)} = \eta(\omega) + i\kappa(\omega)$. Damit kann das elektrische Feld (3.17) in nach links bzw. rechts laufende ebene Wellen derart zerlegt werden, dass

$$\hat{E}(x) = i \int_{0}^{\infty} d\omega \sqrt{\frac{\hbar\omega}{4\pi\varepsilon_0 c\eta(\omega)\mathcal{A}}} \frac{\eta(\omega)}{n(\omega)}$$

$$\times \left[e^{i\eta(\omega)\omega x/c} \hat{a}_+(x,\omega) + e^{-i\eta(\omega)\omega x/c} \hat{a}_-(x,\omega) \right] + \text{h.c.}$$
(3.20)

gilt, wobei

$$\hat{a}_{\pm}(x,\omega) = i\sqrt{2\kappa(\omega)\omega/c} e^{\mp\kappa(\omega)\omega x/c} \int_{-\infty}^{\pm x} dx' e^{-in(\omega)\omega x'/c} \hat{f}(\pm x',\omega)$$
(3.21)

die räumlich veränderlichen Amplitudenoperatoren darstellen. Aus den Vertauschungsregeln für die dynamischen Variablen folgt für die Amplitudenoperatoren

$$[\hat{a}_{\pm}(x,\omega),\hat{a}_{\pm}(x',\omega')] = e^{-\kappa(\omega)\omega|x-x'|/c}\delta(\omega-\omega').$$
(3.22)

Insbesondere werden die Operatoren wieder die üblichen bosonischen Amplitudenoperatoren, wenn Absorption vernachlässigt werden kann ($\kappa(\omega) \mapsto 0$). Die räumlich veränderlichen Amplitudenoperatoren erfüllen die räumliche Langevingleichung

$$\frac{\partial}{\partial x}\hat{a}_{\pm}(x,\omega) = \mp \kappa(\omega)\frac{\omega}{c}\hat{a}_{\pm}(x,\omega) + \hat{F}_{\pm}(x,\omega)$$
(3.23)

mit den operatorwertigen Langevinrauschquellen

$$\hat{F}_{\pm}(x,\omega) = \pm i\sqrt{2\kappa(\omega)\omega/c} \, e^{\mp i\eta(\omega)\omega x/c} \hat{f}(x,\omega) \,. \tag{3.24}$$

Wie wir schon eingangs in Verbindung mit dem gedämpften harmonischen Oszillator gesehen haben, gilt für die Erwartungswerte

$$\langle \hat{a}_{\pm}(x,\omega) \rangle = \langle \hat{a}_{\pm}(x',\omega) \rangle e^{-\kappa(\omega)\omega|x-x'|/c}, \quad \pm x \mp x' \ge 0$$
(3.25)

für beliebige $\langle \hat{a}_{\pm}(x',\omega) \rangle$, wenn die Erwartungswerte der dynamischen Variablen verschwinden.

Im Falle eines Strahlteilers mit den Bezeichnungen wie in Abb. 3.1 ersetzen wir $\hat{a}_+(-d/2,\omega) \mapsto \hat{a}_1(\omega)$ und $\hat{a}_-(d/2,\omega) \mapsto \hat{a}_2(\omega)$ und finden unmittelbar deren Vertauschungsregeln

$$\left[\hat{a}_1(\omega), \hat{a}_1^{\dagger}(\omega')\right] = \left[\hat{a}_2(\omega), \hat{a}_2^{\dagger}(\omega')\right] = \delta(\omega - \omega')$$
(3.26)

sowie $[\hat{a}_1(\omega), \hat{a}_2^{\dagger}(\omega')] = 0$. Damit sind bisher nur die dynamischen Variablen außerhalb der Strahlteilerplatte abgedeckt. Für das Innere der Platte mit dem Brechungsindex $n(\omega)$ definieren wir die Operatoren

$$\hat{g}_{\pm}(\omega) = i \sqrt{\frac{\omega}{2c\lambda_{\pm}(d,\omega)}} e^{in(\omega)\omega d/(2c)} \int_{-d/2}^{d/2} dx' \left[e^{in(\omega)\omega x'/c} \pm e^{-in(\omega)\omega x'/c} \right] \hat{f}(x',\omega)$$
(3.27)

mit den Koeffizienten⁸

$$\lambda_{\pm}(d,\omega) = e^{-\kappa(\omega)\omega d/c} \left\{ \frac{\sinh[\kappa(\omega)\omega d/c]}{\kappa(\omega)} \pm \frac{\sin[\eta(\omega)\omega d/c]}{\eta(\omega)} \right\} .$$
(3.28)

Die Operatoren $\hat{g}_{\pm}(\omega)$ beschreiben nun ausschließlich Anregungen innerhalb der Platte. Per Konstruktion sind sie ebenfalls bosonische Variable, also gilt

$$\left[\hat{g}_{\pm}(\omega), \hat{g}_{\pm}^{\dagger}(\omega')\right] = \delta(\omega - \omega'), \quad \left[\hat{g}_{\pm}(\omega), \hat{g}_{\mp}^{\dagger}(\omega')\right] = 0.$$
(3.29)

⁸Für Details zu dieser Rechnung verweise ich auf T. Gruner and D.-G. Welsch, Phys. Rev. A **54**, 1661 (1996).

