Licht - Materie - Wechselwirkung

Materie = Atome, Moleküle QM

Licht < klassisch (falls starke Felder)
  qm (falls statistische Eigenschaften, z.B. Korrelationen)

I) QM Atome, klassisches Licht : Schrödinger-Maxwell-Glg.

vernachlässige Effekt der Materie auf Licht
(z.B. Propagationseffekte)

$\downarrow$

zeitabhängige QM mit klassischen elektromag. Feldern

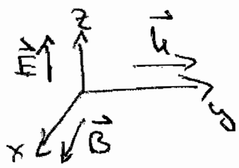
II) QM Atome, QM Licht : (cavity) QED

"Quantenoptik" $\rightarrow$ WW von Atomen mit quantisierten el.-mag. Feldern

1. Grundlagen

1.1 Beschreibung der WW : $\hat{H}$ - Operator

betracht ebene el. magn. Welle



wähle Eichung, so dass

$$\varphi(\vec{r},t) = 0 \qquad \vec{A}(\vec{r},t) = A_0 \cdot \vec{e}_z \, e^{i(ky-\omega t)} + A_0 \, \vec{e}_z \, e^{-i(ky-\omega t)}$$

$$\vec{E}(\vec{r},t) = -\frac{\partial}{\partial t}\vec{A}(\vec{r},t)$$

$$= i\omega A_0 \vec{e}_z \, e^{i(ky-\omega t)} - i\omega A_0^* \vec{e}_z \, e^{-i(ky-\omega t)}$$

$$\vec{B} = \mathrm{rot}\,\vec{A} = ik A_0 \vec{e}_x \, e^{(..)} - ik A_0^* \vec{e}_x \, e^{-(..)}$$

wähle

$$\left.\begin{array}{l} i\omega A_0 =: \frac{1}{2} E_0 \\ ik A_0 =: \frac{1}{2} B_0 \end{array}\right\} \frac{E_0}{B_0} = \frac{\omega}{k} = c$$

$$\Rightarrow \vec{E}(\vec{r},t) = E_0 \vec{e}_z \cos(ky - \omega t)$$
$$\vec{B}(\vec{r},t) = B_0 \vec{e}_x \cos(ky - \omega t)$$

andere Eichmöglichkeit:

$$\chi(\vec{r},t) = z \frac{E_0}{\omega} \sin \omega t$$
$$\vec{A}' = \vec{A} + \vec{\nabla}\chi = \frac{E_0}{\omega} \vec{e}_z \left[\sin(ky - \omega t) + \sin \omega t\right]$$
$$\varphi' = \varphi - \frac{\partial \chi}{} = z E_0 \cos \omega t$$

ebene Welle wechselwirkt mit Valenz-e^- eines Atoms.

Atomkern oBdA im Ursprung festgehalten (BO), erzeugt Potential $V(r)$ auf e^-

$$\hat{H} = \frac{1}{2m}\left[\hat{\vec{p}} - q\vec{A}(\hat{\vec{r}},t)\right]^2 + V(\hat{r}) - \frac{q}{m}\hat{\vec{S}}\cdot\vec{B}(\hat{\vec{r}},t)$$

spin

$$= \frac{1}{2m}\left[\hat{\vec{P}}^2 - 2q\hat{P}_z \frac{E_0}{\omega}\sin(k\hat{y} - \omega t) + q^2 E_0^2/\omega^2 \cdot \sin^2(k\hat{y} - \omega t)\right]$$
$$+ V(\vec{r}) + \left(-\frac{q}{m}\vec{S}\cdot\vec{B}\right)$$
$$\left(\text{da } [\hat{P}_z, \hat{y}]_- = 0\right)$$

$$\hat{H} = \hat{H}_0 \underbrace{- \frac{q}{m}\vec{P}\cdot\vec{A}}_{W_1} \underbrace{- \frac{q}{m}\hat{\vec{S}}\cdot\vec{B}}_{W_2} + \frac{q^2}{2m}\left[\vec{A}(\vec{r},t)\right]^2$$

typische Lichtquellen: $[\vec{A}(\vec{r},t)]^2$ vernachlässigbar bzgl. $\vec{A}(\vec{r},t)$

$$\hat{W}(t) = \hat{W}_1(t) + \hat{W}_2(t)$$ Wechselwirkungsterm

Abschätzung der Matrixelemente von $\hat{W}_{1,2}$ für gebundene Zustände des e^-

$$|\vec{S}| \sim \hbar$$
$$|\vec{B}| \sim k A_0$$

$$\frac{W_2}{W_1} = \frac{q/m\, \hbar k A_0}{q/m\, p\, A_0} = \frac{\hbar k}{p} \qquad , \frac{\hbar}{p} \leq a_0$$

$$= \frac{a_0}{\lambda} \ll 1 \qquad k = \frac{2\pi}{\lambda}$$

$\lambda \gg a_0$ (opt. Bereich)

el. Dipolwechselwirkung W_1 dominiert

<u>elektrische Dipolnäherung.</u>

1) $\hat{W} \simeq \hat{W}_1$ $\qquad \hat{W}_1(t) = -\frac{q}{m}\hat{p}_z\left[A_0 e^{ik\hat{y}} e^{-i\omega t} + A_0 e^{-ik\hat{y}} e^{i\omega t}\right]$

$$e^{\pm ik\hat{y}} = 1 \pm ik\hat{y} + \ldots$$

$$ky = \frac{a_0}{\lambda} \qquad y \approx \text{atomare Ausdehnung}$$

2) $\hat{W}(t) \simeq -\frac{q}{m}\hat{p}_z\left[A_0 e^{-i\omega t} + A_0 e^{i\omega t}\right]$

$$= \boxed{\frac{q}{m}\frac{E_0}{\omega}\hat{p}_z \sin\omega t = \hat{W}_{DE}(t)}$$

<u>Bewegung des Elektrons</u>

(Ehrenfesttheorem: $\hat{r} \Rightarrow \langle\hat{r}\rangle$ etc)

$$\frac{d}{dt}\langle\hat{r}(t)\rangle = \frac{1}{i\hbar}\langle[\hat{\vec{r}}, \hat{H}_0 + \hat{W}_{DE}(t)]_-\rangle$$

$$= \frac{\langle\hat{\vec{p}}\rangle}{m} + \frac{q E_0}{m\omega}\vec{e}_z \sin(\omega t)$$

$$\frac{d}{dt}\langle\hat{\vec{p}}\rangle = \frac{1}{i\hbar}\langle[\hat{\vec{p}}, \hat{H}_0 + \hat{W}_{DE}(t)]_-\rangle = -\langle\vec{\nabla}V(r)\rangle$$

$$\frac{d}{dt}\left[\frac{d}{dt}\langle \hat{\vec{r}}(t)\rangle\right] = \frac{d}{dt}\ \frac{\langle \hat{\vec{p}}\rangle}{m} + \frac{qE_0}{m}\vec{e}_z \cos\omega t$$

$$m\frac{d^2}{dt^2}\langle \hat{\vec{r}}(t)\rangle = -\langle \vec{\nabla} V(r)\rangle + qE_0\vec{e}_z \cos\omega t$$

Schwerpunkt des Wellenpakets des Elektrons bewegt sich wie ein Teilchen der Masse m und Ladung q im Potential V(r) und im elektrischen Feld.
D.h. die elektronische Wfkt. ist so stark lokalisiert, dass sie die räuml. Variation von $\vec{E}(\vec{r},t)$ nicht spürt

$$\vec{E}(\vec{r},t) \rightarrow \vec{E}(t)$$

andere Eichtransformation

$$\vec{A}' = \frac{E_0}{\omega}\vec{e}_z\left[\sin(ky-\omega t) + \sin\omega t\right]$$

$$\varphi' = -zE_0\cos\omega t$$

$$k\hat{y} \approx 0$$

$$\rightarrow \vec{A}' = 0$$

$$\hat{H}' = \frac{1}{2m}(\vec{p}-q\vec{A}')^2 + V(r) + q\varphi'(\vec{r},t)$$

$$= \hat{H}_0 + \hat{W}'(t)$$

$$W'(t) = q\varphi' = -q\hat{z}E_0\cos\omega t = \hat{W}_{DE}(t)$$

$$\boxed{\text{allg.}\quad \hat{W}_{DE}(t) = -\vec{D}\cdot\vec{E}}$$

$\vec{D} = q\vec{r}$ elektr. Dipolmoment des e^-

daraus folgend: Auswahlregeln

$$l_f = l_i \pm 1 \qquad m_f = l_i$$

29.10.08

magn. Dipol- und elektrische Quadrupolübergänge

$$\hat{W}(t) = \hat{W}_1(t) + W_2(t)$$

$$= \hat{W}_{DE}(t) + (\hat{W}_1(t) - \hat{W}_{DE}(t)) + W_2(t) \qquad (*)$$

$$\frac{\hat{W}_1(t) - \hat{W}_{DE}(t)}{W_{DE}(t)} \simeq \frac{a_0}{\lambda} \simeq \frac{\hat{W}_2(t)}{\hat{W}_{DE}(t)}$$

zur Erinnerung:

$$W_1(t) = -\frac{q}{m}\hat{p}_z \left[A_0 e^{i\hat{k}\hat{y}} e^{-i\omega t} + A_0^* e^{-i\hat{k}\hat{y}} e^{i\omega t}\right]$$

- $W_1 - W_{DE}$: $e^{ik\hat{y}} \to e^{ik\hat{y}} - 1 = \pm ik\hat{y}$ (Taylor)

$$\Rightarrow W_1 - W_{DE} \approx -\frac{q}{m}\left[ikA_0 e^{-i\omega t} - ikA_0^* e^{+i\omega t}\right]\hat{p}_z\hat{y}$$

$$\overset{ikA_0 = \frac{1}{2}B_0}{=} -\frac{q}{m}B_0 \cos\omega t\, \hat{p}_z\hat{y} + \ldots$$

$$\hat{p}_z\hat{y} = \frac{1}{2}(\hat{p}_z\hat{y} - \hat{z}\hat{p}_y) + \frac{1}{2}(\hat{p}_z\hat{y} + \hat{z}\hat{p}_y)$$

$$= \frac{1}{2}\hat{L}_x + \frac{1}{2}(\hat{p}_z\hat{y} + \hat{z}\hat{p}_y)$$

$$\Rightarrow W_1 - W_{DE} = -\frac{q}{2m}\hat{L}_x B_0 \cos\omega t - \frac{q}{2m}B_0\cos\omega t \cdot (\hat{p}_z\hat{y} + \hat{z}\hat{p}_y) + \ldots$$

- $W_2(t) = -\frac{q}{m}\vec{S}\,\vec{B}(\vec{r},t)$; $\vec{B} = \vec{\nabla}\times\vec{A} = ikA_0\vec{e}_x e^{i(ky-\omega t)} + cc$

$$= -\frac{q}{m}\hat{S}_x B_0 \cos\omega t$$

Einsetzen in $(*)$

$$\hat{W}(t) = \frac{q}{m}\frac{E_0}{\omega}\hat{p}_z \sin\omega t - \frac{q}{2m}\hat{L}_x B_0\cos\omega t - \frac{q}{2m}\left[\hat{p}_z\hat{y} + \hat{z}\hat{p}_y\right] - \frac{q}{m}\hat{S}_x \cdot B_0 \cos\omega t$$

$$= \hat{W}_{DE}(t) + W_{DM}(t) + W_{QE}(t) + \ldots$$

$$W_{DM}(t) = -\frac{q}{2m}\left[\hat{L}_x + 2\hat{S}_x\right] B_0 \cos\omega t$$ mag. Dipol

$$W_{QE}(t) = -\frac{q}{2mc} E_0 \cos\omega t \left[\hat{p}_z \hat{y} + \hat{z}\hat{p}_y\right]$$ el. Quadr.

im Folgenden : $\boxed{\hat{W}(t) \simeq \hat{W}_{DE}(t)}$

<u>nur</u> Dipolwechselwirkung $\quad \hat{W}_{DE} = \hat{\vec{D}} \cdot \vec{E}$

$\vec{D} = q \sum_{i=1}^{N} \hat{\vec{r}}_i$ Atome

$\vec{D} = q\left(\sum_{i=1}^{N} \hat{\vec{r}}_i + \sum_{A=1}^{M} Z_A \vec{R}_A\right)$ Moleküle

Konvention : $\hat{\vec{D}}$ wird oft als $\hat{\mu}$ geschrieben

1.2 Darstellung des Hamilton - Operators

(atomare Einheiten)

bisher : 1 Valenzelektron

im Allg. : N Elektronen $\quad \vec{p}_i \;,\; \vec{r}_i$

M Kerne $\quad p_A \;,\; \vec{R}_A$

$$\hat{H} \equiv \frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N} \hat{\vec{p}}_i^{\,2} + \frac{1}{2}\sum_{i,j}^{N} \frac{1}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} - \sum_{i=1}^{N}\sum_{A=1}^{M} \frac{Z_A}{|\vec{r}_i - \vec{R}_A|}$$
$$+ \sum_{A=1}^{M} \frac{1}{2m_A} \vec{p}_A^{\,2} + \frac{1}{2}\sum_{A,B=1}^{M} \frac{Z_A Z_B}{|\vec{R}_A - \vec{R}_B|} - \hat{\vec{D}} \cdot \vec{E}(t)$$

<u>Darstellungen</u>

1) Energie - Darstellung : $\quad H|\varphi_i\rangle = E_i|\varphi_i\rangle$ mit $\vec{E} = 0$

$D_{ij} = \langle\varphi_i|\hat{D}|\varphi_j\rangle$ muss bestimmt werden

2) Orts-Darstellung : $\hat{\vec{R}} = \vec{R}$ $\hat{\vec{P}} = i\vec{\nabla}_R$

$$\langle R|\Psi\rangle = \Psi(R)$$

3) Impuls-Darstellung : analog $\langle P|\Psi\rangle = \tilde{\Psi}(P)$

Born-Oppenheimer-Näherung

$m_A \gg m_e$ → Kerne bewegen sich viel langsamer als die Elektronen.

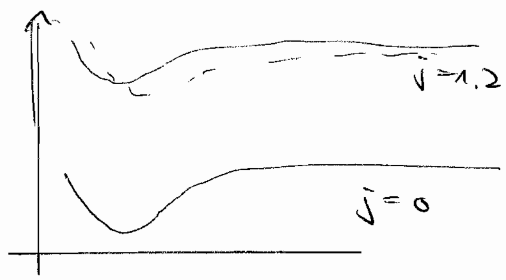
$$\Psi(\{\vec{r}_i\}, \{\vec{R}_i\}) = \phi(\{\vec{r}_i\}; \{\vec{R}_A\})\ \chi(\{\vec{R}_A\})$$

→ elektronische SG

$$\hat{H}_{el}\, \phi_j(\{r_i\}; \{\vec{R}_A\}) = E_j(\{\vec{R}_A\})\, \phi_j(\{r_i\}; \{\vec{R}_A\})$$

Lösung: Hartree-Fock, DFT, Quantenchemie

→ $E_j(\{R_A\})$ Potentialflächen



Näherungen : harmonisch, Morse-Potential

Moleküle : Einsetzen der elektron. Lösungen in $\hat{H}$

$\Phi_j(\{\vec{r}_i\}, \{\vec{R}_A\})$ sind vollst. Ortho-Normalsystem

$$\Psi(\{r_i\}, \{\vec{R}_A\}) = \sum_j c_j \phi_j \chi^j$$

Ausintegrieren der elektr. Freiheitsgrade

Vernachlässigen der nicht-adiabatischen Kopplungen

$\Rightarrow$ Kern-Schrödinger-Gleichung

$$\hat{H}_j \chi^j_{vl}(\{\vec{R}_A\}) = \left[\frac{1}{2} \sum_A \left(\frac{\vec{P}_A^2}{m_A} + E_j^{el}(\{\vec{R}_A\})\right)\right] \chi^j_{vl}(\{\vec{R}_A\})$$

Bewegung der Kerne im BO-Potential

enthält Translation, Vibration, Rotation

Was passiert unter BO mit WW-Matrixelemente?

$$\hat{W} = -\hat{\vec{D}} \cdot \vec{E}(t)$$

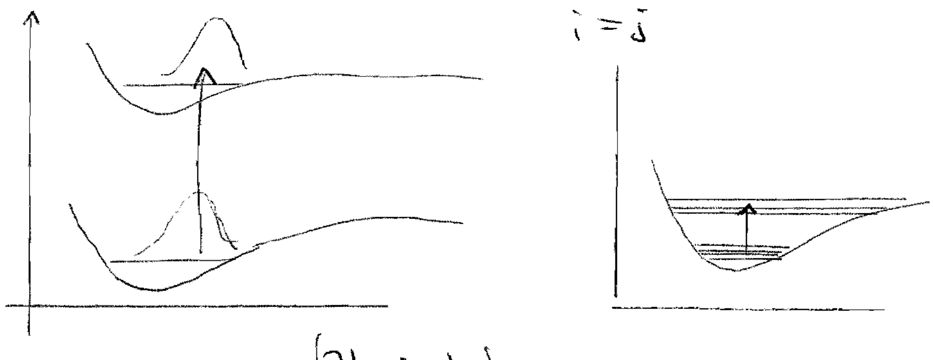
$$\vec{D} = \sum_{l=1}^{N} \vec{r}_l + \sum_{A=1}^{M} Z_A \vec{R}_A$$

in elektronischer Basis

$$\langle \phi_i | \vec{D} | \phi_j \rangle = \vec{D}_{ij}(\{R_A\})$$

$$\hat{H}_{Kern} = \underbrace{\sum_A \frac{\vec{P}_A^2}{2m_A} + V_j(R_A)}_{\substack{H_0 \\ \text{feldfrei}}} + \sum_A \vec{D}_{ij}(R_A) \cdot \vec{E}(t)$$

$i \neq j$: $\qquad\qquad\qquad\qquad$ $i = j$



$$\Psi(R,t) = \begin{pmatrix} \Psi_i(R,t) \\ \Psi_j(R,t) \end{pmatrix} \qquad\qquad \Psi(R,t)$$

Darstellung von $\hat{H}_{Kern}$?

$$\hat{H}_{Kern} = \hat{H}_0 + \hat{\vec{D}} \cdot \vec{E}(t)$$

$H_0 |\psi\rangle = E |\psi\rangle$ ungestörtes System

(i) analytisch

falls $V_j(R)$ harmon. oder Morse-Oszillator

$\rightarrow D_{ij}$ kompliziert

(ii) numerisch (im Ortsraum)

1.3 Numerische Darstellung des Hamilton-Operators im Fourier-Gitter

Wir beschränken uns auf R (d.h. Zentralpotential und ϑ, φ ausintegrieren)

Entwicklung von $\Psi(R)$ in endlich viele Basisfunktionen

d.h. Nähern von $\Psi(R)$ durch Werte der Basisfkt. an Stützstelle

$$\Psi(R_j) = \sum a_n \underset{\substack{\uparrow \\ \text{Basisfunktionen}}}{g_n}(R_j)$$

Schreibe

$$\vec{\Psi} = \overleftrightarrow{G}\vec{a} \quad , \quad G_{nj} = g_n(R_j)$$

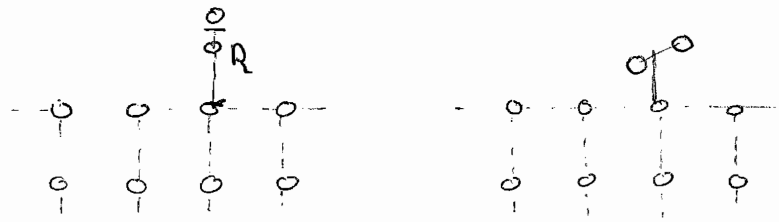
$$\rightarrow \vec{a} = \overleftrightarrow{G}^{-1} \vec{\Psi}$$

(A) Wie wähle ich geschickt die Basisfunktionen?

(B) Wahl der Stützstelle?

31.10.08

Oberflächen (Nachtrag)



$E_j(R, \vartheta)$

Wahl der ~~Stützstellen~~ Basisfkt. (1)

Orthogonalität $\sum_{n=0}^{N} g_n(R_i)\, g_n^*(R_j) = \delta_{ij}$

$$\rightarrow a_n = \sum_{n=0}^{N} \Psi(R_j)\, g_n(R_j)$$

$$\int dR\, g_n(R)\, g_m^*(R) = \delta_{nm} = \langle g_m | g_n \rangle$$

$$\langle \Psi | \phi \rangle = \sum_n a_n^* b_n$$

$$\rightarrow \vec{\Psi} = \overleftrightarrow{g}\, \vec{a} \quad , \quad \overleftrightarrow{g} \text{ unitär}$$

wählen ebene Wellen: $g_n(R) = \exp\left[\frac{2\pi i n R}{L}\right]$

$$n = -\left(\tfrac{N}{2} - 1\right) \ldots 0 \ldots \tfrac{N}{2}$$

Stützstellen (Gitter)

$$R_j = R_{min} + (j-1)\Delta R \quad ; \quad j = 1 \ldots N$$

R_j sind gleichmäßig verteilt $\quad \Delta R = \frac{L}{N}$

z.z.: diese Wahl stellt eine vollständige ONB dar

$$(*) \quad \sum_{k=-\frac{N}{2}+1}^{N/2} g_k(R_m)\, g_k^*(R_n) = \sum_{k=-\frac{N}{2}+1}^{N/2} \exp\left[(2\pi i k/L)(R_m - R_n)\right]$$

$$= \sum \exp\left[\frac{\cancel{\Delta R}\, 2\pi i k}{N \cancel{\Delta R}}\left(-(m-1)+(n-1)\right)\right]$$

$$\overset{(NR)}{=} \delta_{nm} \cdot N$$

Nebenrechnung: Partialsummen der geom. Reihe

$$\sum_{k=0}^{N} g^k = \begin{cases} N+1 & g=1 \\ \dfrac{1-g^{N+1}}{1-g} & g\neq 1 \end{cases}$$

Für $n=m$: $\displaystyle\sum_{k=-\frac{N}{2}+1}^{N/2} \ldots = N$

$n\neq m \to 1 \leq n-m \leq N-1 \to n-m \neq l\cdot N \qquad l\in\mathbb{Z}$

$$\to 1-g = 1-\exp\left[\frac{2\pi i(n-m)}{N}\right] \neq 0$$

$$g^{N+1} = \exp[2\pi i(n-m)] = 1$$

$$\to \sum_{k=-\frac{N}{2}+1}^{N/2} \ldots = 0$$

analog: $\displaystyle\sum_{j=1}^{N} g_k(R_j)\, g_l^*(R_j) = \delta_{kl}\cdot N$

Kontinuums-Äquivalent zu (*):

$$\frac{1}{2\pi}\int_{-\pi}^{+\pi} \exp[i(m-n)R']\, dR'$$

$$= \frac{1}{2\pi}\left[\frac{1}{i(m-n)}\exp[i(m-n)R']\right]_{-\pi}^{+\pi} = \delta_{nm}$$

$$R' = \pi\left(\frac{R}{L}-1\right) \qquad 0\leq R\leq L$$

→ periodische Randbedingungen ge

$\Psi(R_j) = \displaystyle\sum_{k=0}^{N-1} a_n \exp\left[\frac{2\pi i k R_j}{L}\right]$ an den Gitterpunkten exakt

$\Psi(R) \approx \sum a_n \exp[\ldots R]$ zwischen den Gitterpunkten genähert

Entwicklung in ebene Welle = Impulsraumdarstellung

$$a_n = \tilde{\Psi}(P) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^{N} \Psi(R_j) \exp\left[-\frac{2\pi i n R_j}{L}\right]$$

Es wird also gleichzeitig ein Gitter im Impulsraum definiert: $\Delta p = \frac{2\pi}{L}$

Die Fourier-Gitter-Methode liefert eine besonders günstige numerische Darstellung des $\hat{H}$-Operators, denn:

a) FFT liefert einen schnellen Wechsel zw. $\Psi(R)$ und $\tilde{\Psi}(k)$

b) die kinetische Energie ist im Impulsraum diagonal (Vektor-Vektor statt Matrix-Matrix-Multiplikation)

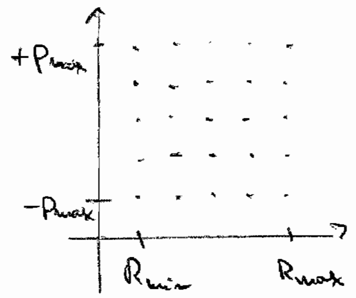
c) N kann so gewählt werden, dass die Darstellung numerisch exakt ist ($\varepsilon < 10^{-16}$ bei double precision)

Berechnung für $\varphi(R) = [\hat{T} + \hat{V}(R)]\, \Psi(R)$

- FFT
- im Impulsraum $\sum_k \frac{k^2}{2m} \Psi(k)$
- $FFT^{-1} \Rightarrow \varphi'(R) = \hat{T}\,\Psi(R)$
- dazu addieren: $\sum_j V(R_j)\, \Psi(R_j)$ im Ortsraum

Wahl der Stützstellen (B)

Noch verbleibende Frage: $N = ?$



$$\Delta p = \frac{2\pi}{L}$$

$$p_{max} = \frac{\pi}{\Delta R}$$

Volumen $V = 2\, p_{max} \cdot L = \frac{2\pi}{\Delta R} L$

$= \frac{2\pi}{L} L N = 2\pi N \ (\cdot\hbar)$;(aber: $\hbar = 1$ gesetzt)

$= N \cdot h$

Unschärferelation $\rightarrow$ jedem Phasenraumvolumen h soll ein Gitterpunkt entsprechen

eigentliches Problem $\hat{H}_0 |\varphi\rangle = E |\varphi\rangle$

Wie kann dieses EWP jetzt gelöst werden?

1) "Brute Force": Entwickeln von H_0 in Fourier-Basis auf Gitter $\rightarrow$ $N \times N$-Matrix $\rightarrow$ diagonalisieren
numerisch aufwändig (N^3), aber alle EW und EF auf einmal

2) Lösen der zeitabhängigen SG in imaginärer Zeit $\tau = it$

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(R,t) = \hat{H} \psi(R,t)$$

$$\psi(R, t+\Delta t) = e^{-i\hat{H}\Delta t} \psi(R,t) \quad \text{(formale Lsg)}$$

in imag. Zeit: $\psi(R, \tau + \Delta\tau) = e^{-\hat{H}_0 \Delta\tau} \psi(R,\tau)$

$$\Psi(R,\Delta\tau) = e^{-\frac{i}{\hbar}H\Delta\tau}\,\Psi(R,0)$$
$$= \sum_n c_n e^{-E_n\Delta t}\,\varphi_n(R)$$
$$c_n = \langle \varphi_n | \Psi(0)\rangle$$

$$\tau \to \infty \;\Rightarrow\; \Psi(R,\Delta\tau) \to \varphi_0(R)$$
(muss noch renormiert werden)

1.4 Propagation der zeitabhängigen SG

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(R,t) = \hat{H}\,\Psi(R,t)$$

falls Ψ und $\hat{H}$ auf dem Fourier-Gitter dargestellt wird, ist nur noch ein Anfangswertproblem zu lösen (Vereinfachung der part. Dgl. zu einer gewöhnlichen Dgl)

(i) Runge-Kutta-Verfahren
$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(R,t) = f[\Psi(R,t)]$$

(ii) Näherung der formale Lösung
$$\Psi(R,t) = \underbrace{\hat{U}(t,0)}_{\text{Zeitentwicklungsop.}}\Psi(R,0) \qquad (\square)$$

falls $\hat{H}(t) = \hat{H}$:
$$i\frac{\partial}{\partial t}\hat{U}(t,0)\,\Psi(R,0) = \hat{H}\hat{U}\,\Psi(R,0)$$

$$[\hat{H}\hat{U} - i\frac{\partial}{\partial t}]\,\Psi(R,0) = 0$$

"Bewegungs"-Glg für $\hat{U}$ $\quad i\frac{\partial}{\partial t}\hat{U} = \hat{H}\hat{U}$

Randbedingung: $\hat{U}(0,0) = 1$

$\rightarrow \hat{U}(t,0) = \exp[-i\hat{H}t]$ formale Lsg

in $(\square)$:

$$\boxed{\Psi(R,t) = e^{-i\hat{H}t}\,\Psi(R,0)}$$

Zwei Strategien, mit diesem Ausdruck umzugehen

a) Baker-Campbell-Hausdorff-Formel

$$e^{\hat{A}+\hat{B}} = e^{\hat{A}}\cdot e^{\hat{B}}\cdot e^{-\frac{1}{2}[\hat{A},\hat{B}]}\ldots$$

$\Rightarrow$ "Split-Propagator"

b) Reihenentwicklung

$$e^{-i\hat{H}t} = \sum_{n=0}^{N} a_n P_n(\hat{H})$$

Newton-Polynome

Chebychev-Polynome

5.11.08 Split-Propagator

$\hat{A} = -i\hat{T}\Delta t \qquad \hat{B} = -i\hat{V}\Delta t$

$$e^{-i\hat{H}\Delta t} = e^{-i(\hat{T}+\hat{V})\Delta t}$$

$$= e^{-i\hat{T}\Delta t}\, e^{-i\hat{V}\Delta t} + o\left[-i[\hat{T},\hat{V}]_-\Delta t^2\right]$$

$$= e^{-\frac{i}{2}\hat{T}\Delta t}\, e^{-\frac{i}{2}\hat{V}\Delta t}\, e^{-\frac{i}{2}\hat{V}}\, e^{-\frac{i}{2}\hat{T}\Delta t}$$

$$+ o\left(-i[\hat{T},\hat{V}]_-\Delta t^2 - i[\hat{V},\hat{T}]_-\Delta t^2 - i[\hat{T},[\hat{T},\hat{V}]]\ldots - i[\hat{V},[\hat{V},\hat{T}]]\Delta t^3\right)$$

$$= e^{-\frac{1}{2}\hat{V}\Delta t}\, e^{-i\hat{T}\Delta t}\, e^{-\frac{1}{2}\hat{V}\Delta t} + o(\Delta t^3)$$

Bemerkungen:

- Split-Propagator = Kurzzeitpropagator $o(\Delta t^3)$
- numerisch effizient. (2 FFT pro Zeitschritt)
- $\exp[-\frac{i}{2}\hat{V}\Delta t]\,\exp[-i\hat{T}\Delta t]\,\exp[-\frac{i}{2}\hat{V}\Delta t]$ ist unitär $\Rightarrow$ $|\langle\Psi|\Psi\rangle|^2 = 1$ Norm unter Propagation erhalten

$\Rightarrow$ Näherungsfehler akkumulieren in Phase u. Energie von $\Psi(R,t)$

Chebychev - Propagator

$$e^{-i\hat{H}t} = f(\hat{H})$$

Wir betrachten den Zeitentwicklungsoperator als Fkt. von $\hat{H}$ u. nähern diese Fkt durch eine Entwicklung in orthogonale Polynome. Für beliebige Fkt ist die schnellstkonvergierende Entwicklung die in Chebychev-Polynome

$$e^{-i\hat{H}t} \simeq \sum_n^N a_n P_n(-i\hat{H}t)$$

$\phi_n(x)$ komplexe Ch.-Polynome , $[-i, i]$

$T_n(x)$ reelle —— " —— $[-1, 1]$

$\phi(x) = T(-ix)$ $\qquad T_n(x) = \cos(n \cdot \arccos(x))$

$\{T_n\}$ v ONS mit Skalarprodukt $\int_{-1}^{+1} \frac{T_m T_n}{\sqrt{1-x^2}}\, dx$

$$\int_{-1}^{+1} \frac{T_m T_n}{\sqrt{1-x^2}} = \begin{cases} 0 & m \neq n \\ \pi/2 & m = n \neq 0 \\ \pi & m = n = 0 \end{cases}$$

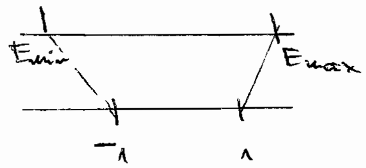
Was ist der Def.-Bereich von $f(\hat{H})$?

$$\Delta E = E_{max} - E_{min}$$

$$T_{min} = 0 \qquad T_{max} = \frac{1}{2m} k_{max}^2 = \frac{\pi}{2m\Delta R^2}$$

V_{min}, V_{max} direkt im Problem gegeben

→ Renormierung des Hamilton-operators auf $[-1, 1]$-Bereich



$$\hat{H}' = \frac{2}{\Delta E}\left(\hat{H} - \left(\frac{\Delta E}{2} + V_{min}\right) 1\right)$$

$$\hat{H} = \frac{\Delta E}{2}\hat{H}' + \left(\frac{\Delta E}{2} + V_{min}\right) 1$$

$$e^{-i\hat{H}t} = e^{-i\left(\frac{\Delta E}{2} + V_{min}\right)t} \sum a_n\left(\frac{\Delta E}{2}t\right) \phi_n(-iH')$$

$$|f\rangle = \sum a_n |\phi_n\rangle$$

$$\to a_n = \langle f | \phi_n \rangle$$

$$a_n(\alpha) = \frac{2 - \delta_{n0}}{\pi} \int_{-i}^{i} \frac{e^{i\alpha z}\phi_n(z)}{\sqrt{1-z^2}} \quad ; \quad \alpha = \frac{\Delta E}{2} t$$

Berechnung von $\phi_n(-iH')$ über Rekursion:

$$\phi_{n+1}(z) = -2z\phi_n(z) + \phi_{n-1}(z)$$

$$\phi_1(z) = z \qquad \phi_0(z) = 0$$

Dies entspricht einer wiederholten Anwendung von $\hat{H}$

$$\Psi(R,t) \approx \exp\left[-i\left(\frac{\Delta E}{2} + V_{min}\right)t\right] \sum_{n=0}^{N} a_n(\alpha)\, \phi_n(-iH')\, |\Psi(R,0)\rangle$$

Algorithmus:

- Berechnung der a_n

$$a_n = 2 J_n(\alpha) \qquad J_n : \text{Bessel-Fkt.}$$
$$a_0 = J_0(\alpha)$$

da $\alpha \equiv \frac{\Delta E}{2} t$ nur zu Beginn der Propagation mit Zeitschritt t nötig

- Berechnung der Phase $\exp\left[-i\left(\frac{\Delta E}{2} + V_{min}\right) t\right]$ (Renormierung)

- rekursive Anwendung von $\hat{H}$ und Akkumulation der neuen Wfkt. $\Psi(R,t)$

Konvergenz der Reihenentwicklung

Wieviele N benötige ich?

α fest, $n \to \infty$: $J_n \sim \frac{1}{\sqrt{2\pi n}} \left(\frac{e\alpha}{2n}\right)^n$

d.h. wenn $n > \alpha$, dann verschwindet $J_n(\alpha)$ exponentiell

$\rightarrow$ wir können N so wählen, dass

$$a_N = 2 J_n(\alpha) < \varepsilon$$

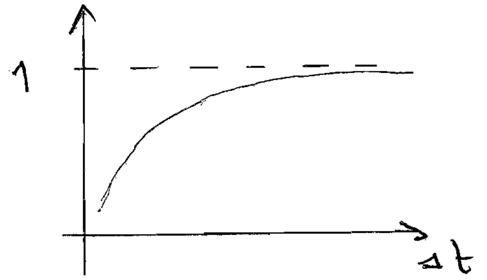
$\rightarrow$ die Anzahl der benötigten Terme in der Reihenentwicklung ist durch $\frac{1}{2}\Delta E \Delta t$ bestimmt

$\frac{1}{2}\Delta E \Delta t \mathrel{\hat{=}}$ Volumen im Energie-Zeit-"Phasenraum"

Bemerkungen: Der Chebychev-Propagator

- ist ein Langzeitoperator

  Effizienz $\eta = \dfrac{\frac{1}{2}\Delta E\, \Delta t}{N}$



nur für sehr kleine Δt ist die Effizienz verschieden von 1

$\Rightarrow$ "beliebig" große Zeitschritte möglich

- erfordert N Anwendungen des Hamiltonoperators pro Zeitschritt (also $2N$ FFT-Durchläufe)

- ist nicht unitär:

  $$1 - |\langle \Psi(t) | \Psi(t) \rangle| = |\varepsilon| \quad \text{Konvergenztest}$$

- Der Fehler ε ist gleichmäßig über den Spektralbereich verteilt und kann auf die Größe der Maschinenpräzision reduziert werden ("numerisch exakt")

- stellt eine Spektralentwicklung des Zeitentwicklungsoperators dar.

Die Ch.-Propagation kann auch zur Näherung anderer Funktionen als $f(\hat{H}) = e^{-i\hat{H}t}$ benutzt werden

Bsp.: (1) $f(\hat{H}) = e^{-\hat{H}\Delta t}$

Die a_n können durch analytische Fortsetzung bestimmt werden:

$$a_n = 2 I_n(\alpha)\, e^{(\frac{1}{2}\Delta E + E_{min})\Delta t}$$; I_n: mod. Bessel.

$$I_n \sim e^{-n} \quad \text{für} \quad n > \sqrt{\tfrac{1}{2}\Delta E \Delta t}$$

d.h. noch bessere Konvergenz

Bsp. (2):

$$f(\hat{H}) = \frac{i}{2\pi} \frac{1}{E-\hat{H}} = \hat{g}(E) \qquad \text{Greensche Fkt.}$$

$$a_n = \frac{4\, T_n(\alpha)}{\pi\sqrt{1-\alpha^2}} \,, \quad a_0 = \frac{2}{\pi}\frac{1}{\sqrt{1-\alpha^2}}$$

Bsp. (3):

beliebige Funktionen $f(\hat{H})$:

die Entwicklungskoeff können numerisch bestimmt werden,

$$a_n(\alpha) = \frac{2-\delta_{n0}}{\pi} \int_{-1}^{1} \frac{f(x)\,T_n(x)}{\sqrt{1-x^2}}\,dx \quad , T_n(x) = \cos(n x)$$

dies entspricht einer Kosinustransformation ($\rightarrow$ FFT)

Diese Propagation gilt zunächst nur für $\hat{H}(t) = \hat{H}$

Dies ist im Fall von OCT nicht gegeben (Δt darf nicht bel. groß werden)

$$\hat{H} = \hat{T} + \hat{V} + \omega(t) \qquad i\frac{\partial}{\partial t}\psi = H(t)$$

$$\hat{H}' = \hat{H} - i\frac{\partial}{\partial t} \qquad i\frac{\partial}{\partial t}\psi = H'\psi(t')$$

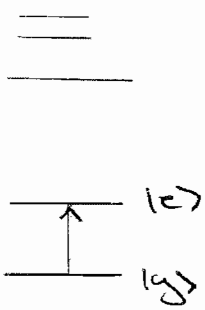
$$\psi(R,t) = \int dt'\, \delta(t-t')\, \psi(R,t,t')$$

kann formal genauso mit Chebychev für $\hat{H}'$ propagiert werden, dies ist aber extrem aufwändig

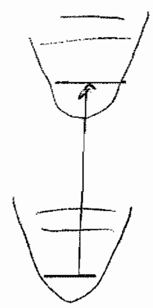
Praktisch: Δt ausreichend klein wählen

12.11.08

2. Wechselwirkung im Zwei-Niveau-System mit Licht

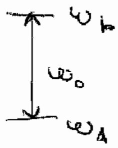


$$\omega_{ge} \approx \omega_L$$
$$|\omega_L - \omega_{ij}| >> 0$$



2.1 Rotating Wave Approximation

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} \omega_a & 0 \\ 0 & \omega_b \end{pmatrix}$$



$$\omega_0 = \omega_b - \omega_a$$

$$|\psi(t)\rangle = a(t) \cdot e^{-i\omega_a t} |a\rangle + b(t)\, e^{-i\omega_b t} |b\rangle$$

$$|a(t)|^2 + |b(t)|^2 = 1$$

$$\hat{H}(t) = H_0 + \hat{W}(t)$$

$$\hat{W} = \begin{pmatrix} 0 & -\hat{\mu} E_0 \cos \omega_L t \\ -\hat{\mu} E_0 \cos \omega_L t & 0 \end{pmatrix}$$

Wechselwirkungs-Darstellung

$$\hat{H}_I(t) = e^{\cancel{-}i\hat{H}_0 t}\, \hat{W}\, e^{+i\hat{H}_0 t}$$

$$i\frac{\partial}{\partial t} |\psi_I(t)\rangle = \hat{H}_I\, |\psi_I(t)\rangle \qquad |\psi_I(t)\rangle = e^{-i\hat{H}_0 t}\, |\psi(t)\rangle$$

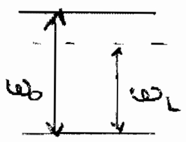
$$\hat{H}_I = e^{i H_0 t} \sum_{\substack{i=a,b \\ j=a,b}} |i\rangle\langle i| \hat{W} |j\rangle\langle j|$$

$$= |a\rangle\langle b| e^{i(\omega_a - \omega_b)t}\, W_{ab} + |b\rangle\langle a| e^{-i(\omega_a - \omega_b)t} \cdot W_{ba}$$

$$W_{ab} = -\frac{1}{2}\mu E_0 \left(e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}\right)$$

$$H_I = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{1}{2}\mu E_0 \left[e^{-i(\omega_L-\omega_0)t} + e^{i(\omega_L+\omega_0)t}\right] \\ -\frac{1}{2}\mu E_0 \left[e^{i(\omega_L-\omega_0)t} + e^{-i(\omega_L+\omega_0)t}\right] & 0 \end{pmatrix}$$

Verstimmung (Detuning) $\Delta_L = \omega_0 - \omega_L$



falls $\omega_L \approx \omega_0$ (nah-resonante Anregung)

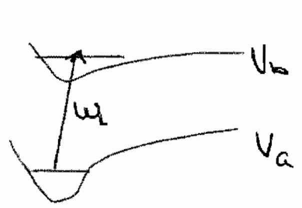
$|\Delta_L| = |\omega_L - \omega_0| \ll 1$ $\qquad e^{\pm i\Delta_L t}$ oszilliert langsam

$\omega_L + \omega_0 \approx 2\omega_L$ $\qquad e^{\pm i 2\omega_L t}$ oszilliert schnell

$\rightarrow$ mittelt sich zu 0 bei Zeitintegration

$$\boxed{\hat{H}_{RWA} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{1}{2}\mu E_0 e^{-i\Delta_L t} \\ -\frac{1}{2}\mu E_0 e^{i\Delta_L t} & 0 \end{pmatrix}}$$

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} \hat{T} + \hat{V}_a & 0 \\ 0 & \hat{T} + \hat{V}_b \end{pmatrix}$$



$$\hat{W} = \begin{pmatrix} 0 & \mu E \\ \mu E^* & 0 \end{pmatrix}$$

Im Atom...

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \omega_0 \end{pmatrix} + 1\,\omega_a$$

$$\hat{H}_0 = 2\omega_0 \hat{\sigma}_z + \left(\omega_a - \frac{1}{2}\omega_0\right) 1 \qquad \sigma_z = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Rotations-Op $\hat{R}(\vartheta) := e^{i\vartheta\hat{S}_z}$ $\quad \hat{S}_z = \frac{1}{2}\sigma_z$

$$[\hat{S}_\pm, \hat{R}(\vartheta)] = \left(1-e^{\pm i\vartheta}\right)\hat{S}_\pm \cdot \hat{R}(\vartheta)$$

Transformation der Schrödinger-Gleichung

$$|\tilde{\Psi}\rangle = R\,|\Psi\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\tilde{\Psi}\rangle = i\frac{\partial\hat{R}}{\partial t}|\Psi\rangle + i\hat{R}\frac{\partial}{\partial t}|\Psi\rangle$$

$$= -\frac{\partial\vartheta}{\partial t}\hat{S}_z\hat{R}\,|\Psi\rangle + \underbrace{\hat{R}\hat{H}}_{=\hat{H}\hat{R}-[\hat{H},\hat{R}]_-}|\Psi\rangle$$

$$[\hat{H},\hat{R}]_- = E^*\mu\,[\hat{S}_+,\hat{R}]_- + E\mu\,[\hat{S}_-,\hat{R}]_-$$

$$= -\frac{\partial}{\partial t}\hat{S}_z R\,|\Psi\rangle + \hat{H}\hat{R}\,|\Psi\rangle$$
$$- E^*\mu\,(1-e^{i\vartheta})\,\hat{S}_+\,\hat{R}\,|\Psi\rangle$$
$$- E\mu\,(1-e^{-i\vartheta})\,\hat{S}_-\,\hat{R}\,|\Psi\rangle$$

$$= \frac{\partial\vartheta}{\partial t}\hat{S}_z|\tilde{\Psi}\rangle + \hat{H}|\tilde{\Psi}\rangle$$
$$- E^*\mu\,(1-e^{i\vartheta})\,\hat{S}_+\,|\tilde{\Psi}\rangle$$
$$- E\mu\,(1-e^{-i\vartheta})\,\hat{S}_-\,|\tilde{\Psi}\rangle$$

$\Rightarrow$ (ablesen)

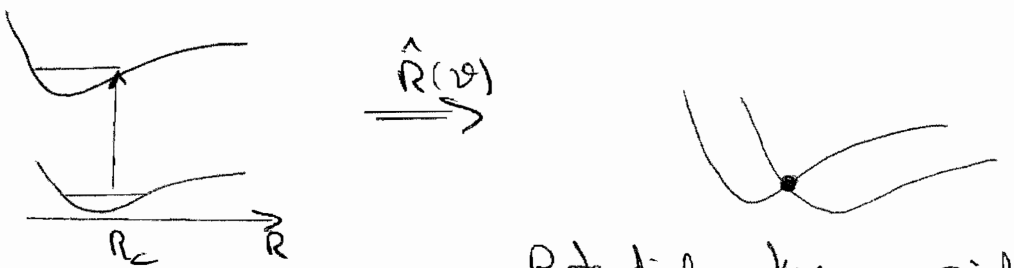
$$\tilde{H} = \begin{pmatrix} \hat{T} + \hat{V}_a + \frac{1}{2}\frac{\partial\vartheta}{\partial t} & e^{-i\vartheta}E\mu \\ e^{i\vartheta}E^*\mu & \hat{T} + \hat{V}_b - \frac{1}{2}\frac{\partial\vartheta}{\partial t} \end{pmatrix}$$

Annahme: $\vartheta = \omega_L t$, $E(t) = E_0\cos(\omega_L t)$
$= \frac{1}{2}E_0\left[e^{i\omega_L t} + e^{-i\omega_L t}\right]$

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} \hat{T} + \hat{V}_a & \frac{1}{2}\mu E_0 \left(1 + e^{-i2\omega_L t}\right) \\ \frac{1}{2}\mu E_0^* \left(1 + e^{2i\omega_L t}\right) & \hat{T} + \hat{V}_b - \omega_L \end{pmatrix}$$

vernachlässige die schnell oszillierenden Terme

$$\hat{H}_{RWA} = \begin{pmatrix} \hat{T} + \hat{V}_a & \frac{1}{2}\mu E_0(t) \\ \frac{1}{2}\mu E_0^*(t) & \hat{T} + V_b - \omega_L \end{pmatrix}$$



Potentiale kreuzen sich am Condon-Punkt

Bemerkungen

(1) Der Rotationsoperator $\hat{R}(\vartheta)$ vermittelt eine Transformation des Bezugssystems des Hamilton-Op ("Koordinatentransformation" im elektronischen Freiheitsgrad) Das neue Bezugssystem rotiert mit ω_L ("rotating frame")

(2) $E(t) = E_0(t) \cos(\omega_L t + \underline{\underline{\varphi(t)}})$

Bei Pulsen mit zeitabhängiger Phase (z.B. Chirp) bestehen zwei Möglichkeiten, ϑ in $\hat{R}(\vartheta)$ sinnvoll zu wählen:

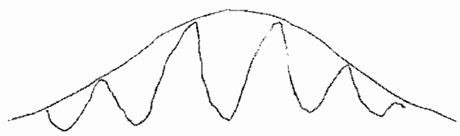
$$\vartheta_1 = \omega_L t$$
$$\vartheta_2 = \omega_L t + \varphi$$