Die input-output-Relationen (3.6a) können nun dahingehend verallgemeinert werden, dass eine Verknüpfung der auslaufenden Amplitudenoperatoren $\hat{b}_1(\omega)$ und $\hat{b}_2(\omega)$ nicht nur mit den einlaufenden Amplitudenoperatoren $\hat{a}_1(\omega)$ und $\hat{a}_2(\omega)$, sondern auch mit den Operatoren der Plattenanregungen $\hat{g}_{\pm}(\omega)$ in der Form

$$\hat{\mathbf{b}}(\omega) = \mathbf{T}(\omega) \cdot \hat{\mathbf{a}}(\omega) + \mathbf{A}(\omega) \cdot \hat{\mathbf{g}}(\omega)$$
(3.30)

aufgeschrieben werden kann. Die Matrix $A(\omega)$ ist die charakteristische Absorptionsmatrix des Strahlteilers und setzt sich ebenfalls aus dem Brechungsindex und der Plattendicke zusammen. Da die auslaufenden Amplitudenoperatoren bosonischen Vertauschungsregeln genügen sollen, muss die Matrixrelation

$$\boldsymbol{T}(\omega) \cdot \boldsymbol{T}^{+}(\omega) + \boldsymbol{A}(\omega) \cdot \boldsymbol{A}^{+}(\omega) = \boldsymbol{I}$$
(3.31)

gelten, die die Unitaritätsbeziehung der Transmissionsmatrix ablöst.

Quantenzustandstransformation an absorbierenden Strahlteilern

Ausgehend von den input-output-Relationen (3.30) für absorbierende Strahlteiler wollen wir nun die dazugehörige Quantenzustandstransformation ableiten. Die Energieerhaltung (3.31) impliziert nun aber, dass keine unitäre Transformation für die elektromagnetischen Feldoperatoren allein gefunden werden kann. Andererseits besagt die Beziehung (3.31), dass die Photonenzahl bei Transmission, Reflexion und Absorption erhalten ist, so dass eine unitäre Transformation in einem größeren Hilbertraum, in dem sowohl die photonischen Amplitudenoperatoren als auch die Plattenoperatoren wirken, gefunden werden kann. Wir erweitern dazu unseren Satz von Operatoren um die Hilfsgrößen $\hat{\mathbf{h}}(\omega)$ und definieren die vierdimensionalen Vektoren

$$\hat{\boldsymbol{\alpha}}(\omega) = \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{a}}(\omega) \\ \hat{\mathbf{g}}(\omega) \end{pmatrix}, \quad \hat{\boldsymbol{\beta}}(\omega) = \begin{pmatrix} \hat{\mathbf{b}}(\omega) \\ \hat{\mathbf{h}}(\omega) \end{pmatrix}.$$
(3.32)

Für diese können die input-output-Relationen (3.30) zu einer vierdimensionalen unitären Matrixtransformation

$$\boldsymbol{\beta}(\omega) = \boldsymbol{\Lambda}(\omega) \cdot \hat{\boldsymbol{\alpha}}(\omega) \tag{3.33}$$

mit $\Lambda(\omega) \cdot \Lambda^+(\omega) = I$ zusammengefasst werden. Da nur die oberen beiden zweidimensionalen Matrixblöcke in $\Lambda(\omega)$ durch die input-output-Relationen (3.30) explizit vorgegeben sind, hat man bei der Wahl der übrigen beiden Blockmatrizen etwas Freiheit. Verlangt man aber, dass die Matrix $\Lambda(\omega)$ ein Element der Gruppe SU(4) wird, dann kann sie in der Blockmatrixform

$$\boldsymbol{\Lambda}(\omega) = \begin{pmatrix} \boldsymbol{T}(\omega) & \boldsymbol{A}(\omega) \\ -\boldsymbol{S}(\omega) \cdot \boldsymbol{C}^{-1}(\omega) \cdot \boldsymbol{T}(\omega) & \boldsymbol{C}(\omega) \cdot \boldsymbol{S}^{-1}(\omega) \cdot \boldsymbol{A}(\omega) \end{pmatrix}$$
(3.34)

geschrieben werden, wobei die beiden zweidimensionalen hermiteschen Matrizen $C(\omega) = \sqrt{T(\omega) \cdot T^+(\omega)}$ und $S(\omega) = \sqrt{A(\omega) \cdot A^+(\omega)}$ miteinander kommutieren.

In Analogie zum verlustlosen Strahlteiler wird ein Quantenzustand $\hat{\varrho}_{in} = \hat{\varrho}_{in}[\hat{\alpha}(\omega), \hat{\alpha}^{\dagger}(\omega)]$, der als Funktional der einlaufenden Amplitudenoperatoren und der Plattenoperatoren geschrieben werden muss, unitär zu

$$\hat{\varrho}_{\text{out}} = \hat{\varrho}_{\text{in}} \left[\mathbf{\Lambda}^+(\omega) \cdot \hat{\boldsymbol{\alpha}}(\omega), \mathbf{\Lambda}^T(\omega) \cdot \hat{\boldsymbol{\alpha}}^\dagger(\omega) \right]$$
(3.35)

transformiert. Der Quantenzustand des elektromagnetischen Feldes allein wird dann nach partiellem Abspuren über die Plattenfreiheitsgrade

$$\hat{\varrho}_{\text{out}}^{(\text{F})} = \text{Tr}^{(\text{D})} \left\{ \hat{\varrho}_{\text{in}} \left[\boldsymbol{\Lambda}^{+}(\omega) \cdot \hat{\boldsymbol{\alpha}}(\omega), \boldsymbol{\Lambda}^{T}(\omega) \cdot \hat{\boldsymbol{\alpha}}^{\dagger}(\omega) \right] \right\} .$$
(3.36)

Gleichung (3.36) ersetzt nun die Quantenzustandstransformation (3.9) an einem verlustlosen Strahlteiler. Ähnliche Relationen würde man auch durch eine Quantentheorie offener Systeme wie z.B. durch Auswertung von Mastergleichungen bekommen. Dies ist hier nicht nötig, weil die Wirkung der Umgebung (hier des absorbierenden Strahlteilers) explizit bekannt ist. Wenn der ursprüngliche Quantenzustand der Plattenvariablen bekannt ist (z.B. der Grundzustand oder ein thermischer Zustand), sind alle anderen Informationen in den Transmissions- und Absorptionsmatrizen enthalten, die aus der Greenschen Funktion folgen bzw. experimentell bestimmbar sind.

Beispiele für Quantenzustandstransformationen

Wir wollen die Quantenzustandstransformation (3.36) nun mit einigen Beispielen illustrieren. Wir beginnen wieder mit der Transformation kohärenter Zustände. Seien nun sowohl das einlaufende Feld als auch der Strahlteiler in kohärenten Zuständen präpariert, so dass

$$|\psi_{\rm in}\rangle = |\boldsymbol{\gamma}\rangle = \exp\left(\boldsymbol{\gamma}^T \cdot \hat{\boldsymbol{\alpha}}^{\dagger} - \boldsymbol{\gamma}^{\dagger} \cdot \hat{\boldsymbol{\alpha}}\right)|0\rangle, \quad \boldsymbol{\gamma} = \begin{pmatrix} \mathbf{c} \\ \mathbf{d} \end{pmatrix}.$$
 (3.37)

Nach Anwendung der Quantenzustandstransformation erhält man wieder einen kohärenter Zustand

$$\hat{\varrho}_{\text{out}}^{(\text{F})} = |\mathbf{c}'\rangle\langle\mathbf{c}'|, \quad \mathbf{c}' = \mathbf{T}\cdot\mathbf{c} + \mathbf{A}\cdot\mathbf{d}.$$
(3.38)

Die jeweiligen kohärenten Amplituden der auslaufenden Felder werden somit nicht nur durch die Transmissionsmatrix bestimmt, sondern über die kohärenten Amplituden der Plattenoperatoren auch durch die Absorptionsmatrix.

Im nächsten Beispiel wird ein *n*-Photonen-Fockzustand in einen Eingangskanal gegeben und sowohl der andere Eingang als auch die Plattenvariablen im Grundzustand belassen, das heisst, $|\psi_{in}\rangle = |n, 0, 0, 0\rangle$. Man kann nun zeigen, dass der reduzierte Quantenzustand eines Ausgangs gerade

$$\hat{\varrho}_{\text{out}j}^{(F)} = \sum_{k=0}^{n} \binom{n}{k} |T_{j1}|^{2k} \left(1 - |T_{j1}|^2\right)^{n-k} |k\rangle\langle k|$$
(3.39)

wird.⁹ Man erkennt, dass der Quantenzustand des auslaufenden Feldes nur Fockzustände mit maximal n Photonen enthält, was der Unitarität und damit Photonenzahlerhaltung der Transformation geschuldet ist. Das Resultat suggeriert die Interpretation, dass jedes der n Photonen den Effekt der Transmission bzw. Reflexion erfährt. Diese Argumentationslinie ist aber nur richtig, wenn die Platte in ihrem Grundzustand präpariert ist.

Zum Schluss betrachten wir noch das Paradebeispiel für Dekohärenz, den Zerfall von Quantenkorrelationen. Wir nehmen dazu an, dass das Feld in einem Eingang in einer Superposition zweier kohärenter Zustände präpariert wurde, und die restlichen Moden alle im Grundzustand belassen wurden. Der Eingangszustand ist demnach

$$|\psi_{\rm in}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} (|\alpha\rangle + |-\alpha\rangle) |0,0,0\rangle, \quad N = 2[1 + \exp(-2|\alpha|^2)].$$
 (3.40)

Der Quantenzustand an einem Ausgang wird dann

$$\hat{\varrho}_{\text{out}j}^{(F)} = \frac{1}{N} \Big\{ |T_{j1}\alpha\rangle\langle T_{j1}\alpha| + | -T_{j1}\alpha\rangle\langle -T_{j1}\alpha| \\ + e^{-2|\alpha|^2(1-|T_{j1}|^2)} \big(|T_{j1}\alpha\rangle\langle -T_{j1}\alpha| + | -T_{j1}\alpha\rangle\langle T_{j1}\alpha| \big) \Big\}.$$
(3.41)

⁹Details zu dieser und anderen Rechnungen in L. Knöll, S. Scheel, E. Schmidt, D.-G. Welsch, and A.V. Chizhov, Phys. Rev. A **59**, 4716 (1999).

Bei Transmission durch eine Platte (oder optische Faser) verschwindet durch Absorptions- und Reflexionsverluste die Superposition exponentiell, so dass nur noch eine klassische Überlagerung zweier kohärenter Zustände übrigbleibt. Durch die Beziehung $1 - |T_{21}|^2 = |T_{22}|^2 + |A_{21}|^2 + |A_{22}|^2$ sind gerade der Transmissionskoeffizient $|T_{21}|^2$ mit dem Reflexionskoeffizienten $|T_{22}|^2$ und den dazugehörigen Absorptionskoeffizienten verknüpft. In einer Darstellung mithilfe der Wignerfunktion¹⁰ erkennt man deutlich den Einfluss der Dekohärenz



Abbildung 3.3: Wignerfunktion der Superposition zweier kohärenter Zustände vor (links) und nach (rechts) Transmission durch eine optische Faser mit $|T_{21}|^2 = 0.95$.

(Abb. 3.3). Die quantenmechanische Superposition der kohärenten Zustände erzeugt Interferenzen in der Wignerfunktion (links), die selbst bei einem Transmissionsgrad von $|T_{21}|^2 = 0.95$ schon fast verschwunden sind (rechts).

An diesem Beispiel wird klar, wie schwierig es ist, nichtklassisches Licht über längere Strecken zu übertragen und dabei dessen nichtklassische Eigenschaften zu erhalten. Bemerkenswert ist auch, dass Quanteneigenschaften wie Nichtklassizität und Dekohärenz direkt durch makroskopische, experimentell messbare Größen wie Transmissionskoeffizienten ausgedrückt werden kann und keine mikroskopische Beschreibung der Wechselwirkung des elektromagnetischen Feldes mit dem Medium notwendig ist.