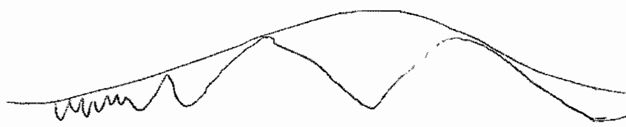
$$\hat{H}^1_{RWA} = \begin{pmatrix} \hat{T} + \hat{V}_a & \frac{1}{2}\mu E_0(t) e^{i\varphi(t)} \\ \frac{1}{2}\mu E_0(t) e^{-i\varphi(t)} & \hat{T} + \hat{V}_b - \omega_L \end{pmatrix}$$

$$\hat{H}^2_{RWA} = \begin{pmatrix} \hat{T} + V_a & \frac{1}{2}\mu E_0(t) \\ \frac{1}{2}\mu E_0(t) & \hat{T} + \hat{V}_b - \omega_L - \frac{\partial\varphi}{\partial t} \end{pmatrix}$$

$$\text{chirp: } \frac{\partial\varphi}{\partial t} = x(t - t_p)$$

Bezugsrahmen im Fall von $\hat{H}^1_{RWA}$ rotiert mit Trägerfrequenz ω_L, im Fall von $\hat{H}^2_{RWA}$ mit instantaner Frequenz $\omega_L + \frac{\partial\varphi}{\partial t}$

transform-limitierter Puls 

gechirpter Puls 

2.2 Rabi-Oszillationen

$$\hat{H}_{RWA} = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{1}{2}\mu E_0 e^{-i\Delta_L t} \\ -\frac{1}{2}\mu E_0 e^{i\Delta_L t} & 0 \end{pmatrix}$$

$$\dot{a}(t) = \frac{i}{2}\mu E_0 \, e^{i\Delta_L t}\, b(t)$$

$$\dot{b}(t) = \frac{i}{2}\mu E_0 \, e^{-i\Delta_L t}\, a(t)$$

(Zur Erinnerung:

$$|\Psi(t)\rangle = a(t)\, e^{-i\omega_a t}\,|a\rangle + b(t)\, e^{-i\omega_b t}\,|b\rangle \quad)$$

$$|\tilde{\Psi}\rangle = \begin{pmatrix} a(t) \\ b(t) \end{pmatrix}$$

Lösung der DGl:

$$\ddot{b} = -i\Delta_L \dot{b} - \frac{1}{4}(\mu E)^2 b$$

$$b(t) = e^{-\frac{i}{2}\Delta_L t}\left[A \cdot e^{\frac{i}{2}\Omega t} + B \cdot e^{-\frac{i}{2}\Omega t}\right]$$

Rabi-Frequenz $\Omega = \sqrt{(\mu E_0)^2 + \Delta_L^2}$

$$a(t) = \frac{e^{\frac{i}{2}\Delta_L t}}{\mu E_0}\left[(\Delta_L - \Omega)\, A \cdot e^{\frac{i}{2}\Omega t} + (\Delta_L + \Omega)\, B\, e^{-\frac{i}{2}\Omega t}\right]$$

Anfangsbedingungen $a(0) = 1 \qquad b(0) = 0$

$$\Rightarrow A = -B = \frac{\mu E_0}{2\Omega}$$

einsetzen:

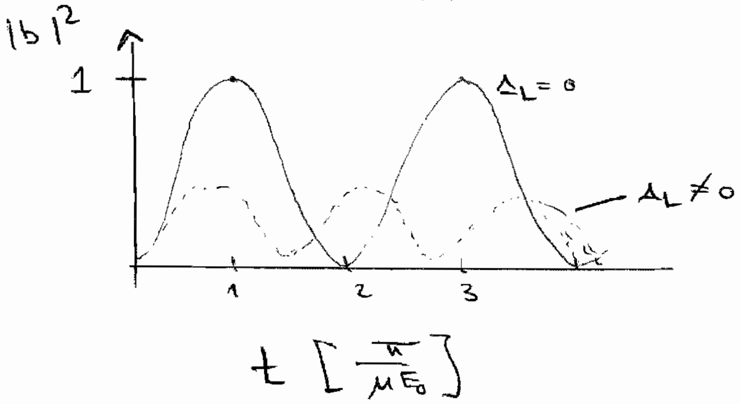
$$a(t) = e^{i/2\,\Delta_L t}\left[\cos\left(\tfrac{1}{2}\Omega t\right) - i\frac{\Delta_L}{\Omega}\sin\left(\tfrac{1}{2}\Omega t\right)\right]$$

$$b(t) = e^{-i/2\,\Delta_L t}\,\frac{\mu E_0}{\Omega}\, i \sin\left(\tfrac{1}{2}\Omega t\right)$$

Besetzung der Niveaus:

$$|a(t)|^2 = \frac{\Delta_L^2}{\Omega^2} + \frac{(\mu E_0)^2}{\Omega^2}\cos^2\left(\tfrac{1}{2}\Omega t\right)$$

$$|b(t)|^2 = \frac{(\mu E_0)^2}{\Omega^2}\sin^2\left(\tfrac{1}{2}\Omega t\right)$$



Rabi-Oszillation

Bemerkungen

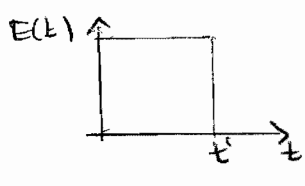
(i) $|b(t)|^2 \xrightarrow{t \ll 1} \left(\frac{\mu E_0}{2}\right)^2 t^2$ unabhängig von Verstimmung

(ii) vollständiger Transfer der Besetzung für resonante Anregung ($\Delta_L = 0$) mit Periode $\frac{2\pi}{\mu E_0}$

(iii) bei nah-resonanter Anregung ($\Delta_L \neq 0$) oszillieren die Besetzung mit

$$\frac{2\pi}{\Omega} = \frac{2\pi}{\sqrt{(\mu E_0)^2 + \Delta_L^2}} \qquad |b(t)|^2 < 1 \quad \forall t$$

(iv) für $\Delta_L = 0$ läßt sich der Besetzungstransfer über die Pulsdauer steuern



falls $t' = \frac{\pi}{\mu E_0} \rightarrow |b(t')|^2 = 1$ π-Puls

$t' = \frac{1}{2}\frac{\pi}{\mu E_0} \rightarrow |b(t)|^2 = \frac{1}{2}$ $\frac{\pi}{2}$-Puls

etc.

19.11.08

2.3 optische Bloch-Gleichungen

reiner Zustand: $|\psi(t)\rangle = a(t)\,|1\rangle + b(t)\,|2\rangle$

$$|\psi(t)\rangle = \cos\vartheta(t)\,|1\rangle + e^{i\varphi(t)}\sin\vartheta(t)\,|2\rangle$$

Bloch-Kugel:

$$x = \sin 2\vartheta \cos\varphi$$
$$y = \sin 2\vartheta \sin\varphi$$
$$z = \cos 2\vartheta$$

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix}$$

ρ_{ii} Besetzungen

ρ_{ij} Kohärenzen

aus $\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi|$ $\Rightarrow$ Bloch-Vektor

$$\vec{r}(t) = \begin{pmatrix} 2\,\mathrm{Re}\,\rho_{12} \\ 2\,\mathrm{Im}\,\rho_{12} \\ \rho_{22}-\rho_{11} \end{pmatrix}$$

Jeder Operator eines 2dim Hilbertraums lässt sich in der Basis der Pauli-Matrizen darstellen

$$S_1 = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \hat{S}_2 = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \hat{S}_3 = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad \hat{S}_0 = \frac{1}{2}\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$[S_i, S_j]_- = i\,\varepsilon_{ijk}\,\hat{S}_k \qquad \sum \hat{S}_i^2 = 1 \qquad \hat{S}_i^2 = \frac{1}{4}$$

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} E_b & W_{ba} \\ W_{ab} & E_a \end{pmatrix}$$

$$\hat{H} = \sum_i q_i \hat{S}_i$$

$$q_1 = W_{ab} + W_{ba}$$
$$q_2 = i(W_{ab} - W_{ab})$$
$$q_3 = E_b - E_a$$

Liouville – v. Neumann – Gl.

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

$$\boxed{\dot{\vec{r}} = \vec{Q} \times \vec{r}}$$ Bloch-Gl. ; $\vec{q} = \begin{pmatrix} q_1 \\ q_2 \\ q_3 \end{pmatrix}$

$$E(t) = E_0 \cdot \cos \omega t$$

RWA: $W_{ab} = -\frac{1}{2} \mu E_0 e^{i\omega_L t}$

$$\vec{Q} = \begin{pmatrix} -\mu E_0 \cos \omega_L t \\ -\mu E_0 \sin \omega_L t \\ \omega_0 \end{pmatrix}$$

Transformation in rotierende Bezugsrahmen

$$\vec{r}' = U^+ \vec{r} \qquad \hat{U}^+ = \begin{pmatrix} \cos \omega_L t & \sin \omega_L t & 0 \\ -\sin \omega_L t & \cos \omega_L t & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$\boxed{\dot{\vec{r}}' = \vec{Q}' \times \vec{r}'}$$ Bloch-Gl. im rotierten (rotierenden) Bezugsrahmen

$$\vec{Q}' = \begin{pmatrix} -\mu E_0 \\ 0 \\ \omega_0 - \omega_L \end{pmatrix}$$

Die Bewegung des Bloch-Vektors $\vec{r}'$ entspricht einer Präzession um den $\vec{Q}'$-Vektor mit der Rabi-Frequenz $\Omega = \sqrt{(\mu E_0)^2 + \Delta_L^2}$

$$\dot{\vec{r}} = \vec{M} \vec{r}'$$

$$\dot{r}_1' = (\omega_0 - \omega_L) r_2' + 2\mu E_0 \sin\varphi \, r_3'$$

$$\dot{r}_2' = -(\omega_0 - \omega_L) r_2' + 2\mu E_0 \cos\varphi \, r_3'$$

$$\dot{r}_3' = -\mu E_0 \sin\varphi \, r_1' - 2\mu E_0 \cos\varphi \, r_2'$$

- falls $\Delta_L \gg \mu E_0$ oder $\Delta_L \gg \dot\varphi(t)$:

  Bloch-Vektor folgt dem $\vec{Q}$-Vektor adiabatisch

- falls $\Delta_L = 0$, $\varphi(t)$ $\rightarrow$ $\dot r_1' = 0$, $\dot r_2' = 2\mu E_0 r_3'$, $\dot r_3' = -2\mu E_0 r_2'$

  Ansatz : $r_2'(t) = \sqrt{1 - r_1'(0)}\ \sin[\vartheta(t) + k]$

  $r_3'(t) = \sqrt{1 - r_1'(0)}\ \cos[\vartheta(t) + k]$

  einsetzen in Bloch-Glg.

  $\dot\vartheta = \mu E_0(t)$ $\qquad$ $\vartheta(t) = \int_0^t \mu E_0(t')\,dt'$

  "Kippwinkel"/ "Rabiwinkel"

  $r_1'(t) = r_1'(0)$

  $r_2'(t) = r_2'(0)\cos\vartheta(t) + r_3'(0)\sin\vartheta(t)$

  $r_3'(t) = -r_2'(0)\sin\vartheta(t) + r_3'(0)\cos\vartheta(t)$

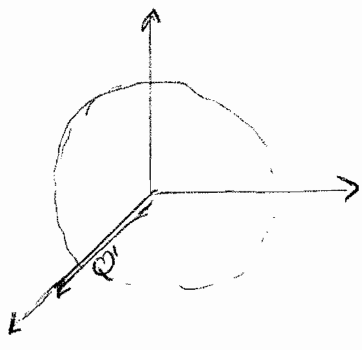
  Drehung von $\vec{r}'$ in y-z-Ebene um x-Achse um Winkel $\vartheta(t)$

Beispiele :

(i) $E_0(t) = E_0$ $\qquad$ $\Delta_L = 0$

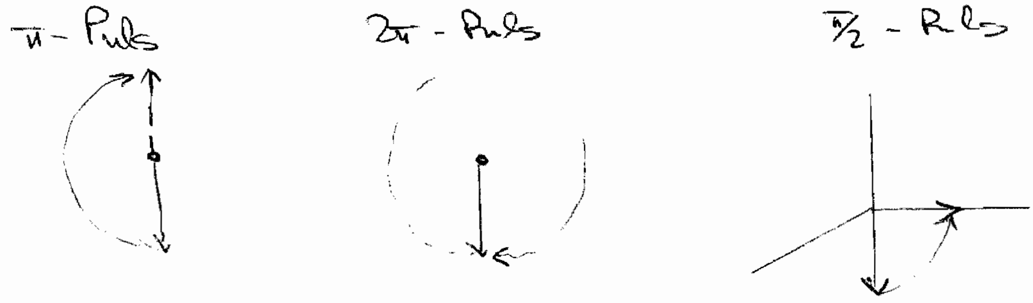
$\vec{Q}' = \begin{pmatrix} \mu E_0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$ $\qquad$ $\vec{r}'(0) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$

Präzession um x-Achse periodisch in $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$ u. $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$



für $\Delta_L \neq 0$ $\qquad$ $\vec{Q}' \nparallel \vec{x}$ $\qquad$ Präzession erreicht nicht mehr $\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$

(ii) $\Delta_L = 0$

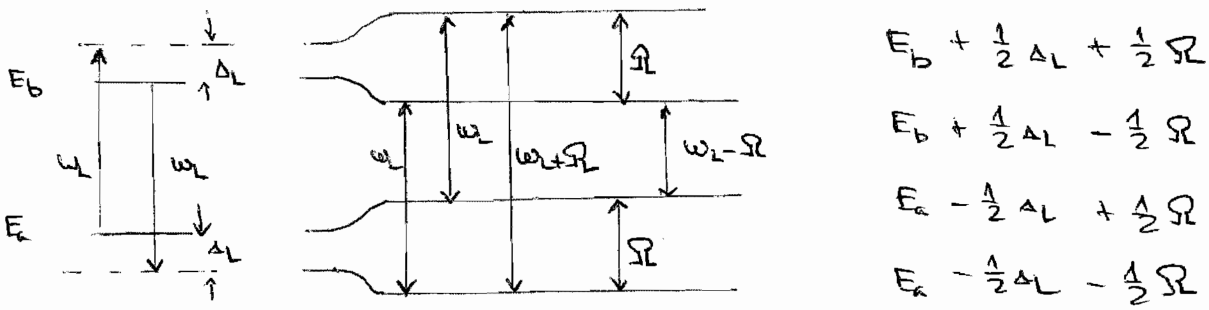


2.4 Dressed States

Erwartungswert des Dipol-Op

$$\langle \psi(t) | \hat{\mu} | \psi(t) \rangle = a^*(t)\, b(t)\, \mu\, e^{i\omega_0 t} + \text{const}$$
$$= -\frac{\mu E_0}{4\Omega^2}\left[2\Delta_L e^{-i\omega_L t} - (\Delta_L - \Omega) e^{-i(\omega_L+\Omega)t} - (\Delta_L + \Omega) e^{-i(\omega_L - \Omega)t}\right]$$

Seitenbänder $\omega_L \pm \Omega$



Analogie zur klass. E-Dynamik: oszillierender Dipol strahlt

→ Fluoreszenz-Triplett für starke Felder

für $E_0(t) = E_0$: Eigenzustände von $\hat{H}_0 + \hat{W}$ = dressed states

betrachten allg. Lsg des 2N-Problems

(i) mit $A = 0$, $B = 1$ $\quad a_1(t) = \frac{-(\Delta_L + \Omega)}{\mu E_0} e^{i\Delta_L t} e^{-\frac{i}{2}\Omega t}$

$$b_1(t) = e^{-\frac{i}{2}\Delta_L t} e^{-\frac{i}{2}\Omega t}$$

$$|\psi_+\rangle = a_1(t)\, e^{-iE_a t} |1\rangle + b_1(t)\, e^{-iE_b t} |2\rangle$$
$$= C_+\left[-\frac{\Delta_L + \Omega}{\mu E_0} e^{\frac{i}{2}(\Delta_L - \Omega)t} |1\rangle + e^{-\frac{i}{2}(\Delta_L + \Omega)t} e^{-iE_b t} |2\rangle\right]$$

(ii) $A=1 \quad B=0$

$$|\psi_-\rangle = c_-\Big[-\frac{\Delta_L-\Omega}{\mu E_0}\, e^{i/2(\Delta_L+\Omega)t}\, e^{-iE_at}\,|1\rangle$$
$$+e^{-i/2(\Delta L-\Omega)t}\, e^{-iE_bt}\,|2\rangle\Big]$$

$$1 = c_\pm^2\left[\frac{(\Delta_L\pm\Omega)^2}{(\mu E_0)^2}+1\right] \to c_\pm = \sqrt{\frac{\Omega\mp\Delta_L}{2\Omega}}$$

$$\to |\psi_\pm\rangle = \mp\sqrt{\frac{\Omega\mp\Delta_L}{2\Omega}}\, e^{i/2(\Delta_L-\Omega)t}\, e^{-iE_at}\,|1\rangle$$
$$+\frac{\Omega\mp\Delta_L}{2\Omega}\, e^{-i/2(\Delta_L+\Omega)t}\, e^{-iE_bt}\,|2\rangle$$

(i) $|\langle 1|\psi_\pm\rangle|^2 = \dfrac{\Omega\pm\Delta_L}{2\Omega} \qquad |\langle 2|\psi_\pm\rangle|^2 = \dfrac{\Omega\mp\Delta_L}{2\Omega}$

Besetzungen sind unabh. von t

$\to |\psi_\pm\rangle$ stationäre Zustände von $\hat{H}_0+\hat{W}$

(ii) $\langle\psi_\pm|\mu|\psi_\pm\rangle = \mp\dfrac{\mu E_0}{2\Omega}\,\mu\, e^{i\omega_L t} + c.c.$

Dipolerwartungswert in dressed state picture oszilliert nur mit ω_L

(iii) schwaches Feld : $\mu E \ll |\Delta_L|$

$$\to \Omega = |\Delta_L|\sqrt{1+\left(\frac{\mu E_0}{\Delta L}\right)^2}$$
$$\simeq |\Delta_L|\left(1+\frac{1}{2}\left(\frac{\mu E_0}{\Delta L}\right)^2\right)$$

$\Delta_L > 0$:
$$|\psi_+\rangle = e^{-iE_at}\,|1\rangle + \frac{\mu E_0}{2\Delta_L}\, e^{-i(E_b+\Delta L)t}\,|2\rangle$$

$$|\psi_-\rangle = \frac{\mu E_0}{2\Delta_L}\, e^{i(E_a-\Delta L)t}\,|1\rangle + e^{-iE_bt}\,|2\rangle$$

$\Delta_L < 0$: $|\Psi_+\rangle, |\Psi_-\rangle$ vertauscht

Für schwache Felder weichen die EZ von $\hat{H}_0 + \hat{W}$ wenig von den EZ von $\hat{H}_0$ ab, für starke Felder erfolgt eine vollständige Mischung der EZ von $\hat{H}_0$.

26.11.08

3. Konzepte der kohärenten Steuerung

Prinzip der kohärenten Steuerung:

QM Superpositionsprinzip

$\downarrow$

(zeitabh.) Variation der Phasen zwischen versch. Quantenzustände

↙ ↘

konstruktive Interferenz destruktiv

Bsp.: H_2-Molekül LCAO $\varphi(r; r_i)$ Atom-Orbital

$$\varphi_s(r) = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(\varphi(r, r_A) \pm \varphi(r, r_B)\right) \qquad +1 = e^{2\pi i} \quad -1 = e^{\pi i}$$

übliche QM: $|\Psi(t=0)\rangle \xrightarrow{SG} |\Psi(t>0)\rangle$

kohärente Steuerung: Welche Dynamik (welcher $\hat{H}$) garantiert ein bestimmtes $|\Psi(t>0)\rangle$ für gegebenes $|\Psi(t=0)\rangle$?

3 Beispiele:

- IF in der Frequenzdomäne — bichromatische Steuerung, Brumer-Shapiro-Schema
- IF in der Zeitdomäne → Wellenpaketdynamik: Pump-Proben-Spektroskopie (Tannor, Kosloff, Rice)
- adiabatische Folge → STIRAP (Bergmann et al.)

=> intuitiv

⇒ Variation weniger Parameter

3.1 Adiabatic Passage

adiabat. Änderung: langsame Änderung

Dyn. im Laserfeld: Langsame Änderung von $I(t)$, $\omega_c(t)$, $\Delta(t)$

erinnern: Adiabatisches Theorem

Falls $\hat{H}(t)$ sich nur langsam mit t ändert und $|\psi(t=0)\rangle$ ein Eigenzustand von $\hat{H}(t=0)$ ist, dann bleibt $|\psi(t)\rangle$ unter der Zeitentwicklung ein EZ von $\hat{H}(t)$ in dem Fall, dass die zeitl. Änd. von $\hat{H}(t)$ unendlich langsam erfolgt

Veranschaulichung: Energie-Darstellung von $\hat{H}(0)$

$$\hat{H}(t) = \begin{pmatrix} E_1 & \omega_{12} & \omega_{13} & \cdots \\ \omega_{21} & E_2 & \omega_{23} & \cdots \\ & \vdots & & \ddots \end{pmatrix} \qquad |\psi\rangle = \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \\ \psi_3 \\ \vdots \end{pmatrix}$$

$\hat{D}(t) = \hat{U}^+(t)\,\hat{H}(t)\,\hat{U}(t)$ unitäre Transformation, die $\hat{H}(t)$ diagonalisiert

$$|\tilde{\psi}\rangle = \hat{U}^+ |\psi\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi\rangle = \hat{H}|\psi\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}(\hat{U}|\tilde{\psi}\rangle) = i\hat{U}\frac{\partial}{\partial t}|\tilde{\psi}\rangle + i\frac{\partial U}{\partial t}|\tilde{\psi}\rangle = \hat{H}\hat{U}|\tilde{\psi}\rangle$$

$$i\hat{U}\frac{\partial}{\partial t}|\tilde{\psi}\rangle = \hat{H}\hat{U}|\tilde{\psi}\rangle - i\frac{\partial \hat{U}}{\partial t}|\tilde{\psi}\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\tilde{\psi}\rangle = \left[\hat{U}^+\hat{H}\hat{U} - i\hat{U}^+\frac{\partial U}{\partial t}\right]|\tilde{\psi}\rangle$$

$$\tilde{H} = \hat{U}^+\hat{H}\hat{U} - i\hat{U}\frac{\partial U}{\partial t}$$

transformierte Schrödinger-Glg

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\tilde\Psi\rangle = \hat D(t)|\tilde\Psi\rangle - \underbrace{i\hat U^+(t)\frac{\partial \hat U}{\partial t}|\tilde\Psi\rangle}$$

in adiab. Näherung vernachlässigt

Nicht-adiabatische Korrektur

Bsp.: Zwei-Niveau-System

$$\hat H = \begin{pmatrix} E_a(t) & W_{ab}(t) \\ W_{ba}(t) & E_b(t) \end{pmatrix}$$

diagonalisieren: $\hat D = \begin{pmatrix} E_- & 0 \\ 0 & E_+ \end{pmatrix}$

$$E_\pm = \frac{1}{2}(E_a + E_b) \pm \frac{1}{2}\sqrt{(E_a - E_b)^2 + 4|W_{AB}|^2}$$

$\hat D(t) = \hat U^+ \hat H \hat U$ mit

$$\hat U = \begin{pmatrix} \cos\frac{\vartheta}{2} e^{-i/2\varphi} & -\sin\frac{\vartheta}{2} e^{-i/2\varphi} \\ \sin\frac{\vartheta}{2} e^{+i/2\varphi} & \cos\frac{\vartheta}{2} e^{i/2\varphi} \end{pmatrix}$$

$$\tan\vartheta = \frac{2|W_{ab}|}{E_a - E_b}$$

$$W_{ab} = |W_{ab}|\, e^{i\varphi}$$

$$\hat U^+ \frac{\partial \hat U}{\partial t} = \frac{i}{2}\frac{\partial\vartheta}{\partial t}\begin{pmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} + \frac{1}{2}\frac{\partial\varphi}{\partial t}\begin{pmatrix} \cos\vartheta & -\sin\vartheta \\ \sin\vartheta & -\cos\vartheta \end{pmatrix}$$