¹⁰Für die Definition der Wignerfunktion und anderer Quasiwahrscheinlichkeitsverteilungen, siehe die Vorlesung 'Grundlagen der Quantenoptik'.

3.2 Atom-Feld-Wechselwirkung in der Nähe von Oberflächen

Die Quantentheorie des Lichts in Anwesenheit von absorbierender Materie soll nun dazu eingesetzt werden, die atomare Dynamik in der Nähe von Oberflächen zu untersuchen.

3.2.1 Heisenbergsche Bewegungsgleichungen

Wir werden uns zunächst den gekoppelten Heisenbergschen Bewegungsgleichungen zuwenden und diese näherungsweise lösen. Dazu benötigen wir einen Hamiltonian, den wir in

$$\hat{H} = \hat{H}_{\rm F} + \hat{H}_{\rm A} + \hat{H}_{\rm int} \tag{3.42}$$

aufteilen wollen. In Analogie zur Feldquantisierung im freien Raum kann man zeigen, dass der Hamiltonian des elektromagnetischen Feldes in Anwesenheit makroskopischer Körper in der Diagonalform

$$\hat{H}_{\rm F} = \int_{0}^{\infty} d\omega \int d^3 r \,\hbar\omega \,\hat{\mathbf{f}}^{\dagger}(\mathbf{r},\omega) \cdot \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r},\omega) \tag{3.43}$$

geschrieben werden kann. 11 Diese Bilinearform ist aus der QED in Vakuum bekannt, bei der der Hamiltonian

$$\hat{H}_{\rm F} = \sum_{\lambda} \hbar \omega_{\lambda} \left(\hat{a}^{\dagger}_{\lambda} \hat{a}_{\lambda} + \frac{1}{2} \right) \tag{3.44}$$

als Summe über die Moden λ dargestellt wurde. Der Beitrag der Grundzustandsenergie wurde dabei in Gl. (3.43) schon weggelassen, da ein konstanter Term im Hamiltonian keinen Beitrag zu den Bewegungsgleichungen liefert.

Für das Atom beschränken wir uns auf ein Zweiniveausystem mit einem Grundzustand $|g\rangle$ und einem angeregten Zustand $|e\rangle$ mit dem Hamiltonian

$$\hat{H}_{\rm A} = \hbar\omega_e |e\rangle \langle e| + \hbar\omega_g |g\rangle \langle g| = \frac{1}{2}\hbar\omega_A \hat{\sigma}_z + \text{const.}$$
(3.45)

¹¹Man zeigt beispielsweise, dass die zeitabhängigen Maxwellschen Gleichungen gerade die Heisenbergschen Bewegungsgleichungen mit dem Hamiltonian $\hat{H}_{\rm F}$ darstellen.

mit $\omega_A = \omega_e - \omega_g$ und $\hat{\sigma}_z = |e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|$. Die Wechselwirkung zwischen elektromagnetischem Feld und Atom beschreiben wir in der Dipolnäherung und der Drehwellennäherung als

$$\hat{H}_{\text{int}} = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_A) = -\mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_A)\hat{\sigma} - \mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_A)\hat{\sigma}^{\dagger}$$
(3.46)

mit einem reellen Übergangsdipolmoment **d** und den Operatoren $\hat{\sigma} = |g\rangle\langle e|$ und $\hat{\sigma}^{\dagger} = |e\rangle\langle g|$. Die Operatoren $\hat{\mathbf{E}}^{(\pm)}(\mathbf{r}_A)$ beschreiben die positiven bzw. negativen Frequenzkomponenten des elektrischen Feldes.

Aus den Vertauschungsregeln der atomaren Übergangsoperatoren

$$\left[\hat{\sigma}, \hat{\sigma}^{\dagger}\right] = -\hat{\sigma}_{z}, \quad \left[\hat{\sigma}, \hat{\sigma}_{z}\right] = 2\hat{\sigma}, \quad \left[\hat{\sigma}^{\dagger}, \hat{\sigma}_{z}\right] = -2\hat{\sigma}^{\dagger} \tag{3.47}$$

und denen der dynamischen Feldvariablen folgen sofort die Heisenbergschen Bewegungsgleichungen zu

$$\dot{\hat{\sigma}}_z = \frac{1}{i\hbar} \left[\hat{\sigma}_z, \hat{H} \right] = \frac{2i}{\hbar} \hat{\sigma}^{\dagger} \mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_A) + \text{h.c.}, \qquad (3.48a)$$

$$\dot{\hat{\sigma}}^{\dagger} = \frac{1}{i\hbar} \left[\hat{\sigma}^{\dagger}, \hat{H} \right] = i\omega_A \hat{\sigma}^{\dagger} + \frac{i}{\hbar} \mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_A) \hat{\sigma}_z , \qquad (3.48b)$$

$$\dot{\hat{\mathbf{f}}}(\mathbf{r},\omega) = \frac{1}{i\hbar} \left[\hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r},\omega), \hat{H} \right] = -i\omega \hat{\mathbf{f}}(\mathbf{r},\omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \sqrt{\frac{\varepsilon_{\mathrm{I}}(\mathbf{r},\omega)}{\hbar\pi\varepsilon_0}} \mathbf{d} \cdot \mathbf{G}^*(\mathbf{r}_A,\mathbf{r}_A,\omega)\hat{\sigma} \,.$$
(3.48c)