ϑ: „Mischwinkel"

$\hat U^+ \frac{\partial \hat U}{\partial t} \approx 0$ (Übung)

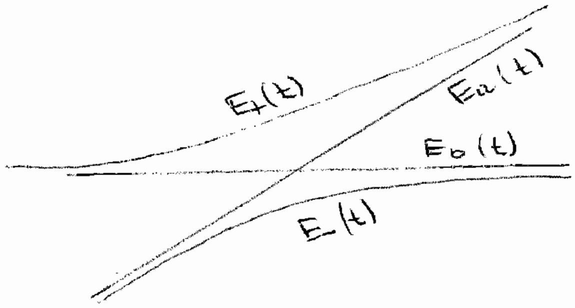
$$\boxed{\left(\frac{\partial\vartheta}{\partial t}\right)^2 + \left(\frac{\partial\varphi}{\partial t}\right)^2 \sin^2\vartheta \ll \frac{1}{4}(E_+ - E_-)^2 + \left(\frac{\partial\varphi}{\partial t}\right)^2\cos^2\vartheta}$$

Bedingung für Adiabazität

Landau - Zener - Modell

$$E_a(t) = E_b + \alpha t$$

$$W_{ba}(t) = W_{ab}(t) = W$$



Abstoßung der Niveaus durch die Kopplung

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = 0 \qquad \frac{\partial \vartheta}{\partial t} = -\frac{2W}{(E_+ - E_-)^2}$$

$$\rightarrow \frac{2W|\alpha|}{(E_+ - E_-)^2} << \frac{1}{2}(E_+ - E_-)$$

$$\rightarrow (E_+ - E_-)^3 >> 4W|\alpha|$$

für $E_a(t) = E_b$: $E_+ - E_- = 2W$

$$\rightarrow \frac{2W^2}{\alpha} >> 1$$

falls $E_a = F_a \cdot x$
$E_b = F_b \cdot x$

Potentialkurven, die sich kreuzen, um Kreuzung linear genähert

Übergangs - Wkeiten $P = 1 - p$; $p = \exp\left[\frac{2\pi W^2}{v|F_a - F_b|}\right]$

v: Geschwindigkeit, mit der Kreuzung passiert wird mit $|F_a - F_b| v = \left|\frac{dE}{dx}\right| \left|\frac{dx}{dt}\right| = \left|\frac{dE}{dt}\right| = \alpha$

$\rightsquigarrow \boxed{p = \exp\left[-\frac{2\pi W^2}{|\alpha|}\right]}$ Landau - Zener - Formel

<u>Interpretation</u>

W : Kopplungsstärke

$\alpha = \frac{dE}{dt}$ $\alpha \gg 1$ schnell
$\alpha \ll 1$ langsam

- $\frac{W^2}{\alpha} \gg 1 \rightsquigarrow p \approx 0 \rightsquigarrow P \approx 1$

  adiabatisches Folgen, d.h. fast vollständiger Transfer zwischen den diabatischen Zuständen für starke Kopplung / langsames Durchlaufen der Kreuzung

- $\frac{W^2}{\alpha} \ll 1 \rightsquigarrow p \approx 1 \quad P \approx 0$

  Besetzung verbleibt im diabatischen Zustand E_a für schwache Kopplung / schnelles Durchlaufen der Kreuzung

<u>Verallgemeinerung auf zeitabhängige WW</u>

$$\hat{H}(t) = \begin{pmatrix} E_1 & -\frac{1}{2}\mu E_0(t)\, e^{i\int_{-\infty}^{t} \omega(t')\,dt'} + c.c. \\ -\frac{1}{2}\mu E_0(t)\left[e^{-i\int_{-\infty}^{t}\omega(t')\,dt'} + c.c.\right. & E_2 \end{pmatrix}$$

Transformation ins WW-Bild

$$\hat{U}_0(t) = \begin{pmatrix} \exp[-iE_1 t]\,\exp[+i\int_{-\infty}^{t}\Delta(t')\,dt'] & 0 \\ 0 & \exp[-iE_2 t]\,\exp[i\int_{-\infty}^{t}\Delta(t')\,dt'] \end{pmatrix}$$

$$\Delta(t) = \omega_L(t) - \omega_0$$

$$\hat{H}_I = U_0^+ \hat{H} \hat{U}_0 - i U_0^+ \frac{\partial U}{\partial t}$$

$$H_I^{RWA}(t) = \begin{pmatrix} E_1 & -\frac{1}{2}\mu E_0(t) \\ -\frac{1}{2}\mu E_0(t) & E_2 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} E_1 - \frac{1}{2}\Delta_L(t) & 0 \\ 0 & E_2 + \frac{1}{2}\Delta_L(t) \end{pmatrix}$$

$$= \frac{1}{2}\begin{pmatrix} -\Delta_L(t) & -\mu E_0(t) \\ -\mu E_0(t) & +\Delta_L(t) \end{pmatrix}$$

Transformation, die $\hat{H}_I^{RWA}$ diagonalisiert

$$\hat{U}_1(t) = \begin{pmatrix} \cos\frac{\vartheta(t)}{2} & -\sin\frac{\vartheta(t)}{2} \\ \sin\frac{\vartheta(t)}{2} & \cos\frac{\vartheta(t)}{2} \end{pmatrix}$$

$$\tan\vartheta = \frac{\mu E_0(t)}{\Delta(t)}$$

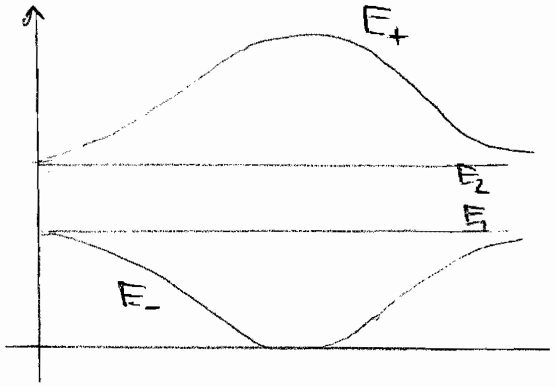
$$\hat{H}' = \begin{pmatrix} E_-(t) & 0 \\ 0 & E_+(t) \end{pmatrix} - i\hat{U}_1 \frac{\partial \hat{U}_1}{\partial t}$$

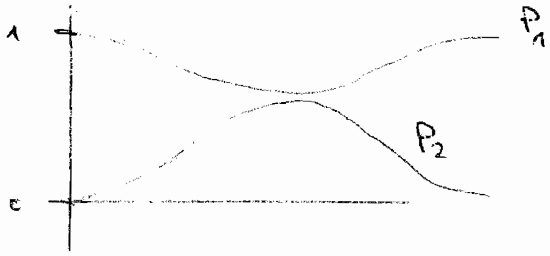
$$E_\pm(t) = \frac{1}{2}\sqrt{(\mu E_0(t))^2 + \Delta^2(t)}$$

$$= \pm \frac{1}{2}\Omega(t)$$

Bsp.:

(i)





adiab. Änd. von $I(t)$

allg. $\Delta(t) > 0$, $\Omega(t) > 0$, $\Omega(t) \xrightarrow{t \to \pm\infty} 0$

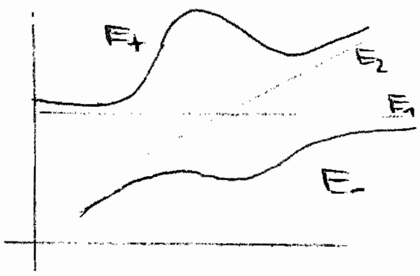
$$\rightarrow \frac{\Delta(t)}{\Omega(t)} \xrightarrow{t \to \pm\infty} \infty \quad \rightarrow \vartheta(t) = \arctan\left(\frac{\Omega(t)}{\Delta(t)}\right) \xrightarrow{t \to \pm\infty} 0$$

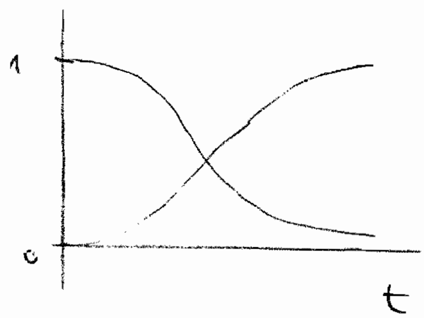
$$\varphi_+(t) = a_1 \sin\left(\frac{\vartheta}{2}\right) + a_2 \cos\left(\frac{\vartheta}{2}\right) \xrightarrow{t \to \pm\infty} a_2$$

$$\varphi_-(t) = a_1 \cos\left(\frac{\vartheta}{2}\right) - a_2 \sin\left(\frac{\vartheta}{2}\right) \xrightarrow{t \to \pm\infty} a_1$$

Population kehrt kohärent in Ausgangszustand zurück

(ii)





adiab. Änderung von $\Delta(t)$

allg. $\Delta(t_c) = 0$ $\dot{\Delta}(t_c) > 0$, t_c: Crossing Time

$\Omega(t) > 0$, $\Omega(t) \xrightarrow{t \to \pm\infty} 0$

$$\frac{\Delta(t)}{\Omega(t)} \xrightarrow{t \to \pm\infty} \pm\infty \quad \rightarrow \vartheta = \arctan \frac{\Omega(t)}{\Delta(t)} \begin{array}{l} \xrightarrow{t \to \infty} 0 \\ \xrightarrow[t \to -\infty]{} \pi/2 \end{array}$$

$\psi_+(t) \xrightarrow{t\to+\infty} a_2$ $\psi_-(t) \xrightarrow{t\to+\infty} a_1$

$\psi_+(t) \xrightarrow{t\to-\infty} a_1$ $\psi(t) \xrightarrow{t\to-\infty} a_2$

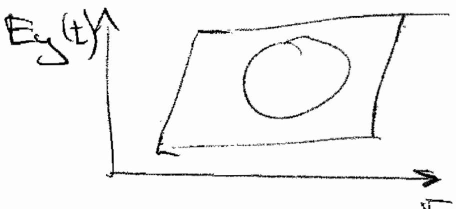
Population wird vollst. transferiert (Besetzungs-inversion)

~~Transformation, die $\hat{H}_I^{RWA}$~~

Bemerkung:

Die Differenz zwischen $E_\pm(t)$ und den Diagonal-elementen von H_I^{RWA}, $\pm\frac{\hbar}{2}\Delta_L(t)$, wird als AC Stark-Verschiebung bezeichnet

geometrische Phase (Berry-Phase)



$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi\rangle = \hat{H}(\vec{y}(t))\,|\psi\rangle \qquad \vec{y} = \underset{\text{Parameter}}{(y_1, y_2, \ldots)}$$

instantane Eigenbasis $\{|n(\vec{y}(t))\rangle\}$

$$\hat{H}(\vec{y}(t))\,|n(\vec{y}(t))\rangle = E_n(\vec{y}(t))\,|n(\vec{y}(t))\rangle$$

Schlaufe: $\vec{y}(T) = \vec{y}(0)$ $\quad |n(\vec{y}(T))\rangle = |n(\vec{y}(0))\rangle$

$$|\psi(t)\rangle = \underbrace{e^{-\int_0^t dt'\, E_n(\vec{y}(t'))}}_{\text{dyn. Phase}}\ \underbrace{e^{i\gamma_n(t)}}_{\text{geom. Phase}}\ |n(\vec{y}(t))\rangle$$

$$\gamma_n(t) = i\langle n(\vec{y}(t))\,|\,\nabla n(\vec{y}(t))\rangle \cdot \dot{\vec{y}}(t)$$

$$|\psi(t)\rangle = e^{i\gamma_n(C)}\, e^{-i\int_0^T dt\, E_n(y(t))}\, |\psi(0)\rangle \qquad \nabla|n\rangle = \nabla_{\vec{y}}|n\rangle$$

$$\gamma_n(C) = i \oint_C \langle n(\vec{y}) \mid \nabla n(\vec{y})\rangle\, d\vec{y}$$

$$\mathrm{Re}\left[\langle n(\vec{y}) \mid \nabla n(\vec{y})\rangle\right] = 0 \qquad \text{wg. } \langle n(\vec{y}) \mid n(\vec{y})\rangle = 1$$

$$\gamma_n(C) \overset{\text{Stokes}}{=} i \iint d\vec{S}\; \nabla \times \langle n|\nabla n\rangle$$

$$= i \iint d\vec{S}\, \langle \nabla n | \times | \nabla n\rangle$$

$$= i \iint d\vec{S} \sum_{m\neq n} \langle \nabla n | m\rangle \times \langle m | \nabla n\rangle$$

$$\nabla_y (\hat{H}|n\rangle) = \nabla(E_n\, |n\rangle)$$

$$\nabla_y \hat{H}|n\rangle + \hat{H}\nabla|n\rangle = \nabla E_n |n\rangle + E_n \nabla_n |n\rangle$$

$$\langle m|\nabla \hat{H}|n\rangle + \langle m|\hat{H}|\nabla n\rangle = \langle m|\nabla E|n\rangle + \langle m|E|\nabla n\rangle$$

$$\langle m|\nabla n\rangle = \frac{\langle m|\nabla H|n\rangle}{E_n - E_m}$$

$$\gamma_n(C) = -\iint d\vec{S}\; \vec{V}_n(\vec{y}) \qquad \frac{\langle n(\vec{y})|\nabla H|m(y)\rangle \times \langle m(\vec{y})|\nabla H|n(\vec{y})\rangle}{(E_m(y) - E_n(y))^2}$$

$$V_n(\vec{y}) = \mathrm{Im} \sum_{m\neq n} \cdot$$

Entartung bei $\vec{y}^*$: $E_+(Y) \geq E_-(Y)$

in führender Ordnung

$$\vec{V}_+(\vec{y}) = \mathrm{Im}\left[\frac{\langle + | \nabla H(\vec{y}^*)|-\rangle \times \langle - |\nabla \hat{H}(\vec{y}^*)|+\rangle}{(E_+(Y) - E_-(Y))^2}\right] \quad (*)$$

$$\Rightarrow V_- = -V_+(\vec{y})$$

$$\Rightarrow \vec{\gamma}_-(C) = -\vec{\gamma}_+(C)$$

oBdA $\quad E_\pm(\vec{y}^*) = 0 \qquad \vec{y}^* = 0$

42

$\vec{y}^* \neq 0$

$$H = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} y_3 & y_1 - i y_2 \\ y_1 + i y_2 & -y_3 \end{pmatrix}$$

Hamilton in Pauli-Matrizen entwickelt

$$E_\pm(\vec{y}) = \frac{1}{2} |\vec{y}|^2$$

$$V_+(\vec{y}) = -V_-(\vec{y}) = \frac{\vec{y}}{2|\vec{y}|^3}$$

$$\vec{V}_+(\vec{y}) = -\vec{V}_-(\vec{y}) = \frac{1}{2} \frac{\vec{y}}{|\vec{y}|^3}$$

analog Fluß eines MF hervorgerufen durch Monopol der Stärke ½ durch Schlaufe C

$$\gamma_c = -\frac{1}{2} \Omega(C)$$

$$\text{d.h. } e^{i\gamma_\pm(C)} = e^{\mp i \Omega(C)}$$

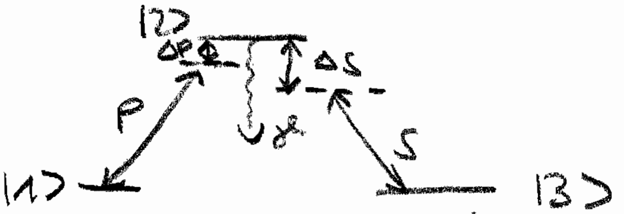
- falls $\hat{H}$ reell

$$e^{i\gamma_\pm(C)} = \begin{cases} -1 & \text{falls Entartung} \\ +1 & \end{cases}$$

Berry: Proc. Royal Society London A 392, 45 (1984)

Stimulated Raman Adiabatic Passage (Stirap)

Theorie Licht M
3.12.08



γ Zerfallsrate von |2⟩

Bergmann, Theuer, Shore
Rev Mod Phys 70, 1003 (1998)

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} E_1 & -\mu_{12}E(t) & 0 \\ -\mu_{21}E(t) & E_2 & -\mu_{23}E(t) \\ 0 & -\mu_{32}E(t) & E_3 \end{pmatrix} \xrightarrow{\text{Übung}} \hat{H}_{RWA} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{1}{2}\Omega_p(t) & 0 \\ \frac{1}{2}\Omega_p(t) & \Delta_p & \frac{1}{2}\Omega_s(t) \\ 0 & \frac{1}{2}\Omega_s(t) & \Delta_p-\Delta_s \end{pmatrix}$$

$$E(t) = E_{0p}(t)\cos(\omega_p t) + E_{0s}(t)\cos(\omega_s t)$$

$$\Omega_p(t) = \mu_{12} E_{0p}(t)$$

$$\Omega_s(t) = \mu_{23} E_{0s}(t)$$

$$\Delta_p = E_2 - E_1 - \omega_p \qquad \Delta_s = E_2 - E_1 - \omega_s$$

2 Photonen-Resonanz für $\Delta_p = \Delta_s = \Delta$

Eigenwerte und -vektoren von H_{RWA}

$$E_\pm = \frac{1}{2}\Delta \pm \sqrt{\Delta^2 + \Omega^2(t)} \qquad \Omega(t) = \sqrt{\Omega_p^2(t) + \Omega_s^2(t)}$$

$$E_0 = 0$$

$$\varphi_+(t) = a_1 \sin\vartheta \sin\varphi + a_2 \cos\varphi + a_3 \cos\vartheta \sin\varphi$$

$$\varphi_0(t) = a_1 \cos\vartheta - a_3 \sin\vartheta$$ keine |2⟩-Komponente

$$\varphi_-(t) = a_1 \sin\vartheta \cos\varphi - a_2 \sin\varphi + a_3 \cos\vartheta \cos\varphi$$

$$\tan\vartheta(t) = \frac{\Omega_p(t)}{\Omega_s(t)} \qquad \tan 2\varphi(t) = \frac{\Omega(t)}{\Delta}$$

falls wir $\varphi_0(t)$ adiabatisch folgen, wird |2⟩ zum Dunkelzustand! (dark state)

$$\rho_0(t) = \frac{\Omega_s(t)}{\Omega(t)}\, a_1 - \frac{\Omega_p(t)}{\Omega(t)}\, a_3$$

falls $\frac{\Omega_p(t)}{\Omega_s(t)} \xrightarrow{t \to +\infty} \infty \qquad \Omega_p \gg \Omega_s$

$$\vartheta(t) = \arctan\left(\frac{\Omega_p}{\Omega_s}\right) \xrightarrow{t \to \infty} \frac{\pi}{2}$$

falls $\frac{\Omega_p(t)}{\Omega_s(t)} \xrightarrow{t \to -\infty} 0 \qquad \Omega_s \gg \Omega_p$

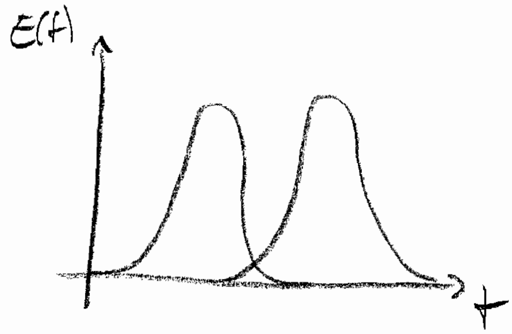
$$\vartheta(t) = \arctan\left(\frac{\Omega_p}{\Omega_s}\right) \xrightarrow{t \to -\infty} 0$$

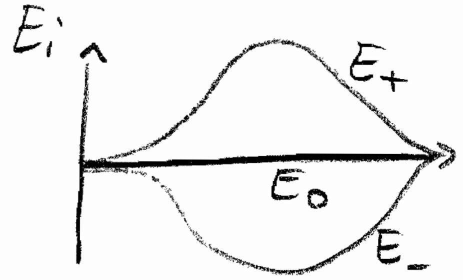
$$\rho_0(t) \xrightarrow{t \to +\infty} -a_3$$

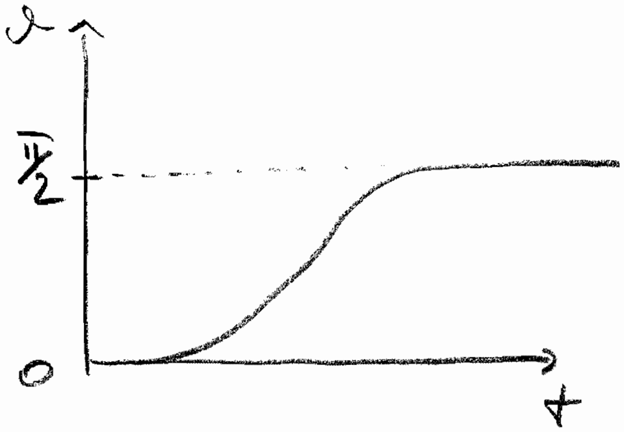
$$\xrightarrow[t \to -\infty]{} a_1$$

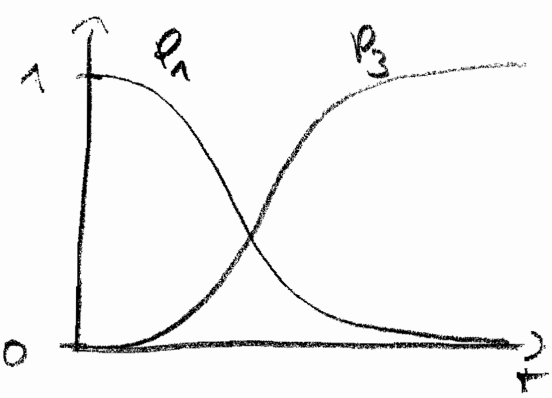
$\leadsto$ d.h. Puls S vor Puls P!