Diese bilden einen Satz gekoppelter Differentialgleichungen für die atomaren und elektromagnetischen Feldoperatoren und sind nicht geschlossen lösbar. Interessiert man sich nur für die atomare Dynamik, so kann die Bewegungsgleichung für die Feldvariablen formal gelöst werden mit dem Ergebnis, dass das elektrische Feld

$$\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_A, t) = \hat{\mathbf{E}}_{\text{free}}^{(+)}(\mathbf{r}_A, t) + \frac{i}{\pi\varepsilon_0} \int_0^\infty d\omega \frac{\omega^2}{c^2} \text{Im} \, \boldsymbol{G}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_A, \omega) \cdot \mathbf{d} \int_0^t dt' \, e^{-i\omega(t-t')} \hat{\sigma}(t')$$
(3.49)

durch eine Integralgleichung über die atomaren Größen gegeben ist. Hierbei haben wir schon die Integralrelation (2.96) für die Greensche Funktion benutzt. Eingesetzt in die Differentialgleichungen (3.48a) und (3.48b) resultiert in Integrodifferentialgleichungen für die atomaren Variablen. Der Term $\hat{\mathbf{E}}_{\text{free}}^{(+)}(\mathbf{r}_A, t)$ beschreibt dabei den Einfluss eines von außen angelegten treibenden Feldes, der zweite Term das durch den atomaren Dipol erzeugte Feld. Um die entstehenden Integrodifferentialgleichungen zu vereinfachen, verwendet man die Markovnäherung, die uns bei der Theorie der offenen Quantensysteme schon begegnet ist. Dabei wird von dem Operator $\hat{\sigma}(t')$ die schnelle Zeitentwicklung abgespaltet und die langsam veränderliche Amplitude an der oberen Integrationsgrenze aus dem Integral herausgezogen. Damit bleibt

$$\int_{0}^{t} dt' e^{-i\omega(t-t')} \hat{\sigma}(t') \simeq \hat{\sigma}(t) \int_{0}^{t} dt' e^{-i(\omega-\omega_A)(t-t')}$$
$$\simeq \hat{\sigma}(t) \left[\pi \delta(\omega_A - \omega) + i\mathcal{P} \frac{1}{\omega_A - \omega} \right].$$
(3.50)

Eingesetzt in die Gleichungen (3.48a) und (3.48b) erhält man Differentialgleichungen für die atomaren Operatoren in der Form

$$\dot{\hat{\sigma}}_z = -\Gamma(1+\hat{\sigma}_z) + \left[\frac{2i}{\hbar}\hat{\sigma}^{\dagger}\mathbf{d} \cdot \hat{\mathbf{E}}_{\text{free}}^{(+)}(\mathbf{r}_A) + \text{h.c.}\right], \qquad (3.51a)$$

$$\dot{\hat{\sigma}}^{\dagger} = \left[i(\omega_A - \delta\omega) - \frac{1}{2}\Gamma\right]\hat{\sigma}^{\dagger} + \frac{i}{\hbar}\mathbf{d}\cdot\hat{\mathbf{E}}_{\text{free}}^{(-)}(\mathbf{r}_A)\hat{\sigma}_z\,,\qquad(3.51\text{b})$$

wobei wir die Abkürzungen

$$\Gamma = \frac{2\omega_A^2}{\hbar\varepsilon_0 c^2} \mathbf{d} \cdot \operatorname{Im} \boldsymbol{G}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_A, \omega_A) \cdot \mathbf{d}$$
(3.52a)

und

$$\delta\omega = \frac{1}{\hbar\pi\varepsilon_0} \mathcal{P} \int_0^\infty d\omega \, \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\mathbf{d} \cdot \operatorname{Im} \boldsymbol{G}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_A, \omega) \cdot \mathbf{d}}{\omega - \omega_A}$$
(3.52b)

eingeführt haben, deren physikalische Interpretation wir uns gleich genauer ansehen werden.

3.2.2 Modifizierte spontane Emission

Die effektiven Bewegungsgleichungen (3.51a) und (3.51b) beschreiben nun die atomare Dynamik unter dem Einfluss eines treibenden äußeren Feldes $\hat{\mathbf{E}}_{\text{free}}(\mathbf{r}_A)$. Für ein äußeres Feld in einem kohärenten Zustand, äquivalent zu einem klassischen treibenden Feld, werden die Gleichungen (3.51a) und (3.51b) zu den quantenoptischen Blochgleichungen. Einen wichtigen Spezialfall erhält man, wenn überhaupt kein äußeres Feld anliegt. In diesem Fall ist Gl. (3.51a) direkt lösbar. Schreiben wir den Inversionsoperator $\hat{\sigma}_z$ als Differenz der Projektionsoperatoren $\hat{\sigma}_{ee} = |e\rangle\langle e|$ und $\hat{\sigma}_{gg} = |g\rangle\langle g|$ und verwendet die Vollständigkeitsrelation für ein Zweiniveausystem, $\hat{\sigma}_{ee} + \hat{\sigma}_{gg} = 1$, dann kann Gl. (3.51a) in eine Differentialgleichung für den Projektor auf den angeregten Zustand umgeschrieben werden,

$$\dot{\hat{\sigma}}_{ee} = -\Gamma \hat{\sigma}_{ee} \,. \tag{3.53}$$

Dessen Lösung ist offensichtlich

$$\hat{\sigma}_{ee}(t) = e^{-\Gamma(t-t')}\hat{\sigma}_{ee}(t'). \qquad (3.54)$$

Ihre Interpretation ist, dass ein Atom, das zu einem Zeitpunkt t' in einem angeregten Zustand präpariert wurde, ohne treibendes Feld in seinen Grundzustand übergeht. Dieser Prozess der spontanen Emission geschieht mit einer Rate Γ , die nun von der Anwesenheit makroskopischer Körper bestimmt wird.

Die spontane Zerfallsrate (3.52a) ist proportional zur lokalen Modendichte an der Position des Atoms. Zusammen mit der Relation (2.100) kann man die Zerfallsrate in

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \int_{0}^{\infty} d\omega \, \mathbf{d} \cdot \langle 0 | \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_{A}, \omega) \otimes \hat{\mathbf{E}}^{\dagger}(\mathbf{r}_{A}, \omega_{A}) | 0 \rangle \cdot \mathbf{d}$$
(3.55)

umschreiben. In dieser Form erinnert die Beziehung an Fermi's goldene Regel, die aus der zeitabhängigen Störungstheorie zweiter Ordnung folgt. In der Tat stimmen die Näherungen, die zu Gl. (3.52a) geführt haben, d.h. Drehwellennäherung und Markovnäherung, mit der zweiten Störungsordnung überein.¹² Die Interpretation der spontanen Emission ist nun, dass aufgrund des Auftretens aller Frequenzen im quantisierten elektromagnetischen Feld des elektrischen Feldes eine resonante Wechselwirkung des Atoms mit den Fluktuationen auftritt. Spontane Emission ist also nichts anderes als stimulierte Emission durch Vakuumfluktuationen.

Die spontane Emissionsrate im freien Raum erhält man durch Einsetzen der Greenschen Funktion $G^{(0)}(\rho, \omega_A)$ im Limes $\rho \to 0$ [Gl. (2.108)] und finden, dass

$$\Gamma_0 = \frac{\omega_A^3 |\mathbf{d}|^2}{3\pi \hbar \varepsilon_0 c^3}.$$
(3.56)

¹²Die Frage, die sich hier stellt, ist dann sicherlich, warum man nicht von vornherein Störungstheorie verwendet hat. Man kann in der Tat die Heisenbergschen Bewegungsgleichungen auch im Extremfall starker Kopplung, also extrem nicht-Markovscher Dynamik, lösen, die sich einer störungstheoretischen Behandlung entzieht.

Die spontane Emission im freien Raum geschieht also isotrop, da sie nur vom Betrag des Übergangsdipolmoments abhängt.

Diese Isotropie wird durch die Anwesenheit von Medien gebrochen. Als Beispiel hierfür betrachten wir ein Atom vor einem dielektrischen Halbraum. Die Greensche Funktion dafür, speziell der Streuanteil in Reflexion, entnehmen wir Gl. (2.141). Im Koinzidenzlimes $\mathbf{r} \to \mathbf{r}'$ vereinfacht sich die Struktur stark, so ist die Winkelabhängigkeit nur in den Polarisationseinheitsvektoren zu finden. Die Winkelintegrale werden dann zu

$$\frac{1}{2\pi} \int_{0}^{2\pi} d\varphi \,\mathbf{e}_{s}^{+} \otimes \mathbf{e}_{s}^{-} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0\\ 0 & 1 & 0\\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(3.57)

und

$$\frac{1}{2\pi} \int_{0}^{2\pi} d\varphi \,\mathbf{e}_{p}^{+} \otimes \mathbf{e}_{p}^{-} = \frac{1}{2k_{1}^{2}} \begin{pmatrix} k_{1z}^{2} & 0 & 0\\ 0 & k_{1z}^{2} & 0\\ 0 & 0 & -2k_{\parallel}^{2} \end{pmatrix} \,. \tag{3.58}$$

Befindet sich das Atom so nahe an der Oberfläche, dass die Bedingung $z \ll \sqrt{|\varepsilon(\omega)|}\omega/c$ erfüllt ist, so kann man die Näherungen $k_{1z} \simeq ik_{\parallel}$ und $k_{2z} \simeq ik_{\parallel}$ vornehmen. In diesem *nichtretardierten Grenzfall* kann man das verbleibende k_{\parallel} -Integral analytisch ausführen und erhält

$$\boldsymbol{G}^{(S)}(\mathbf{r},\mathbf{r},\omega) \simeq \frac{c^2}{32\pi\omega^2 z^3} \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 1} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0\\ 0 & 1 & 0\\ 0 & 0 & 2 \end{pmatrix} .$$
(3.59)

Die Tatsache, dass der Streutensor zwar diagonal, aber nicht proportional zur Einheitsmatrix ist, deutet auf die Brechung der Isotropie hin.

Eingesetzt in Gl. (3.52a) folgt dann für die spontane Zerfallsrate nahe einer planaren Oberfläche

$$\Gamma \simeq \Gamma_0 \frac{3}{8} \left(1 + \frac{d_z^2}{d^2} \right) \left(\frac{c}{\omega_A z} \right)^3 \frac{\varepsilon_{\mathrm{I}}(\omega_A)}{|\varepsilon(\omega_A) + 1|^2} + \mathcal{O}(z^{-1}).$$
(3.60)

Die Orientierung des Dipols spielt hier offensichtlich eine Rolle. In jedem Fall steigt die Zerfallsrate aber als Funktion des Atom-Oberflächen-Abstands mit z^{-3} an. Sie ist außerdem direkt proportional zum Imaginärteil der Permittivität bzw. des Brechungsindex. Dies deutet darauf hin, dass es sich hierbei vorwiegend um einen nichtstrahlenden Zerfall handelt, bei dem die Anregung des Atoms nicht in Form eines Photons, sondern per Energietransfer in das absorbierende Medium abgegeben wird.

3.2.3 Lokalfeldkorrekturen zur spontanen Emission

In der makroskopischen Theorie der klassischen Elektrodynamik wird sehr häufig *ad hoc* zwischen den Feldern, die extern an einem makroskopischen Körper anliegen, und denen, die im Inneren des Körpers auftreten, unterschieden. Letztere tragen die Bezeichnung Lokalfelder. Sie entstehen immer dann, wenn durch die dielektrische Polarisierung der Umgebung eines Punktes im Körper das externe Feld abgeschirmt oder verstärkt wird. Für die spontane Emission eines Atoms, das sich im Inneren eines dielektrischen Mediums befindet oder gar ein Teil dessen ist, sollten diese Lokalfelder zu einer Änderung der lokalen Modendichte und somit direkt zu einer messbaren Änderung der spontanen Emission führen.