Reihenfolge entgegen der Intuition









Da der Zustand $|2\rangle$ nicht besetzt wird, beeinflussen seine Eigenschaften, insbesondere die Zerfallsrate γ^e, den Stirap-Prozess nicht!

falls $\Delta_p \neq \Delta_s$ (keine 2-Photonen-Resonanz)

$f_0 \sim a_2 \sin\varphi(t)$ transiente Besetzung von $|2\rangle$

falls $|\Delta| \gg \Omega_{p,s}(t)$ starke verstimmt

$\rightsquigarrow$ adiabatische Eliminierung von $|2\rangle$

$\rightsquigarrow$ effektives Zwei-Niveau-System

$$\Omega_{eff} = \frac{-\Omega_p(t)\Omega_s(t)}{2\Delta} \qquad \Delta_{eff} = \frac{\Omega_p^2(t) - \Omega_s^2(t)}{2\Delta}$$

$\Delta_{eff} = 0$ für $\Omega_p(t_c) = \Omega_s(t_c)$ Kreuzung

$\rightsquigarrow$ in adiabatischer Näherung vollständ. Populationstransfer

Adiabatizitätsbedingungen

$$\begin{pmatrix} f_+ \\ f_0 \\ f_- \end{pmatrix} = U^+ \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ a_3 \end{pmatrix}$$

$$\hat{U} = \begin{pmatrix} \sin\vartheta\sin\varphi & \cos\vartheta & \sin\vartheta\cos\varphi \\ \cos\varphi & 0 & -\sin\varphi \\ \cos\vartheta\sin\varphi & -\sin\vartheta & \cos\vartheta\cos\varphi \end{pmatrix}$$

$$\hat{U}^+ \hat{H}_{RWA} \hat{U} - \hat{U}^+ \frac{\partial \hat{U}}{\partial t}$$

$$= \begin{pmatrix} \frac{1}{2}\Omega \cot\varphi & i\dot{\vartheta}\sin\varphi & i\dot{\varphi} \\ -i\dot{\vartheta}\sin\varphi & 0 & -i\dot{\vartheta}\cos\varphi \\ -i\dot{\varphi} & i\dot{\vartheta}\cos\varphi & -\frac{1}{2}\Omega\tan\varphi \end{pmatrix}$$

$$\left|\frac{1}{2}\Omega\cot\varphi\right| \gg |\dot{\vartheta}\sin\varphi|$$

$$\left|\frac{1}{2}\Omega\tan\varphi\right| \gg |\dot{\vartheta}\cos\varphi|$$ stärkere Bedingung

Änderung des Dunkelzustandes

$$|\langle \dot{\varphi}_0 | \varphi_\pm \rangle| \ll |E_\pm - E_0|$$

$$|\dot{\varphi}_0\rangle = -i\dot{\vartheta}\left(\sin\varphi\,|\varphi_+\rangle + \cos\varphi\,|\varphi_-\rangle\right)$$

$$\Rightarrow |\langle \dot{\varphi}_0 | \varphi_\pm \rangle| = \dot{\vartheta}(\sin\varphi + \cos\varphi)$$

$$|\dot{\vartheta}(t)| \ll |E_\pm - E_0| \qquad \tan\vartheta = \frac{\Omega_p}{\Omega_s}$$

$$\boxed{\left|\frac{\dot{\Omega}_p\Omega_s - \Omega_p\dot{\Omega}_s}{\Omega_p^2 + \Omega_s^2}\right| \ll |E_\pm(t) - E_0(t)|}$$

lokale Adiabatizitätsbedingung

falls $\Delta = 0$: $\varphi = \pi/4$: $\Omega(t) \gg |\dot{\vartheta}(t)| \sim \frac{1}{T}$

↝ globale Abschätzung der Adiabatizitätsbedingung

$$\underbrace{\Omega_0 T}_{\text{Pulsfläche}} \gg 1$$

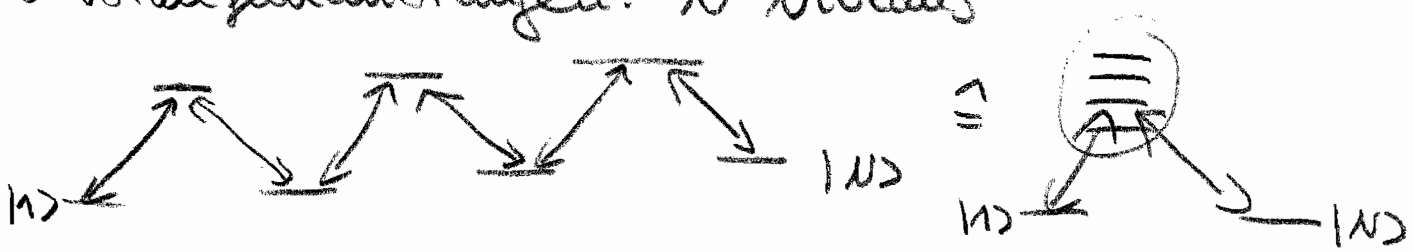
Adiabatizität erfordert große Pulsenergien!

Bemerkungen

- Stirap funktioniert analog für

Leiter Λ-System   V-System

- Vorteile: robust
  einfach zu implementieren
- Limitierungen: erfordert hohe Pulsenergien
  erfordert isolierte Niveaus
- Verallgemeinerungen: N Niveaus



falls $N = 2n+1$: es existiert ein EW $\varepsilon_0 = 0$
(Dunkelzustand)

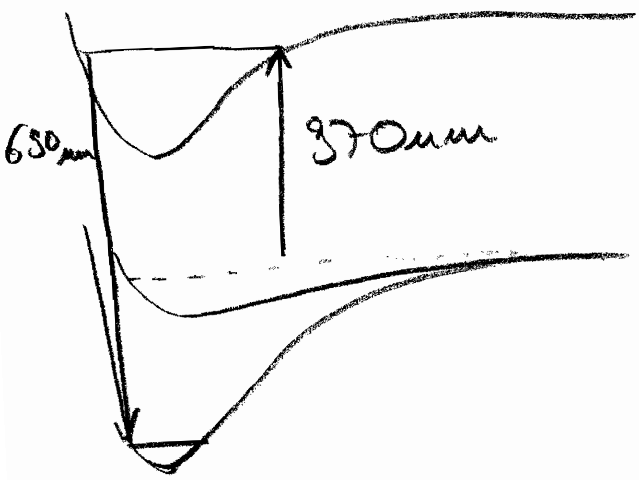
↝ Stirap

$N = 2n: \Delta_2 = \Delta_3 = \ldots = \Delta_{N-1} = 0 \leadsto$ kein EWO

- weitere adiabatische, z. B.

  SCRAP Stark chirped rapid adiabatic passage
  Oberst, Münch, Halfmann PRL 99, 173001 (2007)

- aktuelle Anwendung: Erzeugung von ultrakalten Molekülen im Grundzustand



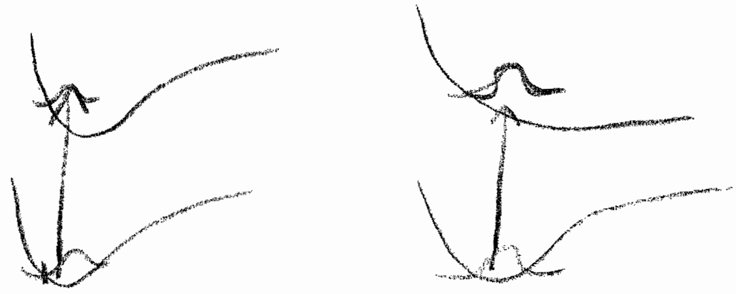
Ni et al
Science 322, no. 5899, p. 231
(2008)

Theorie Licht Mat
3.12.07 $\sqrt{4}$

3.2. Wellenpaketdynamik und Pump-Probe-Spektroskopie

(Tannor-Rice-Schema)

betrachten 2 BO-Potentiale



$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} \hat{T} + V_a(\hat{R}) & 0 \\ 0 & \hat{T} + V_b(\hat{R}) \end{pmatrix}$$

$$\hat{H}_1 = \begin{pmatrix} 0 & -\mu(R)E(t) \\ -\mu(R)E(t) & 0 \end{pmatrix}$$

Anfangszustand $\psi(R,0) = \begin{pmatrix} \psi_a(R) \\ 0 \end{pmatrix}$

erinnern: zeitabhängige Störungstheorie

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \lambda \hat{H}_1 \qquad |\psi(t)\rangle = \sum_n \lambda^n |\psi^{(n)}(t)\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi^{(0)}\rangle = \hat{H}_0 |\psi^{(0)}\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi^{(1)}\rangle = \hat{H}_0 |\psi^{(1)}\rangle + \hat{H}_1 |\psi^{(0)}\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi^{(2)}\rangle = \hat{H}_0 |\psi^{(2)}\rangle + \hat{H}_1 |\psi^{(1)}\rangle$$

$$|\psi^{(0)}(t)\rangle = e^{-i\hat{H}(t-t_0)}|\psi^{(0)}(t_0)\rangle \qquad \underbrace{+ e^{-i\hat{H}_0(t-t_0)}|\psi^{(1)}(t_0)\rangle}$$

$$|\psi^{(1)}(t)\rangle = \frac{?}{i} e^{-i\hat{H}_0 t} \int_{t_0}^{t} e^{i\hat{H}t'} \hat{H}_1(t') |\psi^{(0)}(t')\rangle$$

$$|\psi(t_0)\rangle = |\psi^{(0)}(t_0)\rangle$$

$$= \frac{1}{i}\int_0^t dt' \, e^{-i\hat{H}_0(t-t_0)} \hat{H}_1(t') \, e^{-i\hat{H}_0(t'-t_0)} |\psi^{(0)}(t_0)\rangle$$

$$|\psi^{(2)}(t)\rangle = \frac{1}{i^2}\int_{t_0}^t dt' \int_{t_0}^{t'} dt'' \, e^{-i\hat{H}_0(t-t')} \hat{H}_1(t') e^{-i\hat{H}_0(t'-t'')} \hat{H}_1(t'') e^{-i\hat{H}_0(t''-t_0)} |\psi^{(0)}(t_0)\rangle$$

<u>in erster Ordnung</u>

$$\begin{pmatrix} \psi_a^{(1)}(R,t) \\ \psi_b^{(1)}(R,t) \end{pmatrix} = \frac{1}{i}\int_{t_0}^t \begin{pmatrix} e^{-i\hat{H}_a(t-t')} & 0 \\ 0 & e^{-i\hat{H}_b(t-t')} \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} 0 & -\mu(R)E(t') \\ -\mu(R)E(t') & 0 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} e^{-i\hat{H}_a(t'-t_0)} & 0 \\ 0 & e^{-i\hat{H}_0(t'-t_0)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_a(R) \\ 0 \end{pmatrix}$$

$$= \begin{pmatrix} 0 \\ \frac{1}{i}\int_{t_0}^t dt' e^{-i\hat{H}_b(t-t')} [-\mu(R)E(t')] \, e^{-i\hat{H}_a(t'-t_0)} \psi_a(R) \end{pmatrix}$$

10.12.08

falls $\Psi_a(R,t_0) = \Psi_v^a(R)$ $\quad \hat{H}_a \Psi_v^a(R)$

$$e^{-iH_a(t-t_0)}\,\Psi_a(R,t_0) = e^{-iE_a(t-t_0)}\,\Psi_v^a(R)$$

falls $\mu(R) = \mu$ Franck-Condon-Näherung

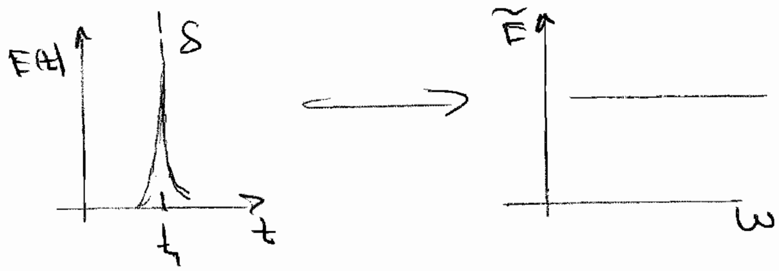
Überlapp der Wellenfunktionen bestimmt Anregungswahrscheinlichkeit $\int dR\, \Psi_v^{a*}(R)\, \Psi_{v'}^b(R)$

Spezialfall: $E(t') = \delta(t'-t_1)$

$$\Psi_b^{(1)}(R,t) = \frac{1}{i}\, e^{-iH_b(t-t_0)}\,(-\mu)\, e^{-iE_v^a(t_1-t_0)}\,\Psi_v^a(R)$$

$$\Psi_v^b(R)\,\mu\,\Psi_v^a(R) = -\frac{1}{i}\, e^{-iE_v^a(t_1-t_0)}\, e^{-i\hat{H}_b(t-t_1)}\,\Psi_v^b(R)$$

d.h. $\Psi_b^{(1)}(R,t) =$ Konstante $\times\, \mu\,\Psi_v^a(R)$ im angeregten Zustand propagiert



unendlich kurzer Puls ist spektral unendlich breit

kohärenter Puls → kohärente Superposition aller Schwingungswellenfunktionen in v_b, die guten FC-Überlapp mit dem Anfangszustand haben

allg. $E(t) = \sum_i \delta(t-t_i)$ → Superposition von Wellenpaketen, die interferieren können

Einfachstes Beispiel: Überlagerung von zwei Delta-Pulsen

$$E(t') = \delta(t'-t_1)\, e^{-i\omega_L t'} + \delta(t'-t_2)\, e^{-i\omega_L t'} e^{i\phi}$$

Parameter: ω_L, $t_2 - t_1$, delay
ϕ: rel. Phase der Pulse

$$\psi(R, t_0) = \psi_0^a(R)$$

$t_0 = 0$

$$\psi_b^{(1)}(R,t) = \frac{1}{i} e^{-i\hat{H}_b(t-t_1)} \left[-\mu e^{-i\omega_L t_1}\right] e^{-iE_0^a t_1} \cdot \psi_0^{(a)}(R)$$

$$+ \frac{1}{i} e^{-iH_b(t-t_2)} \left[-\mu e^{-i\omega_L t_2}\right] \cdot e^{-iE_0^a t_2} \cdot \psi_0^{(a)}(R)$$

$$= \frac{1}{i}\left(e^{i\hat{H}_b(t_2-t_1)} e^{-i\omega_L(t_2-t_1)} \cdot e^{-iE_0(t_2-t_1)} e^{i\phi} + 1\right) \cdot \psi_b^{(1,1)}(R,t)$$

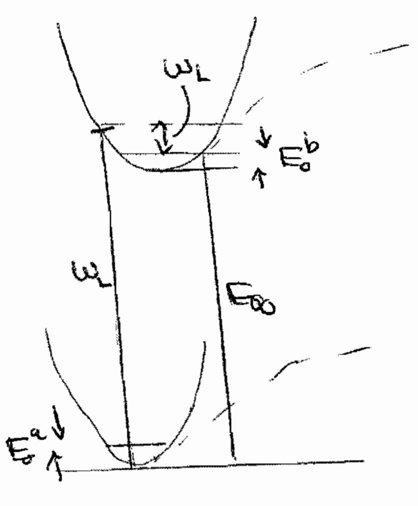
$$\psi_b^{(1,1)}(R,t) = e^{-iH_b(t-t_1)} \left[-\mu e^{-i\omega_L t}\right] e^{-iE_0^a t_1} \psi_0^{(a)}(R)$$

das durch den 1. Puls erzeugte Wellenpaket

mit $\tau = t_2 - t_1$

$\hat{H}_b' = \hat{H}_b - E_{00}'$ $\qquad E_{00}' = E_{00} + E_0^b$

$$\omega_L' = \omega_L + E_0^a - E_0^b$$



$$\psi_b^{(1)}(R,t) = \frac{1}{i}\left[e^{-iH_b'\tau} e^{-i\omega_L'\tau} e^{i\phi} + 1\right] \psi_b^{(1,1)}(R,t)$$

falls $V_b'(R) \simeq \frac{1}{2} m\, \omega_b^2 (R-R_b)^2$

period. Oszillation

$$e^{-iH_b'\tau_b} \psi(R,t) = \psi(R,0)$$

$\tau_b = \frac{2\pi}{\omega_b}$ Schwingungsdauer in V_b

$\omega_L' = n\,\omega_b + \Delta$; Δ = Verstimmung bzgl. Eigenzustand von $\hat{H}_b'$

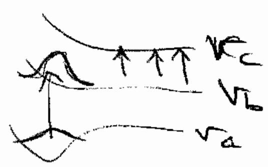
$$\Psi_b^{(1)}(R,t) = \frac{1}{i}\left[e^{-i\hat{H}_b'\tau}\, e^{i(n\omega_b+\Delta)\tau}\, e^{i\phi} + 1\right] \Psi_b^{(1,1)}(R,t)$$

$$= \frac{1}{i}\underbrace{\left[e^{-i(\Delta\tau-\phi)} + 1\right]}_{:=A} \Psi_b^{(1,1)}(R,t)$$

- falls $\Delta = \phi = 0 \rightarrow A = 2$
  Konstruktive Interferenz (beide Pulse führen zu Absorption)
- falls $\Delta = 0$, $\phi = \pm\pi \rightarrow A = 0$
  Destruktive Interferenz (1. Puls: Absorption; 2. Puls: Emission)
- falls $\Delta = 0$, $\phi = \pm\frac{\pi}{2} \rightarrow A = \pm(i+1)$
  $\langle \Psi^{(1)} | \Psi^{(1)} \rangle = 2$
  Konstruktiver Überlapp (Photon-Locking)
- falls $\Delta = \frac{1}{2}\omega_b$, $\phi = 0$
  $\rightarrow A = 0$ für $\tau = \tau_b$ (destr. Interf.)
  Pulse um π phasenverschoben

  $A = 2$ für $\tau = \frac{1}{2}\tau_b$ Wellenpakete räumlich getrennt $\rightarrow$ keine destrukt. IF

<u>In zweiter Ordnung Störungstheorie</u>



$$\Psi_c^{(2)}(R,t) = \frac{1}{i^2}\int_0^t\int_0^{t'} e^{-i\hat{H}_c(t-t')}$$
$$\left[\hat{\mu}_{bc} E(t')\right] e^{-i\hat{H}_b(t'-t'')}$$
$$\cdot\left[\mu_{ba}(E(t''))\right]\cdot e^{-i\hat{H}_a t''}\, \Psi(R_0)\, dt'\, dt''$$

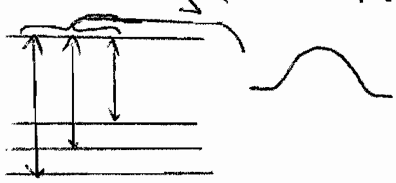
Interpretation: 2. WW befördert Teil-Wellepaket auf $v2$ (oder $v4$)

3.3 Bichromatische Kontrolle

(Kontrolle in der Frequenzdomäne)

Idee: benutze Interferenzen zwischen Übergängen mit versch. ω_i, um die Besetzung eines gewünschten Endzustands zu steuern

Realisierung: N CW-Laser mit definierter Phasenbeziehung. Oder: Puls, der alle ω_i enthält



$$\tilde{E}(\omega) = \sum_{i=1}^{N} \left(\tilde{E}_i(\omega)\, \delta(\omega-\omega_i) + \tilde{E}_i(-\omega)\, \delta(\omega+\omega_i)\right)$$

$$\tilde{E}_i(\omega) = |\tilde{E}_i(\omega)|\, e^{i\phi(\omega)}$$

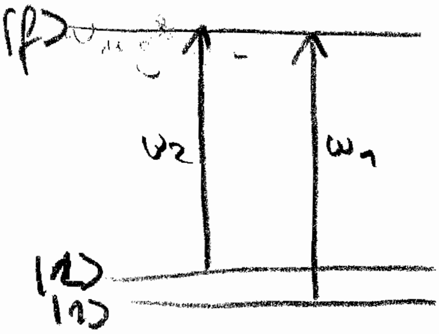
spektrale Amp. spektrale Phase

$$|\tilde{E}_i(-\omega)| = |\tilde{E}_i(\omega)| \qquad \phi(-\omega) = -\phi(\omega)$$

$$E(t) = 2 \sum_{i=1}^{N} |\tilde{E}(\omega_i)| \cos[\omega_i t - \phi(\omega_i)]$$

$$= 2 \sum_{i=1}^{N} \mathrm{Re}(\tilde{E}(\omega_i)\, e^{-i\omega_i t})$$

$$\hat{H}_I = -\hat{\mu} E(t) = -2\hat{\mu} \sum_{i=1}^{N} \mathrm{Re}[\tilde{E}(\omega_i)\, e^{-i\omega_i t}]$$



$$\hat H_I = -\hat\mu E(t) = -2\hat\mu \sum_{i=1}^{N} \mathrm{Re}\left[\tilde E_i(\omega_i) e^{-i\omega_i t}\right]$$

$N=2$ resonante Anregung $E_f = E_1 + \omega_1 = E_2 + \omega_2$

$\hat H_0 |E_n\rangle = E_n |E_n\rangle \qquad \hat H = \hat H_0 + \hat H_I$

$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi\rangle = \hat H |\psi\rangle$

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) e^{-iE_n t} |E_n\rangle$$

NR:
$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi\rangle = i\sum_n \left(\dot a_n e^{-iE_n t} - i a_n E_n e^{-iE_n t}\right)|E_n\rangle$$

$$= \sum_n \left(a_n E_n e^{-iE_n t} + a_n e^{-iE_n t} H_I\right)|E_n\rangle$$

$\sum_m |E_m\rangle\langle E_m|$:

$$i\dot a_m e^{-iE_m t} = \sum_n a_n e^{-iE_n t} \langle E_m|\hat H_I|E_n\rangle$$

$$\dot a_m(t) = \frac{1}{i}\sum_n a_n(t) e^{i\omega_{mn} t} \langle E_m|\hat H_I|E_n\rangle$$

mit $\omega_{mn} = E_m - E_n$

falls $a_1(t=-\infty) = 1 \quad a_m(t=-\infty) = 0 \ \forall m \neq 1$

schwaches Feld

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega_{mn} t} \langle E_m|\hat H_I|E_n\rangle \, dt \ll 1$$

$$a_m(t) = -\frac{1}{i}\int_{-\infty}^{t} dt'\, \mu_{m1}\, e^{i\omega_{m1}t}\, E(t')$$ 1. Ordnung Störungstheorie

$$= -\frac{\mu_{m1}}{i}\int_{-\infty}^{\infty} d\omega\, \tilde{E}(\omega) \int_{-\infty}^{t} dt'\, e^{i(\omega_{m1}-\omega)t'}$$

$$\mu_{m1} = \langle E_m | \hat{\mu} | E_1 \rangle$$

$t \to \infty$: Produktzustände des Kontrollprozesses

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt'\, e^{i(\omega_{m1}-\omega)t'} = 2\pi\,\delta(\omega_{m1}-\omega)$$

$$a_m(t=+\infty) = 2\pi i\, \tilde{E}(\omega_{m1})\, \mu_{m1}$$
$$= 2\pi i\, |\tilde{E}(\omega_{m1})|\, \mu_{m1}\, e^{i\phi(\omega_{m1})}$$

falls bei $t=-\infty$ $|E_1\rangle$ und $|E_2\rangle$ besetzt sind:

$$a_m(t=+\infty) = 2\pi i\, |\tilde{E}(\omega_{m1})|\, \mu_{m1}\, e^{i\phi(\omega_{m1})}\, a_1(t=-\infty)$$
$$+ 2\pi i\, |E(\omega_{m2})|\, \mu_{m2}\, e^{i\phi(\omega_{m2})}\, a_2(t=-\infty)$$

Wahrscheinlichkeit, den Zustand $|E_f\rangle$ zu finden

$$\boxed{\begin{aligned}\frac{1}{(2\pi)^2} P(E_f) &= |a_1|^2\, |\tilde{E}(\omega_{m1})|^2 \mu_1^2 \\ &+ |a_2|^2\, |\tilde{E}(\omega_{m2})|^2 \mu_2^2 \\ &+ 2\,\mathrm{Re}\left[a_1 a_2^* \tilde{E}(\omega_1)\, \tilde{E}^*(\omega_2)\, \mu_1 \mu_2\right]\end{aligned}}$$

Interferenzterm $\to$ Kontrollparameter
$a_1, a_2, \phi(\omega_1) - \phi(\omega_2)$
relative Phase

$$\frac{1}{(2\pi)^2} P(E_f) = \left[\mu_1^2 + x^2 \mu_2^2 + 2x \cos[\phi_1 - \phi_2] \cdot \mu_1 \mu_2 \right] |\tilde{E}(\omega_1)|^2 |a_1|^2$$

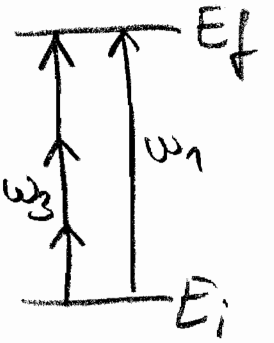
$$x = \frac{|\tilde{E}(\omega_2) a_2|}{|\tilde{E}(\omega_1) a_1|} \qquad \tan \phi_j = \frac{\operatorname{Im}[E(\omega_j) a_j]}{\operatorname{Re}[E(\omega_j) a_j]}$$

Kontrollvariable $s = \frac{x^2}{x^2+1}$ $\quad 0 \le s \le 1$ beschreibt alle relativen Laserintensitäten

$\Delta\phi = \phi_1 - \phi_2$ Variation der relativen Phase

Die Besetzung des Ziel-Niveaus $|E_f\rangle$ wird durch Variation von s und $\Delta\phi$, d.h. durch Variation der Anfangsbesetzungen sowie der relativen Intensität und Phase des Laser gesteuert.

analog: 1-Photon vs 3 Photonen-Interferenz



$$a_f(+\infty) = 2\pi i \left[\delta(\omega_1 - \omega_{fi}) \tilde{E}_1(\omega) \langle E_f | \hat{\mu} | E_i \rangle + \delta(3\omega_3 - \omega_{fi}) \tilde{E}_3^3(\omega) \underbrace{\langle E_f | \hat{\mu}^{(3)} | E_i \rangle}_{\mu_{fi}^{(3)}} \right]$$

$$\mu_{fi}^{(3)} = \sum_{je} \mu_{fi} \frac{1}{E_i - E_j + 2\omega_3} \mu_{je} \frac{1}{E_i - E_e + \omega_3} \mu_{ei}$$