Abbildung 3.4: Atom im Zentrum eines kugelförmigen Resonators mit Radius R.

Dazu betrachten wir als Modellsystem ein Atom im Zentrum eines kugelförmigen Mikroresonators mit Radius R (Abb. 3.4). Die Idee dabei ist, das Atom getrennt von seiner makroskopischen Umgebung zu betrachten und anzunehmen, dass es sich in einem Raumgebiet befindet, indem kein zweites Atom oder gar ein verschmiertes Medium vorliegt¹³. Damit reduziert sich das Problem auf das Auffinden der Greenschen Funktion einer Grenzschicht in Kugelkoordinaten.

Wir benötigen dazu zunächst die Lösung der skalaren Helmholtzgleichung

¹³Die Annahme eines über das gesamte Volumen verschmierten dielektrischen Mediums führt in der klassischen Elektrodynamik zur sogenannten Clausius–Mosotti-Korrektur, die quantenmechanisch zweifelhaft ist. Der Grund ist die unendlich große Coulombenergie, die ein Atom gegen ein kontinuierliches Hintergrundmedium aufzubringen hätte.

in Kugelkoordinaten,

$$\psi_{omn}^{e}(k) = j_{n}(kr)P_{n}^{m}(\cos\Theta)\frac{\cos}{\sin}m\varphi, \qquad (3.61)$$

aus der wir die sphärischen Vektorwellenfunktionen mit dem Pilotvektor ${\bf r}$ konstruieren,

$$\mathbf{M}_{\overset{e}{o}mn}(k) = \mathbf{\nabla} \times \left[\psi_{\overset{e}{o}mn}(k)\mathbf{r}\right], \quad \mathbf{N}_{\overset{e}{o}mn}(k) = \frac{1}{k}\mathbf{\nabla} \times \mathbf{M}_{\overset{e}{o}mn}(k). \quad (3.62)$$

Der benötigte Streuanteil der Greenschen Funktion ist damit

$$\boldsymbol{G}^{(S)}(\mathbf{r},\mathbf{r}',\omega) = \frac{ik_2}{4\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{n} (2-\delta_{0n}) \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{(n-m)!}{(n+m)!} \times \left[r_s^{(22)} \mathbf{M}_{omn}^e(k_2) \otimes \mathbf{M}'_{omn}(k_2) + r_p^{(22)} \mathbf{N}_{omn}^e(k_2) \otimes \mathbf{N}'_{omn}(k_2) \right], \quad (3.63)$$

wobei die Reflexionskoeffizienten $r_{s,p}$ die sogenannten Mie-Koeffizienten der Lichtstreuung an Kugeln bezeichnen. Diese findet man zu¹⁴

$$r_s^{(22)} = -\frac{k_2\xi_l(k_2R)h_l^{(1)}(k_1R) - k_1\xi_l(k_1R)h_l^{(1)}(k_2R)}{k_2\eta_l(k_2R)h_l^{(1)}(k_1R) - k_1\xi_l(k_1R)j_l(k_2R)},$$
(3.64a)

$$r_p^{(22)} = -\frac{k_2\xi_l(k_1R)h_l^{(1)}(k_2R) - k_1\xi_l(k_2R)h_l^{(1)}(k_1R)}{k_2\xi_l(k_1R)j_l(k_2R) - k_1\eta_l(k_2R)h_l^{(1)}(k_1R)}$$
(3.64b)

mit den Bezeichnungen $\eta_l(x) = [xj_l(x)]'/x$ und $\xi_l(x) = [xh_l^{(1)}(x)]'/x$.

Da wir angenommen haben, dass sich das Atom im Zentrum der Kavität befinden soll, verschwinden fast alle Besselfunktionen und deren Ableitungen, und es tragen nur die Vektorwellenfunktionen $\mathbf{N}_{em1}^{e}(k)$ bei. Demnach ist die spontane Emissionsrate eines Atoms in der Kavität durch

$$\Gamma = \Gamma_0 \left[1 + \operatorname{Re} r_p^{(22)}(n=1) \right]$$
(3.65)

gegeben. Der Mie-Koeffizient $r_p^{(22)}(n=1)$ schreibt sich nach Einsetzen der Bessel- und Hankelfunktionen als

$$r_p^{22} = \frac{[i+\rho(n+1)-i\rho^2 n - \rho^3 n^2/(n+1)]e^{i\rho}}{\sin\rho - \rho(\cos\rho + in\sin\rho) + i\rho^2 n\cos\rho - \rho^3(\cos\rho - in\sin\rho)n^2/(n^2 - 1)}$$
(3.66)

¹⁴L.W. Li, P.S. Kooi, M.S. Leong, and T.S. Yeo, IEEE Trans. Microwave Theory Techn. **42**, 2302 (1994).

mit $n = n(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)}$ und $\rho = R\omega_A/c$. Wenn wir davon ausgehen, dass die Kavität viel kleiner ist als die atomare Übergangswellenlänge, dann können wir den Reflexionskoeffizienten nach $\rho = R\omega_A/c \ll 1$ entwickeln und finden

$$\Gamma = \Gamma_0 \operatorname{Im} \left\{ \frac{3(\varepsilon - 1)}{2\varepsilon + 1} \left(\frac{c}{\omega_A R} \right)^3 + \frac{9[4\varepsilon^2 - 3\varepsilon - 1]}{5(2\varepsilon + 1)^2} \left(\frac{c}{\omega_A R} \right) + i \frac{9\varepsilon^2 n}{(2\varepsilon + 1)^2} \right\} + \mathcal{O}(R)$$
(3.67)

 $[\varepsilon \equiv \varepsilon(\omega_A), n \equiv \sqrt{\varepsilon(\omega_A)}].$

Im Nahfeld erhält man als wieder eine zu R^{-3} proportionale Rate, die einem resonanten Energietransfer in das umgebende absorbierende Medium entspricht. Der nächste Term proportional zu R^{-1} beschreibt die Absorption realer Photonen. Wenn Absorption an der atomaren Resonanz vollständig vernachlässigt werden kann, verschwinden auch alle Terme, die vom Radius der Kavität abhängen, und es bleibt

$$\Gamma = \Gamma_0 \left(\frac{3\varepsilon(\omega_A)}{2\varepsilon(\omega_A) + 1} \right)^2 n(\omega_A) \,. \tag{3.68}$$

Ein kleiner kugelförmiger Resonator implementiert also eine Lokalfeldkorrektur mit dem sogenannten Glauber–Lewenstein-Faktor $3\varepsilon/(2\varepsilon + 1)$, der sich für $|\varepsilon| \gg 1$ wesentlich vom heuristisch eingeführten Clausius–Mosotti-Faktor $(\varepsilon + 2)/3$ unterscheidet. Allgemein kann man dann zeigen, dass auch das allgemeinere Resultat

$$\Gamma = \Gamma_C + \frac{2\omega_A^2}{c^2\hbar\varepsilon_0} \mathbf{d} \cdot \operatorname{Im}\left[\left(\frac{3\varepsilon(\omega_A)}{2\varepsilon(\omega_A)+1}\right)^2 \boldsymbol{G}^{(S)}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_A, \omega_A)\right] \cdot \mathbf{d}^* \qquad (3.69)$$

richtig ist, wobei Γ_C die Nahfeldrate in Gl. (3.67) ist.

3.2.4 Lambverschiebung an Oberflächen und Dispersionskräfte

Neben der spontanen Emission bringt die Wechselwirkung eines Atoms mit dem quantisierten elektromagnetischen Feld eine Verschiebung der Energieniveuas mit sich. Diese sogenannte Lambverschiebung $\delta\omega$ [Gl. (3.52b)] ist ebenfalls über die lokale Modendichte des elektromagnetischen Feldes gegeben. Offensichlich tritt auch im freien Raum bei Abwesenheit makroskopischer Körper diese Lambverschiebung auf. Setzt man in Gl. (3.52b) die Greensche Funktion des freien Raumes ein, so erhält man

$$\delta\omega_0 = \frac{|\mathbf{d}|^2}{6\pi^2\hbar\varepsilon_0 c^3} \mathcal{P} \int_0^\infty d\omega \frac{\omega^3}{\omega - \omega_A} \,. \tag{3.70}$$

Dieses Integral divergiert an der oberen Integrationsgrenze und muss renormiert werden. Dazu wird ein cutoff eingeführt, der die Frequenzintegration bei der Elektronruhemasse $m_0 c^2/\hbar$ abschneidet¹⁵.

Die Lambverschiebung im freien Raum ist offensichtlich ein Effekt, der sich nicht abschalten lässt, weil die Wechselwirkung des Atoms mit dem quantisierten elektromagnetischen Feld immer vorhanden ist. Das bedeutet, dass wir annehmen müssen, dass die Energieniveuas des Atoms schon diese Lambverschiebung enthalten, $\omega_A \mapsto \omega_A + \delta \omega_0$.

Erinnern wir uns daran, wie spontane Emission und Lambverschiebung mathematisch entstanden sind, so fällt auf, dass beide als Realteil bzw. Imaginärteil derselben Funktion auftauchen. In der Tat sind beide, ähnlich wie bei der Permittivität oder dem Brechungsindex, durch Kramers-Kronig-Relationen verknüpft. Dazu betrachten wir noch einmal das Zeitintegral in der Markovnäherung (3.50)

$$\lim_{t \to \infty} \int_{0}^{t} dt' \, e^{-i(\omega - \omega_A)(t - t')} = \int_{0}^{\infty} d\tau \, e^{-i(\omega - \omega_A)\tau} = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \, e^{-i(\omega - \omega_A)\tau} \Theta(\tau) \,. \quad (3.71)$$

Dies ist aber nichts anderes als die Fouriertransformation der Heavisidefunktion, und dies ist die kausale Transformation der konstanten Funktion f(t) = 1. Die (verallgemeinerten) Funktionen $\pi\delta(\omega_A - \omega)$ und $i\mathcal{P}(\omega_A - \omega)^{-1}$ sind also Kramers-Kronig-Paare. Dasselbe gilt demnach auch für die resultierenden Größen spontane Emission und Lambverschiebung.

Die Anwesenheit eines makroskopischen Körpers verändert über die Modifikation der lokalen Modendichte auch die Lambverschiebung. Die durch die Oberfläche hervorgerufene Verschiebung ist somit

$$\delta\omega = \frac{1}{\hbar\pi\varepsilon_0} \mathcal{P} \int_0^\infty d\omega \, \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\mathbf{d} \cdot \operatorname{Im} \boldsymbol{G}^{(S)}(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_A, \omega) \cdot \mathbf{d}}{\omega - \omega_A} \,. \tag{3.72}$$

¹⁵Für Einzelheiten, siehe P.W. Milonni, *The Quantum Vacuum*.

Setzt man beispielsweise für den Streutensor die nichtretardierte Greensche Funktion (3.59) ein, dann wird auch die durch die planare Oberfläche induzierte Lambverschiebung proportional zu z^{-3} . Das bedeutet, dass das Atom eine positionsabhängige Energieverschiebung spürt. Interpretiert man dies als ein Potential, so resultiert daraus eine (anziehende) Kraft in Richtung der Oberfläche. Dies ist der Ursprung der Casimir–Polder-Kraft zwischen Atomen und makroskopischen Körpern, die von den Grundzustandsfluktuationen des elektromagnetischen Feldes vermittelt wird. Diese sogenannten Dispersionskräfte werden uns im nächsten Kapitel beschäftigen.