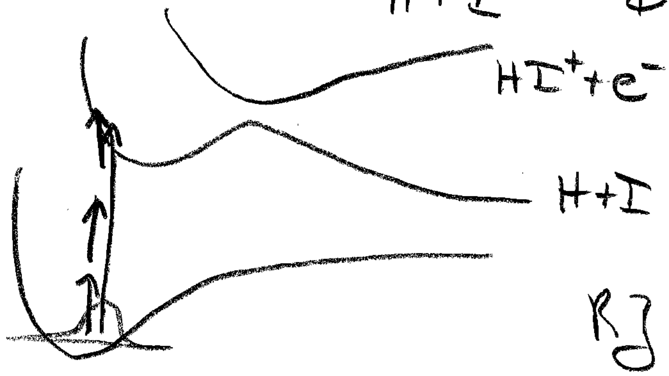
↳ Interferenzterm

$$P^{13}(E_f) = -2 (2\pi)^2 |\tilde{E}_1(\omega_1) \tilde{E}_3^3(3\omega_3)| \cdot \cos[\phi_1 - 3\phi_3 + \alpha] \, | F^{13} |$$

$$|\mathcal{F}^{(3)}|e^{i\alpha} = \sum_e \langle E_i|\hat{\mu}^{(3)}|E_e\rangle\langle E_e|\hat{\mu}|E_i\rangle$$

<u>Bsp:</u>

$$HI \longrightarrow HI^+ + e^- \quad \text{Ionisierung}$$
$$HI \searrow H + I \quad \text{Dissoziation}$$



RJ Gordon et al

Science 270, 77 (1995)

4. Theorie der optimalen Steuerung

Konzept:

$$\begin{array}{ccc} t=0 & & t=T \\ |\psi_i\rangle & \xrightarrow[\text{Gleichung}]{\text{Schrödinger-}} & |\psi_f\rangle \end{array}$$

geg.: Anfangs- und Zielzustand
Bewegungsgleichung

ges: äußeres Feld, so daß Zeitentwicklung

$$\hat{U}(T,0;\varepsilon)|\psi_i\rangle = |\psi_f\rangle \text{ liefert}$$

4.1 Theorem der Kontrollierbarkeit

(A) betrachten System von DGL

$$(*) \quad \dot{\vec{x}} = A\vec{x}(t) + B\vec{u}(t) \qquad \vec{x} = \begin{pmatrix} x_1 \\ \vdots \\ x_n \end{pmatrix} \quad \vec{u} = \begin{pmatrix} u_1 \\ \vdots \\ u_m \end{pmatrix}$$

(*) ist <u>kontrollierbar</u>, falls für jedes $\vec{x}_0$ und jedes $\vec{x}_f$ ein $\vec{u}(t)$ existiert, so dass $\vec{x}_f = \vec{x}(T)$ für $\vec{x}_0 = x(0)$ ist, $T>0$.

notwendige u. hinreichende Bedingung für Kontrollierbarkeit:

$$\text{Rank}(B, AB, \dots, A^{n-1}B) = n$$

7.1.09

(*) $\dot{\vec{X}} = \hat{A}\vec{x} + \hat{B}\vec{u}(t)$

$$\mathrm{Rank}\left(B, AB, A^2B, \ldots A^{N-1}B\right) = N$$

Bedingung für Kontrolle

Beweisskizze:

$$x(t) = \int_{t_0}^{t} e^{A(t-t')} B\vec{u}(t')\,dt' + e^{A(t-t_0)}\vec{x}(t_0)$$

formale Lsg. zu (*)

oBdA $\vec{x}(t_0) = 0$

$$e^{A(t-t')} = \sum_{i=0}^{N-1} \alpha_i A^i (t-t')^i$$

$$f(A) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n \hat{A}^n = \sum_{n=0}^{N-1} a_n' \hat{A}^n$$

Satz von Cayley-Hamilton

Satz von C.H.: "jede quadr. Matrix ist Nullstelle ihres charact. Polynoms": $P_F(A) = 0$

$$P_F(\lambda) = \det(\lambda 1 - \hat{A})$$

→ die Potenzen einer quadr. Matrix spannen einen Unterraum des Vektorraums aller quadr. Matrizen auf, der höchstens die Dimension N hat

→ Matrix von Rang N hat nur N linear unabh. Terme in Reihenentwicklung

$$\vec{x}(t) = \int_{t_0}^{t} \sum_{i=0}^{N-1} \alpha_i \, A^i (t-t')^i \, B \, \vec{u}(t') \, dt'$$

$\underset{i=0,\dots N-1}{A^i B \vec{u}}$ Vektoren bzw. Basis (Richtungen in $\mathcal{H}$)

Betrachte endl. Zeitintervall $[t_0, t]$, zerlegt in N Unterintervalle

$t_0 \quad t_1 \quad \dots \quad t_{N-1} \quad t$

betrachte $\vec{u}(t_i)$ als math. Kontrollparameter

$\rightarrow$ N unabh. $\vec{u}(t_i)$, mit denen jeder Punkt in Vektorraum, der durch die $\{A^i B \vec{u}\}$ aufgespannt wird, erreicht werden kann

Falls $\mathrm{Rank}(B, AB, \dots, A^{N-1}B) = N$
dann entspricht der UR der $\{A^i B \vec{u}\}$ dem gesamten VR

Anwendung auf $|\Psi\rangle$ in 1. Ordnung Störungstheorie

$$|\Psi_b^{(1)}\rangle = \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^{t} e^{-i\hat{H}_b (t-t')} \left[-\hat{\mu} E(t')\right] \cdot e^{-i E_i^a (t'-t_0)} \, |\Psi_i(t_0)\rangle \, dt'$$

Darstellung von $\hat{H}_{a/b}$ in endl. Basis der Dim N
(Bsp Fouriergitter)

$\rightarrow$ System kontrollierbar falls

$$\text{Rank}\left(|\psi_i\rangle,\ H_b |\psi_i\rangle, \dots, H_b^{N-1} |\psi_i\rangle \right) = 2N$$

d.h. N Basisfkt. + N unabhäng. $\vec{u}(t')$ können jeden beliebigen Zustand im Hilbertraum erzeugen (N-dim. Hilbertraum)

(B) betrachten ein System von DGL

$$\dot{\vec{x}}(t) = \left(A + \sum_{i=1}^{M} u_i(t) B_i \right) \vec{x}(t)$$ bilineare Kontrolle

$$A = -i\hat{H}_0 \qquad B = -i\hat{H}_I$$

wg. Normerhalt $\|\alpha_1 x(t_1) + \alpha_2 x(t_2)\| \neq 1$
Beweis für $\vec{x}$ nicht möglich

stattdessen betrachten wir den Zeitentwicklungsoperator

$$\dot{\hat{U}}(t) = \left(A + \sum_{i=1}^{M} u_i \hat{B}_i \right) \hat{U}(t) \qquad \hat{U}(0) = 1$$

Beweisskizze:

1) schreibe $\hat{U}(t) = e^{\hat{C}t}$; $\hat{C} = -\hat{C}^{+}$

C hat N^2 unabhängige Parameter
N ~~reelle~~ imag. Diagonalelemente + $\frac{1}{2}N(N-1)$ komplexe Außerdiagonalelemente

$\rightarrow \quad U = \exp\left[\sum_{i=1}^{N^2} \alpha_i C_i \right]$

C_i lin. unabh. Matrize mit $C_i = -C_i^\dagger$
(C_i "Erzeugende")

$\rightarrow$ können wir N^2 unabh. Koeffizient α_i generieren und kontrollieren?

2) betrachte 2 Erzeugende B_1, B_2,
wähle α_1, α_2 sodass

$$e^{B_1 t} \, e^{B_2 t} \, e^{-B_1 t} \, e^{-B_2 t} =$$
$$= 1 + [B_1, B_2]_- t^2 + o(t^3)$$
$$= e^{[B_1, B_2]_- t^2} + o(t^3)$$

$\rightarrow$ neue Erzeugende $[B_1, B_2]_-$

d.h. Iteration von Kommutatoren liefert neue Erzeugende

3) Falls B_1 und B_2 unabh. kontrolliert werden können und die $\{C_i\}$, $i = 1 \dots i_{max}$ sich als Linearkombinationen von Kommutatoren von B_1 und B_2 darstellen lassen [d.h. $\{C_i\} \in$ der von B_1 und B_2 erzeugten Algebra] dann lässt sich jeder unitäre Op. schreiben als

$$\hat{U} = \exp\left[\sum_{i=1}^{i_{max}} \alpha_i C_i \right]$$

Falls $i_{max} = N^2$, dann lässt sich jede beliebige unitäre $N \times N$ - Matrix darstellen.

→ Die unitäre Zeitentwicklung $\hat{U}$ eines N-Niveau-Systems ist vollständig kontrollierbar, falls die von $\{\hat{H}_0, \hat{H}_I, \ldots\}$ erzeugte Algebra die Dimension N^2 aufweist.

q.e.d.

strenger Beweis:
Schirmer et al. PRA 63, 063410 (2000)

<u>Bemerkungen</u>

(1) Für unendl.-dim. Systeme, nicht-unitäre Zeitentwicklung (dissipative) Systeme lässt sich i. A. <u>nicht</u> zeigen

(2) Systeme mit unendl., aber diskreten Spektrum sind kontrollierbar, falls die Kopplungs-Op. $\hat{B}_i$ eine endlich-dimensionale Lie-Algebra generieren.

Bsp.: Rangan et. al. RRL 92, 113004 (2004)

14.1.09

<u>4.2 Zeit-lokale Steuerungstheorie</u>

Kosloff PRL 69, 2172 (1992)
Gross PRA 47, 4593 (1993)

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\Psi\rangle = \underbrace{[\hat{H}_0 - \hat{\mu}E(t)]}_{\hat{H}}|\Psi\rangle$$

Steuerung = Lösen des inversen Problems

Messung $y(t) = \langle \Psi(t) | \hat{A} | \Psi(t) \rangle$

Input : $E(t)$
output : $y(t)$
deterministische Abb. $E(t) \to y(t)$

inverses Problem: bestimme $E(t)$, das $y(t)$ liefert

betrachte Änderung der gewünschten Größe

Annahme $\hat{A}(t) = \hat{A}$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{A} \rangle = \langle \frac{d\Psi}{dt} | \hat{A} | \Psi \rangle + \langle \Psi | \hat{A} | \frac{d\Psi}{dt} \rangle$$

$$= i \langle \Psi(t) | [\hat{H}, \hat{A}]_- | \Psi(t) \rangle$$

$$= i \langle [\hat{H}, \hat{A}]_- \rangle$$ Heisenberg-Gleichung

$$[\hat{H}, \hat{A}]_- = [\hat{H}_0, \hat{A}]_- - E(t) [\hat{\mu}, \hat{A}]_-$$

(a) angenommen, $[\hat{H}_0, \hat{A}]_- \approx 0$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{A} \rangle = -i \, E(t) \langle \Psi(t) | [-\hat{\mu}, \hat{A}] | \Psi(t) \rangle$$

$$E(t) = \left\{ \begin{matrix} +\lambda \\ -\lambda \end{matrix} \right\} i \langle \Psi(t) | [-\hat{\mu}, \hat{A}]_- | \Psi(t) \rangle$$

für $\left\{ \begin{matrix} \frac{d}{dt} \langle A \rangle \geq 0 \\ \frac{d}{dt} \langle A \rangle \leq 0 \end{matrix} \right.$

λ Gewicht , $\lambda(t)$ Einhüllende

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{A} \rangle = \pm \lambda \left(i \langle \Psi(t) | [-\hat{\mu}, \hat{A}]_- | \Psi(t) \rangle \right)^2$$

(b) angenommen, $[\hat{H}_0, \hat{A}]_- \neq 0$

$$E(t) = \lambda \frac{\langle \Psi(t) | [\hat{H}_0, \hat{A}]_- | \Psi(t) \rangle}{\langle \Psi(t) | [-\hat{\mu}, \hat{A}] | \Psi(t) \rangle}$$

mit

(i) $\lambda > -1$ falls $\langle \Psi(t) | [\hat{H}_0, \hat{A}]_- | \Psi(t) \rangle > 0$

$\lambda < -1$ falls $\langle \Psi(t) | [\hat{H}_0, \hat{A}]_- | \Psi(t) \rangle < 0$

für $\frac{d}{dt} \langle \hat{A} \rangle \geq 0$

(ii) $\lambda = -1$ für $\frac{d}{dt} \langle \hat{A} \rangle = 0$

(iii) $\lambda \leq -1$

$\lambda \geq -1$ für $\frac{d}{dt} \langle \hat{A} \rangle \leq 0$

<u>Beispiele</u>

(1) Zustandstransfer Zielzustand $|\varphi_v\rangle$

$\hat{A} = \hat{P}_v = |\varphi_v\rangle\langle\varphi_v|$

$$[\hat{H}, \hat{P}_v]_- = E(t) [-\hat{\mu}, \hat{P}_v]$$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{P}_v \rangle = i E(t) \Big(- \langle \Psi(t) | \hat{\mu} | \varphi_v \rangle \langle \varphi_v | \Psi(t) \rangle + \langle \Psi(t) | \varphi_v \rangle \langle \varphi_v | \hat{\mu} | \Psi(t) \rangle \Big)$$

$$= 2 E(t) \, \mathrm{Im} \Big[\langle \Psi(t) | \hat{\mu} | \varphi_v \rangle \cdot \langle \varphi_v | \Psi(t) \rangle \Big] \geq 0$$

$$E(t) = + \lambda \, \mathrm{Im} \big[\langle \Psi(t) | \hat{\mu} | \varphi_v \rangle \langle \varphi_v | \Psi(t) \rangle \big]$$

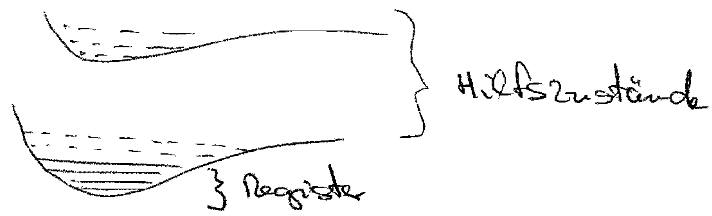
falls $\langle \Psi(t) | \varphi_v \rangle = 0$: man benötigt einen Seed-Puls

Zeitfunktion kann erzwungen werden, indem $\lambda = \lambda(t)$

(2) Unitäre Transformation

Sklarz + Tannor Chem. Phys. 322, 87 (2006)

a) mol. QC



$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_R \oplus \mathcal{H}_{aux}$$

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \mu\left[E(t) + E^*(t)\right]$$

Rechnung: in $[0,T]$ soll das System eine Zeitentwicklung derart durchführen, dass $\hat{U}(T,0)$ der gewünschten Operation $\hat{O}$ entspricht

$$J = \left| \mathrm{Tr}\left[\hat{O}_R^{+} \hat{U}_R(t)\right]\right|^2 \quad \text{Kontrollfunktion}$$

$$\hat{U}_R = \hat{P}_R \hat{U} \hat{P}_R \qquad \hat{P}_R^{+} = \hat{P}_R$$

Projektionsop. auf Registerzustände

Problem: $\hat{\mu} E(t)$ koppelt Registerzustände an Hilfszustände, aber Besetzung des Registers soll erhalten bleiben

$$\rightsquigarrow \quad C(t) = \mathrm{Tr}\left[\hat{U}_R^{+}(t) U_R(t)\right] \leq N_R$$

N_R: Zahl der Registerzustände

$C(t)$ gibt Maß für Abweichung von unitärer Zeitentwicklung im Unterraum der Registerzustände $\mathcal{H}_R$

lokale Steuerung: $\frac{d\mathcal{J}}{dt} \geq 0 \qquad \frac{dC}{dt} = 0$

- $\frac{dC}{dt} = \frac{d}{dt} \mathrm{Tr}\left[\hat{U}_R^+ U_R\right] \underset{\uparrow}{=} 2\,\mathrm{Re}\left[\mathrm{Tr}\left[\hat{U}_R^+ \hat{P}_R \frac{1}{i} \hat{H}_I \hat{U} \hat{P}_R\right]\right]$

$$i\frac{dU}{dt} = \hat{H}\hat{U}$$

$$i\frac{dU_R}{dt} = \hat{P}_R \hat{H} \hat{U} \hat{P}_R$$

benutzt: $H = H_0 - \mu \; (E + E^*)$

$$H_I = -\mu_I(E + E^*) \quad ; \quad \mu_I = e^{iH_0t} \mu e^{-iH_0t}$$

$$\frac{dC}{dt} = 2\,\mathrm{Im}\left[\mathrm{Tr}\left(\hat{U}_R^+ \hat{P}_R \hat{\mu}_I \hat{U} \hat{P}_R\right) E(t) + \mathrm{Tr}\left(\hat{U}_R^+ \hat{P}_R \hat{\mu}_I^+ \hat{U} \hat{P}_R\right) E^*(t)\right]$$

$\mathrm{Tr}(A) = \mathrm{Tr}(A^+)$
zykl. Inv. der Spur

$$= 2\,\mathrm{Im}\left[\text{———} - \text{———} \right.$$
$$\left. - \mathrm{Tr}\left(\hat{P}_R \hat{U}^+ \mu_I \hat{P}_R U_R\right) E(t)\right]$$

$$= 2\,\mathrm{Im}\left[g \cdot E(t)\right] \overset{!}{=} 0$$

$$g = \mathrm{Tr}\left(U_R^+ \hat{P}_R \hat{\mu}_I \hat{U} \hat{P}_R - \hat{P}_R \hat{U}^+ \hat{\mu} \hat{P}_R \hat{U}_R\right)$$

$\rightsquigarrow$ Bedingung erfüllt für $E(t) = \alpha \frac{g^*}{|g|} \qquad \alpha \in \mathbb{R}$

- $\frac{d\mathcal{J}}{dt} = \frac{d}{dt}\left|\mathrm{Tr}\left[\hat{O}_R^+ \hat{U}_R\right]\right|^2 = 2\,\mathrm{Re}\left[\eta^* \frac{d}{dt} \mathrm{Tr}\left[\hat{O}_R^+ U_R\right]\right]$

$$\eta^* = \mathrm{Tr}\left[\hat{O}_R^+ U_R\right]$$

$$= 2\,\mathrm{Re}\left[\eta^* \mathrm{Tr}\left[\hat{O}_R^+ \hat{P}_R \frac{1}{i} \hat{H}_I \hat{U} \hat{P}_R\right]\right]$$

$$= 2\alpha\,\mathrm{Re}\left[f \frac{g^*}{|g|}\right] > 0$$

$$f = \frac{1}{i}\,\mathrm{Tr}\left[\eta^* \hat{O}_R^+ \hat{P}_R \hat{\mu}_I \hat{U} \hat{P}_R - \eta \hat{P}_R \hat{U}^+ \hat{\mu}_I \hat{P}_R \hat{O}_R^+\right]$$

Bedingung erfüllt für

$$\alpha = \mathrm{Re}\,[f g^*] \quad \rightarrow \quad \frac{d\gamma}{dt} = \frac{2\alpha^2}{|g|} \geq 0$$

$$= f \cdot g \quad \text{(Skalarprodukt)}$$

$$\rightarrow \boxed{E(t) = (f \cdot g)\,\frac{g^*}{|g|}}$$

Bemerkung: f, g abhängig von $\hat{U}$

→ (numerisches) Lösen der SG: $i\frac{\partial \hat{U}}{\partial t} = \hat{H}_I \hat{U}$

b) QC mit gefangenen Ionen

Register  ...

(interne Zustände)

Fallenzustände ≙ QBus

$|n+1\rangle$

$|n\rangle$

$|n-1\rangle$

$\mathcal{H} = \mathcal{H}_R \otimes \mathcal{H}_{Bus}$ Produktraum, Liouville-Raum

→ müssen $\hat{\rho}$ betrachten

Liouville-Raum: $\hat{\rho} \rightarrow |\rho\rangle\rangle$ Vektor

$[\hat{H}, \cdot\,] \rightarrow \mathcal{H}$ (Super) op.

Einführung in Liouville-Raum

Shaul Mukamel: Principles of nonlinear optics + spectroscopy Kap. 2

$$|\rho(t)\rangle\rangle = \mathcal{U}\,|\rho(0)\rangle\rangle$$

$$\dot{\mathcal{U}} = -i\,\mathcal{H}\,\mathcal{U} \qquad \mathcal{U}(0) = 1$$

$\hat{\rho}_R = \mathrm{Tr}_{Bus}[\hat{\rho}]$ partielle Spur [Hilbert-Raum]

$$\mathcal{P}_R = 1_R \otimes N_{Bus}\,|1_{Bus}\rangle\rangle\langle\langle 1_{Bus}|$$

$$\rightarrow |\rho_R\rangle\rangle = N_{Bus}\,\langle\langle 1_{aux}|\rho\rangle\rangle$$

Bedingung: $\hat{\rho}$ soll separabel bleiben

$\hat{\rho} = \hat{\rho}_R \otimes \hat{\rho}_{Bus}$ (keine Verschränkung zw. $\hat{\rho}_R$ und $\hat{\rho}_{Bus}$)

$$|\rho\rangle\rangle = |\rho_R\rangle\rangle\,|\rho_{Bus}\rangle\rangle$$

$$\langle\langle\rho(0)|\,\mathcal{P}_R\,|\rho(0)\rangle\rangle = \langle\langle\rho(t)|\,\mathcal{P}_R\,|\rho(t)\rangle\rangle = \mathrm{const}$$
$$= \langle\langle\rho(0)|\,\mathcal{U}^+(t)\,\mathcal{P}_R\,\mathcal{U}(t)|\rho(0)\rangle\rangle$$

$$\mathcal{U}^+\mathcal{P}_R\,\mathcal{U} = \mathcal{P}_R \rightarrow [\mathcal{P}_R, \mathcal{U}]_- = 0$$

$$\|[\hat{\mathcal{P}}_R, \mathcal{U}]_-\| = 0 = \mathrm{Tr}\left([\mathcal{P}_R, \mathcal{U}]^+ \cancel{[\mathcal{P}_R \mathcal{U}^+ \mathcal{P}_R \mathcal{U}}\ [\mathcal{P}_R, \mathcal{U}]_-\right)$$

$$= 2\,\mathrm{Tr}(\mathcal{P}_R) - 2\,\mathrm{Tr}(\mathcal{P}_R\,\mathcal{U}^+\,\mathcal{P}_R\,\mathcal{U})$$

$$\mathrm{Tr}(\hat{\mathcal{P}}_R) = N_R^2 - c(t)\}$$

$$c = \mathrm{Tr}(\mathcal{P}_R\,\mathcal{U}^+\,\mathcal{P}_R\,\mathcal{U}) = \mathrm{Tr}(\mathcal{P}_R\,\mathcal{U}^+\,\mathcal{P}_R\,\mathcal{P}_R\,\mathcal{U}\,\mathcal{P}_R)$$
$$= \mathrm{Tr}(\mathcal{U}_R^+\,\mathcal{U}_R)$$

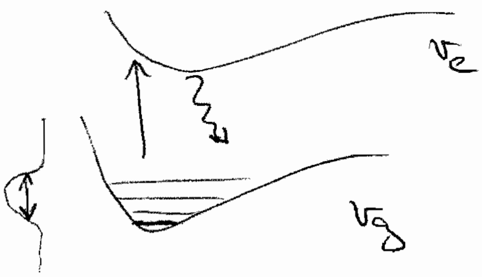
21.1.09

analog:

$$J = |\mathrm{Tr}(O_R \, U_R)|^2$$

$$\rightsquigarrow \boxed{E(t) = (\mathcal{F} \cdot g) \frac{g^*}{|g|}}$$

(3) Laserkühle von Moleküle (Schwingungsfreiheitsgrad)



dissipative Dynamik (notwendige Bed. für Kühlen: echte Entropieänderung $\Delta S > 0$

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -i [\hat{H}, \hat{\rho}]_- + \hat{\mathcal{L}}_D(\hat{\rho})$$

$$\hat{\mathcal{L}}_D(\hat{\rho}) = \hat{F} \hat{\rho} \hat{F}^+ - \frac{1}{2} [F^+ F, \hat{\rho}]_-$$

Lindblatt-Form von $\hat{\mathcal{L}}_D$

$$\hat{F} = \hat{\Gamma}(R) \otimes \hat{\sigma}_-$$

↑elektronischer Zustand: $\hat{\sigma}_- = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$

$$\hat{\Gamma}(R) = \gamma \, (\hat{V}_e(R) - \hat{V}_g(R))^{3/2}$$

Ziel: Besetzung von $v = 0$ in $V_g \hat{=} |0\rangle\langle 0| \otimes \hat{P}_g$

$$= |0\rangle\langle 0| \otimes |g\rangle\langle g|$$

(i) $$\frac{d}{dt} \langle |0\rangle\langle 0| \otimes \hat{P}_g \rangle = i \langle [\hat{H}, |0\rangle\langle 0| \otimes \hat{P}_g]_- \rangle + \langle \mathcal{L}_D(|0\rangle\langle 0| \otimes \hat{P}_g) \rangle$$

$$= 0$$

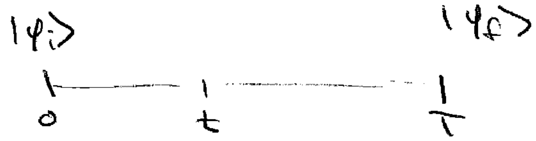
alles wird weggepumpt, außer der Zielzustand

(ii) maximales Kühlen durch max. Anregung

$$\frac{d}{dt}\langle \hat{P}_g \rangle < 0$$

siehe: Bartana, Kosloff, Tannor
Chem. Phys. 267, 195 (2001)

4.3 Zeit-globale Steuerungstheorie (OCT)



Informationen über Dynamik während des gesamten Zeitintervalls $[0, T]$ soll genutzt werden, um Ziel zu erreichen

$$F = |\langle \varphi_i | \hat{U}^+ (T, 0, E(t)) | \varphi_f \rangle|^2$$
$$= F[E(t)] \quad \text{Funktional des Feldes } E(t)$$

$\Rightarrow$ Variationsansatz: 2 Möglichkeiten

a) Variationsansatz + "Raten"
Zhu, Bodina, Rabitz
J Chem Phys 108, 1953 (1998)

b) Krotov-Methode
Sklarz + Tannor PRA 66, 053619 (2002)
Palao + Kosloff PRA 68, 062308 (2003)

zu a):
(1) "errate" das korrekte Funktional
(2) führe Variation aus, um Bewegungsglg. u. Gl. für $E(t)$ zu erhalten
(3) "errate" ein sinnvolles Iterationsschema, sodass das Verfahren konvergiert

zu b)

(1) bestimme "Zutaten"

$F[E(t)]$ + Bewegungsglg. + Randbedingungen

$J = F + J_a = J[\varphi, \varphi^*, E]$

(2) konstruiere Hilfsfunktional

$L[\varphi, \varphi^*, E, \phi] = J[\varphi, \varphi^*, E]$

wähle $\phi(t, \varphi, \varphi^*)$ so dass

$L[\varphi_j, \varphi_j^*, E_j, \phi] \leq L[\varphi_{j+1}, \varphi_{j+1}^*, E_{j+1}, \phi]$

$\rightarrow$ monotone Konvergenz garantiert

(3) bestimme $E(t)$ über Minimierung / Maximierung von L

Genauere Betrachtung von a)

(1) $$J = F + 2\,\mathrm{Re}\left[\int_0^T dt \langle \chi(t)| -\frac{\partial}{\partial t} + i\hat{H} |\varphi(t)\rangle\right] - \lambda(t) \int_0^T dt\, |E(t)|^2$$

- mit $F = \langle \varphi(T) | \hat{A} | \varphi(T)\rangle$; $\hat{A}$: Ziel-Op.
- $\langle \chi(t)|$ Lagrange-Multiplikator, der Einhaltung der SG erzwingt
- $\lambda(t)$: sinnvolles Ein- / Ausschalten

$$J = F - 2\,\mathrm{Re}\left[\langle \chi | \varphi\rangle \Big|_0^T\right] + 2\,\mathrm{Re} \int_0^T dt \left[\langle \chi | i\hat{H} | \varphi\rangle + \langle \dot{\chi} | \varphi\rangle\right] - \lambda(t) \int_0^T dt\, |E(t)|^2$$

(2) J hat Extremum für $\delta J = 0$

$J = J[\,|\varphi(t)\rangle, |\varphi(T)\rangle, E(t)\,]$

da $|\varphi(t)\rangle$, $|\varphi(T)\rangle$, $E(t)$ unabhängig

$\rightarrow \delta J = 0 = \delta_{|\varphi(t)\rangle} J$

$= \delta_{|\varphi(T)\rangle} J$

$= \delta_{E(t)} J$

$$\delta J = 2\,\mathrm{Re}\left[\langle\varphi(T)|\hat{A}|\delta\varphi(T)\rangle\right] - 2\,\mathrm{Re}\left[\langle\chi(T)|\delta\varphi(T)\rangle\right]$$
$$+ 2\,\mathrm{Re}\int_0^T dt \left\{\langle -\tfrac{1}{i}\hat{H}\chi(t)|\delta\varphi(t)\rangle + \langle\dot{\chi}(t)|\delta\varphi(t)\rangle\right\}$$
$$+ 2\,\mathrm{Re}\int_0^T dt \left\{\langle\chi(t)|-\tfrac{1}{i}\hat{\mu}|\varphi(t)\rangle\,\delta E(t)\right.$$
$$- \lambda(t)\, 2\int_0^T dt\, E(t)\,\delta E(t)$$

$\delta_{|\varphi(t)\rangle} J = 0 \iff i\frac{\partial}{\partial t}|\chi\rangle = \hat{H}\,|\chi\rangle$

$\delta_{|\varphi(T)\rangle} J = 0 \iff |\chi(T)\rangle = \hat{A}\,|\varphi(T)\rangle$ „Anfangs" beding.

physikal. Lösungen $\iff i\frac{\partial}{\partial t}|\varphi\rangle = \hat{H}\,|\varphi\rangle$

$|\varphi(0)\rangle = |\varphi_i\rangle$

$$\delta_{E(t)} J = 0 \iff \boxed{E(t) = \frac{i}{\lambda(t)}\langle\chi(t)|\hat{\mu}|\varphi(t)\rangle = -\frac{1}{\lambda(t)}\,\mathrm{Im}\left[\langle\chi(t)|\hat{\mu}|\varphi(t)\rangle\right]}$$

$\rightarrow$ zweiseitiges Grenzwertproblem

- Vorwärtspropagation $|\varphi(0)\rangle = |\varphi_i\rangle \longrightarrow |\varphi(t)\rangle$
- Rückwärtspropagation $|\chi(t)\rangle \longleftarrow |\chi(T)\rangle = \hat{A}|\varphi(T)\rangle$

28.1.09

aber: Satz gekoppelter nichtlinearer Glg.

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\varphi(t)\rangle = \hat{H}[E(t)]\,|\varphi(t)\rangle$$
$$i\frac{\partial}{\partial t}|\chi(t)\rangle = \hat{H}[E(t)]\,|\chi(t)\rangle$$
$$E(t) = -\frac{1}{\lambda(t)}\,\mathrm{Im}\left[\langle\chi(t)|\hat{\mu}|\varphi(t)\rangle\right]$$

$\rightarrow$ iterativ lösen

(3) · Initialisierung des iterativen Verfahrens

$\tilde{E}(t)$ guess pulse

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\chi^{(0)}\rangle = \hat{H}[\tilde{E}(t)]\,|\chi^{(0)}\rangle$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\varphi^{(1)}\rangle = \hat{H}[E^{(1)}(t)]\,|\varphi^{(1)}\rangle$$

$$E^{(1)}(t) = -\frac{1}{\lambda(t)}\,\mathrm{Im}\left[\langle\chi^{(0)}|\mu|\varphi^{(1)}\rangle\right]$$

· alle weiteren Schritte $j = 1, 2, \ldots$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\chi^{(j)}\rangle = \hat{H}[\tilde{E}^{(j)}(t)]\,|\chi^{(j)}\rangle$$

$$\tilde{E}^{(j)} = -\frac{1}{\lambda(t)}\,\mathrm{Im}\left[\langle\chi^{(j)}|\hat{\mu}|\varphi^{(j)}\rangle\right]$$

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\varphi^{(j+1)}\rangle = \hat{H}[E^{(j+1)}(t)]\,|\varphi^{(j+1)}\rangle$$

$$E^{(j+1)}(t) = -\frac{1}{\lambda(t)}\,\mathrm{Im}\left[\langle\chi^{(j)}|\mu|\varphi^{(j+1)}\rangle\right]$$

<u>Bemerkungen</u>

(1) Monotone Konvergenz des Algorithmus lässt sich durch Betrachtung des Funktionals $J^{(0)}, J^{(1)}, \ldots$ zeigen (Übung 7)

(2) Das Verfahren lässt sich leicht auf die Optimierung unitärer Transformationen verallgemeinen:

$$F = \cancel{|}\langle\varphi(T)|\hat{A}|\varphi(T)\rangle\cancel{|} \rightarrow \mathrm{Tr}[\hat{O}^{+}U(T,0)]$$

$$E(t) = -\frac{1}{\lambda(t)}\,\mathrm{Im}\left[\sum_k \langle\varphi_{ik}|\hat{O}^{+}\hat{U}^{+}(t,T)\,\hat{\mu}\,\hat{U}(t,0)|\varphi_{ik}\rangle\right]$$

(3) Die Konvergenzeigenschaften des Algorithmus sind abhängig von der Form des Funktionals. In der Krotov-Methode läßt sich zeigen, dass monotone Konvergenz bestimmte Bedingungen an die Gewichte λ_a der J_a entspricht.

(4) In den bisher bekannten Algorithmen geht monotone Konvergenz verloren, wenn man Bedingungen gleich<u>zeitig</u> an die Zeitliche und die spektrale Form des Feldes stellt

Teil II: Einführung in die Quantenoptik

5.1 Quantisierung des elektromagnetischen Feldes

Literatur: Skript (Fabre)
Haroche Raimond Exploring the quantum

Erinnerung an VL 15.10. Beschreibung des el. mag. Feldes durch Vektorpot. $\vec{A}(\vec{r},t)$ $\vec{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\vec{A}$

$$\vec{A}(\vec{r},t) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\vec{A}}(\vec{r},\omega)\, e^{-i\omega t}\, \frac{d\omega}{2\pi}$$

$$\tilde{\vec{A}}(\omega) = \tilde{\vec{A}}^*(-\omega) \quad \leftarrow \text{redundante Informat}$$

Redundanz kann beseitigt werden → komplexes Signal $\vec{A}^+(\vec{r},t) = \int_0^{\infty} \tilde{\vec{A}}(\vec{r},\omega)\cdot e^{-i\omega t}\,\frac{d\omega}{2\pi}$

betrachte Würfel der Länge L

$$\vec{A}^+(\vec{r},t) = \sum_{\ell} A_\ell(t)\,\vec{\varepsilon}_\ell\, e^{i\vec{k}_\ell\vec{r}}$$

$\ell = (n_x, n_y, n_z, s)$
$s = \pm$ Polarisationsrichtungen

$$A_\ell(t) = \frac{1}{L^3}\int_V d^3r\, \vec{A}^+(\vec{r},t)\, \vec{\varepsilon}_\ell\, e^{i\vec{k}_\ell\vec{r}}$$

räumliche Fouriertransf.

period. Randbedingungen: $k_{\ell x} = n_x \frac{2\pi}{L}$
ebenso für $k_{\ell y}, k_{\ell z}$

- Maxwell-Glg. in Coulomb-Eichung

$$\Delta \vec{A}^+ - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\vec{A}^+ = 0 \qquad \vec{\nabla}\cdot\vec{A}^+ = 0$$

$$\rightarrow \frac{d^2 A_\ell}{dt} = -\omega_\ell^2 A_\ell \qquad \omega_\ell = c\,|\vec{k}_\ell|$$

$$A_\ell(t) = A'_\ell(t)\, e^{-i\omega_\ell t}$$

$$\rightarrow \boxed{i\frac{d A_\ell}{dt} = \omega_\ell A_\ell(t)} \qquad (*)$$

- physikal. Größen $\vec{E}(\vec{r},t) = \vec{E}^+(\vec{r},t) + \vec{E}^{+*}(\vec{r},t)$

$$\vec{E}^+(r,t) = -i\sum_\ell \omega_\ell A_\ell(t)\, \vec{\varepsilon}_\ell\, e^{i\vec{k}_\ell \vec{r}}$$

$$\vec{B}^+(r,t) = i\sum_\ell \vec{k}\times\vec{\varepsilon}_\ell\, A_\ell(t)\, e^{i\vec{k}_\ell\vec{r}}$$

Energie des Feldes

$$H = \frac{\varepsilon_0}{2}\int_V d^3r\,(E^2 + c^2B^2) = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \omega_\ell^2\, |A_\ell|^2$$

- Quantisierung

Hamilton-Jacobi-Glg. für kanonisch konjugierte Variablen

$$\frac{d}{dt}q_j = -\frac{\partial H}{\partial p_j} \qquad \frac{d}{dt}p_j = -\frac{\partial H}{\partial q_j}$$

$$\{q_i(t), p_j(t)\} \rightarrow [\hat{q}_i, \hat{p}_j]_- = i\hbar\,\delta_{ij}$$

gewohnte Quantisierung der klassischen Mechanik was sind die kanonisch konjugierten Variablen in unserem Fall?

$$A_\ell(t) = A_{Q\ell}(t) + i A_{P\ell}(t)$$

$$H = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \omega_\ell^2 \left(A_{Q\ell}^2 + A_{P\ell}^2\right)$$

$$\frac{d}{dt} A_{Q\ell} = -\omega_\ell A_{P\ell} = -\frac{1}{4\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell} \frac{\partial H}{\partial A_{P\ell}}$$

$$\frac{d}{dt} A_{P\ell} = \omega_\ell A_{Q\ell} = \frac{1}{4\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell} \frac{\partial H}{\partial A_{Q\ell}}$$

$\rightarrow$ kanonisch konjugierte Variable

$$q_\ell(t) \leftrightarrow 2\sqrt{\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}\, A_{Q\ell}$$

$$p_\ell(t) \leftrightarrow 2\sqrt{\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}\, A_{P\ell}$$

$$\rightarrow [\hat{q}_\ell, \hat{p}_{\ell'}]_- = i\hbar\, \delta_{\ell\ell'}$$

$$\boxed{[\hat{A}_{Q\ell}, \hat{A}_{P\ell'}]_- = \frac{i\hbar}{4\varepsilon_0 \omega_\ell L^3} \cdot \delta_{\ell\ell'}}$$

$$\hat{A}_\ell = \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 \omega_\ell L^3}}\, \hat{a}_\ell$$

$$\hat{A}_\ell = \hat{A}_{Q\ell} + i\hat{A}_{P\ell} \rightarrow [\hat{A}_\ell, \hat{A}_{\ell'}^+] = \frac{\hbar}{2\varepsilon_0 \omega_\ell L^3} \delta_{\ell\ell'}$$

$$\boxed{[\hat{a}_\ell, \hat{a}_{\ell'}^+]_- = \delta_{\ell\ell'}}$$

$$\hat{A}^+(\vec{r}) = \sum_\ell \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 \omega_\ell L^3}}\, \hat{a}_\ell \vec{\varepsilon}_\ell e^{i\vec{k}_\ell \vec{r}}$$

$$\hat{H} = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \omega_\ell^2 \left(\hat{A}_{Q\ell}^2 + \hat{A}_{P\ell}^2\right) = \varepsilon L^3 \sum_\ell \omega_\ell \left(\hat{A}_\ell \hat{A}_\ell^+ + \hat{A}_\ell^+ \hat{A}_\ell\right)$$

$$\rightarrow \hat{H} = \sum_\ell \hbar\omega_\ell \left(\hat{a}_\ell^+ \hat{a}_\ell + \frac{1}{2}\right)$$

ℓ unabhängige lineare Oszillatoren

$q, p \mathrel{\hat{=}}$ Real, imag.-Teil der räumliche FT von $\vec{A}^+$

analog $q_\ell \leftrightarrow 2\sqrt{\frac{\varepsilon_0 L^3}{\omega_\ell}}\, E_{P\ell}$

$p_\ell \leftrightarrow 2\sqrt{\frac{\varepsilon_0 L^2}{\omega_\ell}}\, E_{Q\ell}$ Fourierkomponente des el. Feldes

$\hat{n}_\ell = \hat{a}_\ell^+ \hat{a}_\ell$ Besetzungszahl-op.

$\hat{n}_\ell |n_\ell\rangle = n_\ell |n_\ell\rangle \quad n_\ell \in \mathbb{N}$

$\rightarrow$ EZ von $\hat{H} \mathrel{\hat{=}}$ Tensorprodukt $|n_1\rangle \otimes \dots \otimes |n_\ell\rangle \otimes$

$= |n_1 \dots n_\ell \dots\rangle$

$\hat{H}|n_1 \dots n_\ell\rangle = \sum_\ell \hbar\omega_\ell (n_\ell + \frac{1}{2}) |n_1 \dots n_\ell \dots\rangle$

$\hookrightarrow$ enthält n_1 Photonen in Mode 1 Fock-Zustand

⋮

— " — n_ℓ — " — n_ℓ

Photonen in verschiedenen Basen

ebene Wellen = gleiche Amplitude überall in $V = L^3$

$\hat{b}_m^+ = \sum_\ell U_m^\ell \hat{a}_\ell^+ \qquad [\hat{b}_m, \hat{b}_{m'}^+]_- = \delta_{mm'}$

$\hat{b}_m^+ b_m$ Besetzungszahlop. für andere Art von Photonen

$\hat{a}_\ell = \sum_m U_m^\ell \hat{b}_m$

$\rightarrow \hat{A}^+ = \sum_m \hat{b}_m \vec{V}_m(\vec{r})$

$\vec{V}_m(\vec{r}) = \sum_\ell \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}}\, U^\ell{}_m \vec{\varepsilon}_\ell\, e^{i\vec{k}_\ell \vec{r}}$

$\{ \vec{V}_m(\vec{r}) \}$ Basis, in die kompl. Feld entwickelt wird; nicht notwendig orthogonal

$$\hat{b}_m^+ \hat{b}_m |\vec{V}_m; n_m\rangle = n_m |\vec{V}_m; n_m\rangle$$

n_m Photonen der Art $\vec{V}_m$

(a) Invarianz des Vakuums

$$|0\rangle = |n_1 = 0 \; \ldots \; n_\ell = 0 \; \ldots \rangle$$

$$\Rightarrow \hat{a}_\ell |0\rangle = 0 \cdot |0\rangle \qquad \forall \ell$$

$$\rightarrow \hat{b}_m |0\rangle = 0 \qquad \forall m$$

$\Rightarrow$ unitäre Transf. ändert Photonenzahl nicht

(b) Zustandswechsel

$$|\vec{V}_m; n_m\rangle = \frac{1}{\sqrt{n_m!}} (\hat{b}_m^+)^{n_m} |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{n_m!}} \left(\sum_\ell U_m^\ell \hat{a}_\ell^+ \right)^{n_m} |0\rangle$$

$$|\vec{V}_m; 1\rangle = \hat{b}_m^+ |0\rangle = \sum_\ell U_m^\ell \hat{a}_\ell^+ |0\rangle$$

$$= \sum_\ell U_m^\ell |n_\ell = 1\rangle$$

(c) Invarianz der Photonenzahl

$$\hat{N} = \sum_m \hat{b}_m^+ \hat{b}_m = \sum_\ell \hat{a}_\ell^+ \hat{a}_\ell$$

(d) Energie

$$\hat{H} = \sum_{mm'} E_{mm'} \hat{b}_m^+ \hat{b}_{m'}$$ i. A. nicht diagonal

nicht alle Moden sind Eigenmoden

4.2.09

Hinreichende Bedingungen für Erhalt d. Eigenmoden

$$U^l_m = 0 \qquad \text{falls } \omega_l \neq \omega_m$$

→ nur Mode mit gleicher Frequenz werden gemischt

$$\rightarrow \hat{A}^+(\vec{r}) = \sum_m \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 \omega_m}} \, \hat{b}_m \vec{V}_m(\vec{r})$$

$$\vec{V}_m(\vec{r}) = \sum_l \sqrt{\frac{1}{L^3}} \, U^l_m \, \vec{\varepsilon} \, e^{i\vec{k}\vec{r}}$$

↑ kein ω-Abhängigkeit

→ die $\vec{v}_m(\vec{r})$ stellen ein vONS dar:

$$\int_V d^3r \; \vec{v}_m(\vec{r}) \, \vec{v}^*_{m'}(\vec{r}) = \delta_{mm'}$$

$$\sum_m \vec{v}_m(\vec{r}) \, \vec{V}^*_m(\vec{r}') = \delta(\vec{r}-\vec{r}')$$

$$\rightarrow \hat{H} = \sum_m \hbar\omega_m \left(\hat{b}^+_m \hat{b}_m + \frac{1}{2} \right)$$

<u>Beispiel zu Moden</u>

I) Eigenmoden

- stehende Wellen $\hat{b}^+_{m\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{a}^+_{l=m} \pm \hat{a}^+_{l=-m} \right)$

$$\rightarrow \vec{V}_{m+}(\vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{2L^3}} \left(e^{ik_m z} + e^{-ik_m z} \right)$$

$$= \sqrt{\frac{2}{L^3}} \cos(k_m z)$$

$$V_{m-}(\vec{r}) = \ldots = \sqrt{\frac{2}{L^3}} \sin(k_m z)$$

- Kugelwellen → Ausbreitung

- Laguerre - Gauß - Moden $TEM_{\ell m}$ Zustände mit def. Drehimpuls

  Hermite - Gauß - Moden

II) andere Moden

- gepulste Moden

- Photonen im Frequenzkamm

<u>Feldobservablen</u>

- Impuls $$\vec{P} = \varepsilon_0 \int_V d^3r \; \vec{E}(\vec{r},t) \times \vec{B}(\vec{r},t)$$
$$= 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \omega_\ell \, |\hat{A}_\ell|^2 \, \vec{k}_\ell$$
$$= \sum_\ell \hbar \vec{k}_\ell \, \hat{a}_\ell^+ \hat{a}_\ell$$

  (nur) in der Basis hat ein Photon der Mode ℓ den Impuls $\vec{k}_\ell$

- Drehimpuls $$J = \varepsilon_0 \int_V d^3r \; \vec{r} \times (\vec{E} \times \vec{B})$$
$$= L + S$$

5.2 Photonenzustände

A) Fock-Zustände

$$\hat{a}_e^+ \hat{a}_e |n_e\rangle = n_e |n_e\rangle$$

$$|n_e\rangle = \frac{1}{\sqrt{n_e!}} \left(\hat{a}_e^+\right)^{n_e} |0\rangle \qquad n_e = 0, 1, \ldots$$

VONS $\quad \langle n_e | n_{e'}\rangle = \delta_{n_e n_{e'}}$

$$\sum_{n_e=0}^{\infty} |n_e\rangle\langle n_e| = 1$$

B) kohärente Zustände (Nobelpreis 2005)

$$|\alpha\rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle \quad ; \quad \alpha \in \mathbb{C}, \ \alpha \neq 0$$

$$|\alpha\rangle = \hat{D}(\alpha)\, |0\rangle \qquad \text{mit } \hat{D}(\alpha) = e^{\alpha \hat{a}^+ - \alpha^* \hat{a}}$$

unitärer Verschiebe-Operator

Eigenschaften:

- $\langle \alpha | \alpha \rangle = 1$
- $\langle \beta | \alpha \rangle \neq 0$
- $\hat{a} |\alpha\rangle = \alpha |\alpha\rangle$

  $\langle \alpha | \hat{a}^+ = \alpha^* \langle \alpha |$
- $\frac{1}{4} \langle \alpha | [\hat{p}, \hat{q}]_- | \alpha \rangle = \frac{\hbar^2}{4}$ minimale Unschärfe
- $P(n) = |\langle n | \alpha \rangle|^2 = \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} e^{-|\alpha|^2}$

kohärenter Zustand = Analogon zu Gaußschem Wellepaket im harmon. Potential

c) gequetschte Zustände (squeezed states)

Klasse von Zuständen mit minimaler Unschärfe

$$\Delta\hat{q}_{l}\,\Delta\hat{p}_{l} = \frac{\hbar}{2} \qquad \hat{q}_l = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega_l}}\,(\hat{a}_l + \hat{a}_l^+)$$

$$\hat{p}_l = i\sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{2}}\,(\hat{a}_l - \hat{a}_l^+)$$

$$\Delta\hat{q} = \sqrt{\langle\hat{q}^2\rangle - \langle\hat{q}\rangle^2}$$

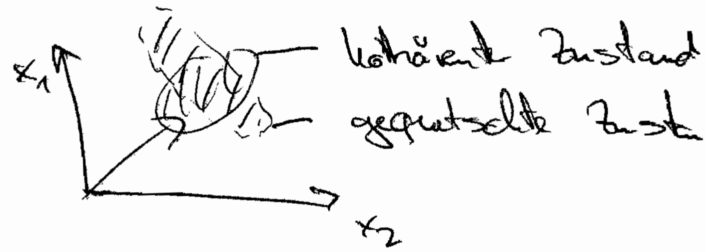
$$\hat{A}_l = \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0\omega_l L^3}}\,\hat{a}_l$$

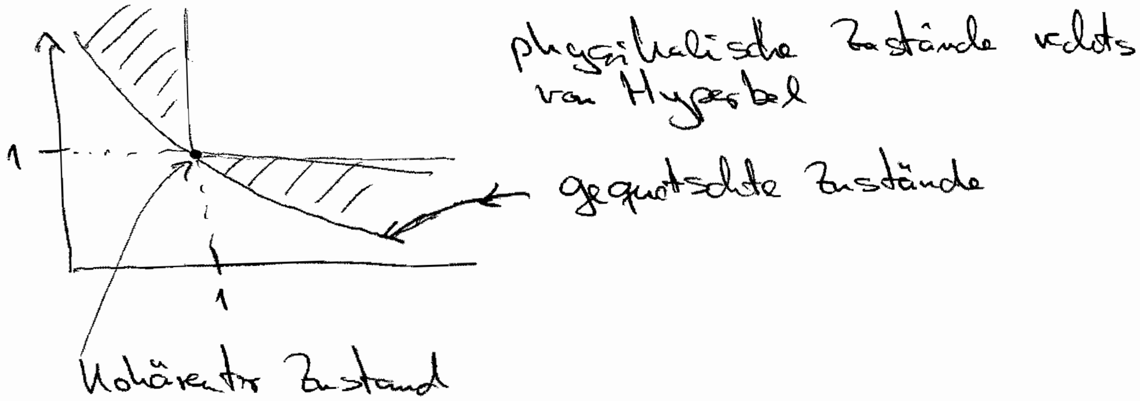
$$\hat{A}_l = \hat{A}_{ql} + i\,\hat{A}_{pl}$$

$$\hat{a} = \frac{1}{2}(\hat{X}_1 + i\hat{X}_2) \qquad [\hat{X}_1, \hat{X}_2]_- = 2i \qquad \Delta X_1 \Delta X_2 \geq 1$$

$\curvearrowright$ min. Unschärfe $\Delta\hat{X}_1\,\Delta\hat{X}_2 = 1$

kohärenter Zustand $\Delta X_1 = \Delta X_2 = 1$

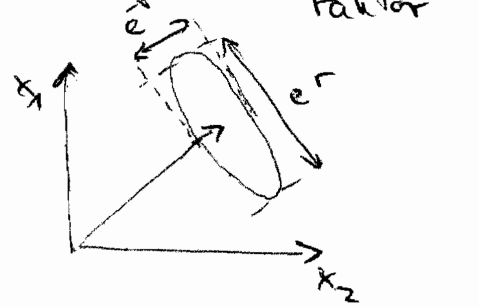




Quetsch-Operator $\hat{S}(\varepsilon) = e^{\frac{1}{2}\varepsilon^* \hat{a}^2 - \frac{1}{2}\varepsilon \hat{a}^{+2}}$

$\varepsilon = r \cdot e^{i\phi}$

$r = |\varepsilon|$ Quetsch-Faktor



$\hat{S}^+(\varepsilon) = \hat{S}^{-1}(\varepsilon) = \hat{S}(-\varepsilon)$

$|\alpha, \varepsilon\rangle = \hat{D}(\hat{\alpha})\,\hat{S}(\varepsilon)\,|0\rangle$

$\langle \alpha, \varepsilon | \hat{n} | \alpha, \varepsilon \rangle = |\alpha|^2 + \sinh^2 r$

<u>Wignerfunktion</u>

Dichte-Op. des Feldes $\hat{\rho} = \sum P(n)\, |n\rangle\langle n|$ Fock-Zusta

$= |\alpha\rangle\langle\alpha|$ kohärenter Zustand

charakteristische Fkt. des Dichte-operators

$\chi(\eta) = \mathrm{Tr}\left[\hat{\rho}\, e^{\eta \hat{a}^+ - \eta^* \hat{a}}\right]$ bestimmt $\hat{\rho}$ eindeutig

$W(\alpha) = \frac{1}{\pi^2} \int e^{\eta^* \alpha - \eta \alpha^*} \chi(\eta)\, d^2\eta$

Wignerfkt = Fouriertransformierte der char. Fkt. $\chi(\eta)$

$\int d^2\alpha\, W(\alpha) = 1$

$\hat{a} = \frac{1}{2}(\hat{x}_1 + i\hat{x}_2)$ $\quad \hat{x}_i |x_i\rangle = x_i |x_i\rangle$

$w(x_1, x_2) = \frac{1}{4} W(\alpha)\Big|_{\alpha = \frac{1}{2}(x_1 + i x_2)}$

a) kohärenter Zustand

$W(x_1', x_2') = \frac{1}{2\pi} \exp\left[-\frac{1}{2}\left((x_1' - x_1)^2 + (x_2' - x_2)^2\right)\right]$

b) gequetschter Zustand

$$W(x_1', x_2') = \frac{1}{2\pi} \exp\left[-\frac{1}{2}\left((x_1'-x_1)^2 e^{2r} + (x_2'-x_2)^2 e^{-2r}\right)\right]$$

c) Fockzustand $|n\rangle$

$$W(x_1, x_2) = \frac{2}{\pi}(-1)^n L_n(4r^2)\, e^{-2r^2} \qquad r^2 = x_1^2 + x_2^2$$

L_n: Laguerre-Polynom

Es existieren weitere Verteilungsfunktionen, die der Darstellung des elektromagnetischen Feldes dienen, z.B. P-, Q-Repräsentation

5.3 Wechselwirkung eines Atoms mit dem quantisierten Feld: Jaynes-Cummings-Modell

$$\hat{H} = \hat{H}_M + \underset{\text{radiation}}{\underset{\uparrow}{\hat{H}_R}} + \underset{\text{interaction}}{\underset{\uparrow}{\hat{H}_I}}$$

$$\hat{H}_M = \sum_j E_j \hat{b}_j^+ \hat{b}_j \qquad \hat{b}_j^+, \hat{b}_j \text{ fermionische op.}$$

$$\hat{H}_R = \sum_k \hbar\omega_k \hat{a}_{\vec{k}}^+ \hat{a}_{\vec{k}} \qquad \hat{a}_{\vec{k}}^+, \hat{a}_{\vec{k}} \text{ bosonische op.}$$

$$\hat{H}_I = \hat{H}_{DE} + \hat{H}_{DM} + \hat{H}_{QE} + \hat{H}_{MQ}$$

$$\hat{H}_{DE} = e\,\hat{\vec{D}}\,\hat{\vec{E}}(\vec{r}) \qquad \lambda \gg a_0 \quad \text{Dipol-Näherung } \vec{E}(\vec{r}) \simeq \vec{E}(0)$$

$$\hat{\vec{D}} = \sum_{ij} \vec{D}_{ij} |i\rangle\langle j| = \sum_{ij} \vec{D}_{ij} \hat{b}_j^+ \hat{b}_i$$

$$\hat{\vec{E}}(\vec{r}) = -i \sum_\ell \omega_\ell \hat{A}_\ell(t) \vec{\varepsilon}_\ell e^{i\vec{k}\vec{r}} + c.c.$$

$$= -i \sum_\ell \underbrace{\sqrt{\frac{\hbar\omega_\ell}{2\varepsilon_0 L^3}}}_{E_\ell} \varepsilon_\ell \underbrace{e^{i\vec{k}\vec{r}}}_{\approx 1} \hat{a}_\ell^+ + c.c.$$

in Dipolnäherung

$$\boxed{\hat{H}_I \approx \hat{H}_{DE} = \hbar \sum_{\vec{k}ij} g_{\vec{k}ij} (\hat{a}_{\vec{k}} + \hat{a}_{\vec{k}}^+) \hat{b}_j^+ \hat{b}_i}$$

$$g_{\vec{k}ij} = -i \sqrt{\frac{\omega_{\vec{k}}}{2\hbar\varepsilon_0 V}} \vec{\varepsilon}_k \cdot \vec{D}_{ij} \cdot \underbrace{\left(e^{i\vec{k}\vec{r}_0}\right)}$$

Wechselwirkungskonstanten

falls Koordinatensystem verschoben

11.2.09

<u>Im Wechselwirkungsbild:</u>

$$\tilde{\hat{H}}_I(t) = \hbar \sum_{\vec{k}ij} g_{kij} (\hat{a}_{\vec{k}} e^{-i\omega_k t} + \hat{a}^+ e^{+i\omega_k t}) \hat{b}_i^+ \hat{b}_j e^{i\omega_{ij} t}$$

Rotating wave approximation

$\omega_{\vec{k}} \approx \omega_{ij}$ → vernachlässigen Terme, die mit $\omega_{\vec{k}} + \omega_{ij}$ oszillieren

$$\rightarrow \tilde{\hat{H}}_I(t) \approx \hbar \sum_{\vec{k}ij} g_{\vec{k}ij} \hat{a}_{\vec{k}} \hat{b}_i^+ \hat{b}_j e^{-i(\omega_{\vec{k}} - \omega_{ij})t} + c.c.$$

Annahme: nur 2 Niveaus mit nahresonanten Übergang

$\omega_a = \omega_{21}$

$$\hat{\sigma}^+ = \hat{b}_2^+ \hat{b}_1 \qquad \sigma^- = \hat{b}_1^+ \hat{b}_2 \qquad \sigma_z = \hat{b}_2^+ \hat{b}_2 - \hat{b}_1^+ b_1$$

$$\rightsquigarrow \tilde{\hat{H}} = \underbrace{\frac{1}{2}\hbar\omega_a \hat{\sigma}_z}_{\tilde{\hat{H}}_M} + \underbrace{\sum_{\vec{k}} \hbar\omega_{\vec{k}} \hat{a}_{\vec{k}}^+ \hat{a}_{\vec{k}}}_{\tilde{\hat{H}}_R} + \hbar \sum_{k} \left(g_k \hat{a}_k \hat{\sigma}^+ + g_k^* \hat{a}_k^+ \hat{\sigma}^- \right)$$

Annahme: high finesse cavity $\rightarrow$ nur 1 Feldmode ω_0

$$\boxed{\hat{H} = \frac{1}{2}\hbar\omega_a \hat{\sigma}_z + \hbar\omega_0 \hat{a}^+ \hat{a} + \hbar (g \hat{a} \hat{\sigma}^+ + g^* \hat{a}^+ \hat{\sigma}^-)}$$

Jaynes-Cummings-Modell

Lösung des Jaynes-Cumming-Modells

(A) $\quad g = 0 \qquad \hat{H}^{(0)} = \frac{1}{2}\hbar\omega_a \hat{\sigma}_z + \hbar\omega_0 \hat{a}^+ \hat{a}$

Eigenzustände: $\{ |g,n\rangle, |e,n\rangle \}$ $\quad ; |g,n\rangle = |g\rangle \otimes |n\rangle$

$$\hat{H}^{(0)} |g,n\rangle = \hbar\omega_L (n + \tfrac{1}{2}) |g,n\rangle$$

$$\hat{H}^{(0)} |e,n\rangle = [\hbar\omega_a + \hbar\omega_0 (n + \tfrac{1}{2})] |e,n\rangle$$

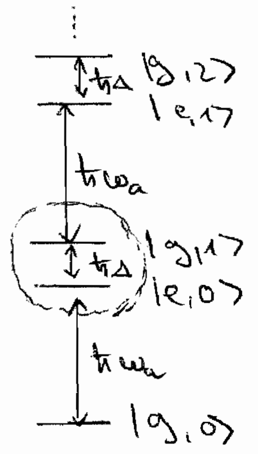
$$\Delta = \omega_a - \omega_0$$

$\rightsquigarrow$ Eigenwerte $\quad E_{g,n} = \hbar\omega_0 (n + \frac{1}{2})$

$$E_{e,n} = \hbar\omega_0 ((n+1) + \tfrac{1}{2}) - \hbar\Delta$$

$$\rightsquigarrow E_{g,n} - E_{e,n-1} = \hbar\Delta$$

$$E_{e,n} - E_{g,n} = \hbar\omega_a$$



"Familie"
$|g,n\rangle$
$|e,n-1\rangle$

(B) $g \neq 0 \qquad g = -\sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon_0 V}}\, \vec{\mu}\vec{\mathcal{E}}$

$$\tilde{\hat{H}}_I = \hbar g\,(\hat{a}\,\hat{\sigma}^+ + \hat{a}^+\hat{\sigma}^-)$$

→ Kopplung nur innerhalb von Familien

$\sigma^+|g\rangle = e \quad \hat{\sigma}^-|e\rangle = g$

$\hat{a}\,|n\rangle = \sqrt{n}\,|n-1\rangle$

$\hat{a}^+|n\rangle = \sqrt{n+1}\,|n+1\rangle$

$$\langle e, n-1|\tilde{\hat{H}}_I|g, n\rangle = \langle g, n|\tilde{\hat{H}}_I|e, n-1\rangle = g\sqrt{n}$$

Rabi-Frequenz $\Omega_n = \frac{2}{\hbar} g\sqrt{n}$

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} E_{g,0} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \hat{H}_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \hat{H}_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \ddots\ \hat{H}_n \end{pmatrix}$$

block-diagonal

→ Eigenzustände:

$$|1, n\rangle = \sin\vartheta_n\,|g, n\rangle + \cos\vartheta_n\,|e, n-1\rangle$$
$$|2, n\rangle = \cos\vartheta_n\,|g, n\rangle - \sin\vartheta_n\,|e, n-1|$$

$$\tan 2\vartheta_n = \frac{\Omega_n}{\Delta}$$

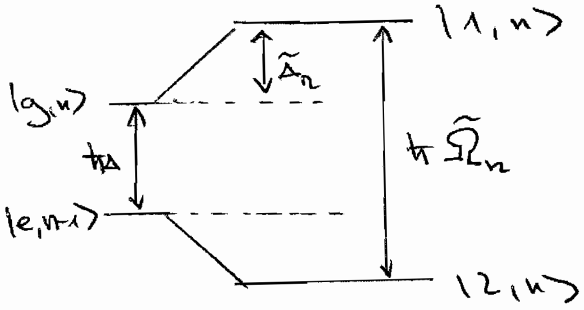
Eigenwerte:

$$E_{1,n} = \frac{1}{2}\left(E_{g,n} + E_{e,n-1} + \hbar\tilde{\Omega}_n\right) = E_{g,n} + \tilde{\Delta}_n$$

$$\tilde{\Delta}_n = \frac{\hbar}{2}\left(\tilde{\Omega}_n - \Delta\right)$$
$$\tilde{\Omega}_n = \sqrt{\Delta^2 + \Omega_n^2}$$

$$E_{2,n} = \frac{1}{2}\left(\ \text{—}\ \cdot\ \text{—}\ - \hbar\tilde{\Omega}_n\right) = E_{g,n} - \tilde{\Delta}_n$$

$\rightarrow E_{1,n} - E_{n,2} = \hbar \tilde{\Omega}_n$



Rabi - Oszillationen

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi\rangle = \hat{H} |\psi\rangle$$

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n \left(c_{1,n}\, e^{-\frac{i}{\hbar} E_{1,n} t} |1,n\rangle + c_{2,n}\, e^{-\frac{i}{\hbar} E_{2,n} t} |2,n\rangle \right)$$

(i) $t=0$: Atom im Grundzustand koppelt an Fock-Zustand

$$|\psi(0)\rangle = |g,n\rangle$$
$$|\psi(t)\rangle = \cos\vartheta_n\, |1,n\rangle - e^{-i\tilde{\Omega}_n t} \sin\vartheta_n\, |2,n\rangle$$

Wk, dass Atom in $|e\rangle$

$$P_e(t) = \sum_n |\langle e, n-1 | \psi(t)\rangle|^2\, P_{Fock}(n)$$

$$= |\langle e, n-1 | \psi(t)\rangle|^2$$

$$= \frac{\Omega_n^2}{\tilde{\Omega}_n^2} \sin^2\left(\tfrac{1}{2} \tilde{\Omega}_n t\right)$$

für $\Delta_n = 0$: $P_e(t) = \sin^2\left(\frac{1}{\hbar} g \sqrt{n}\, t\right)$

analog zu semi-klassischem Ergebnis

(ii) $t=0$: Atome in $|g\rangle$ koppelt an kohärenten Zustand

$$|\alpha\rangle = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle$$

$$P_{coh}(n) = \frac{1}{n!} |\alpha|^{2n} e^{-\langle\hat{n}\rangle} \qquad \langle n\rangle = |\alpha|^2$$

$$P_e(t) = \sum_n |\langle e, n-1 | \psi(t)\rangle|^2 P_{coh}(n)$$

$$= e^{-|\alpha|^2} \sum_n \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} \frac{\Omega_n^2}{\tilde{\Omega}_n^2} \sin^2\left(\tfrac{1}{2}\tilde{\Omega}_n t\right)$$

für $\Delta_n = 0$: $P_e(t) = e^{-|\alpha|^2} \sum_n \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} \sin^2\left(\frac{1}{\hbar} g \sqrt{n}\, t\right)$

diskrete Superposition harm. Oszillatoren mit inkommensurablen Frequenzen

→ quasi per. Verhalten: Kollaps u. Revival !

(iii) $t=0$: Atom in g koppelt a thermische Zustand

$$P_{th} = \frac{\langle n\rangle^n}{(1+\langle n\rangle)^{n+1}} \qquad \text{Planck-Verteilung}$$

$$P_e(t) = \sum_n \frac{\langle n\rangle^n}{(1+\langle n\rangle)^{n+1}} \frac{\Omega_n^2}{\tilde{\Omega}_n^2} \sin^2\left(\tfrac{1}{2}\tilde{\Omega}_n t\right)$$

schnelle Dekohärenz sogar bei kleinem $\langle n\rangle$

(iv) $t=0$: Atom in $|e\rangle$, $|n\rangle = 0$ Vakuum-Rabi-Oszillationen

für $\Delta = 0$ $P_e(t) = \frac{1}{2}\left[1 + \cos\left(2g\sqrt{n+1}\, t\right)\right]$

exp. beobachtet: Rydberg-Atom in supraleitender Kavität

[Rb, $n = 51 \to 50$]

Brune et al. PRL 76, 1800 (1996)

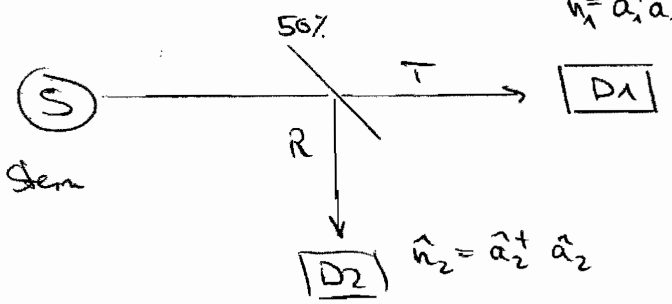
Analogie Photonen = Phononen $\hat{a}^+\hat{a}$

→ Ion in harm. Paul-Falle $\hat{=}$ Jaynes-Cummings-Modell

Exp. Be^+ in Grundzustand angeregt, sodass Fock-Zustände, gequetschte u. kohärente Zustände

Meekhof et al. PRL 76, 1796 (1996)

5.4 Hanbury Brown & Twiss-Effekt



$\hat{n}_1 = \hat{a}_1^+\hat{a}_1$

$\hat{n}_2 = \hat{a}_2^+\hat{a}_2$

$$|n\rangle = \frac{(\hat{a}^+)^n}{\sqrt{n!}}|0\rangle$$

$$\hat{a}^+ = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a}_1^+ + \hat{a}_2^+)$$

$$\hat{a} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a}_1 + \hat{a}_2)$$

$$\langle\hat{n}_1\rangle = \langle n|\hat{a}_1^+\hat{a}_1|n\rangle = \frac{1}{n!}\langle 0|\hat{a}^n\hat{a}_1^+\,\hat{a}_1\,(\hat{a}^+)^n|0\rangle$$

$$= \frac{1}{2}n = \langle\hat{n}_2\rangle$$

Korrelationsfkt (second order coherence)

$$g^{(2)}(\vec{r}_1 t_1, \vec{r}_2 t_2; \vec{r}_2 t_2\, \vec{r}_1 t_1)$$

$$= \frac{\langle\hat{E}^-(r_1,t_1)\,\hat{E}^-(r_2 t_2)\,\hat{E}^+(r_2 t_2)\,\hat{E}^+(r_1 t_1)\rangle}{\langle\hat{E}^-(r_1 t_1)\,\hat{E}^+(r_1 t_1)\rangle\langle\hat{E}^-(r_2 t_2)\,E^+(r_2 t_2)\rangle}$$

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{n}_1 , \hat{n}_2 \rangle}{\langle n_1 \rangle \langle n_2 \rangle} \quad ; \quad \tau = t_2 - t_1$$

gemessen: Koinzidenzen an Detektoren 1 und 2

$$\langle (\hat{n}_1 - \langle n_1 \rangle)(\hat{n}_2 - \langle \hat{n}_2 \rangle) \rangle = \langle \hat{n}_1 , \hat{n}_2 \rangle - \langle \hat{n}_1 \rangle \langle \hat{n}_2 \rangle$$

$$\frac{\langle (\hat{n}_1 - \langle n_1 \rangle)(\hat{n}_2 - \langle \hat{n}_2 \rangle) \rangle}{\langle \hat{n}_1 \rangle \langle \hat{n}_2 \rangle} = g^{(2)}(\tau) - 1$$

Für Fock-Zustand:

$$g^{(2)}(\tau) - 1 = - \frac{1}{\langle \hat{n} \rangle}$$

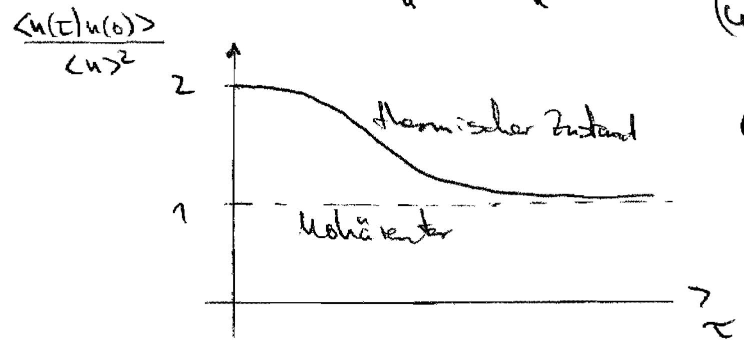
allgemein gilt $g^{(2)}(\tau) \geq 1 - \frac{1}{\langle \hat{n} \rangle}$

Für kohärenten Zustand $g^{(2)}(\tau) = 1$

Für thermischen Zustand $g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{n}_1(\tau)\, \hat{n}_2(0) \rangle}{\langle \hat{n}_1 \rangle \langle \hat{n}_2 \rangle}$

$$= e^{-2\gamma\tau} + 1$$

$$\langle \hat{n}_k \rangle \, \omega_k \sim \frac{\gamma / \pi}{(\omega_0 - \omega_k)^2 + \gamma^2}$$



photon bunching stat. Eigenschaft von Bosonen