

量子光学・光物性

田中 耕一郎

1 電磁場と物質との相互作用

1.1 電磁場

1.1.1 源がない場合の Maxwell 方程式

$$\begin{cases} \nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \\ \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \\ c^2 \nabla \times \mathbf{B} = \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{cases}$$

ポテンシャル

$$\begin{cases} \mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \\ \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} - \nabla \phi \end{cases}$$

ゲージ不変性

$$\begin{cases} \mathbf{A}' = \mathbf{A} + \nabla f \\ \phi' = \phi - \frac{\partial f}{\partial t} \end{cases}$$

任意のスカラー f を上記のように加えても \mathbf{B} と \mathbf{E} は不変。

以下ではクーロンゲージ (Coulomb gauge) をとる。

すなわち、

$$\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$$

ゲージを書き換えると

$$\begin{cases} (\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}) \mathbf{A} = 0 \\ \nabla \cdot \mathbf{A} = 0 \\ \phi = 0 \end{cases}$$

クーロンゲージではベクトルポテンシャル \mathbf{A} は横波成分のみをもつ。 \mathbf{A} を変数分離型で書くと、

$$\begin{aligned}
\mathbf{A} &= \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0}} \sum_l q_l(t) \mathbf{u}_l(\mathbf{r}) = 0 \\
\left(\Delta + \frac{\omega_l^2}{c^2}\right) \mathbf{u}_l(\mathbf{r}) &= 0 \\
\nabla \cdot \mathbf{u}_l(\mathbf{r}) &= 0 \\
\frac{d^2 q_l(t)}{dt^2} + \omega_l^2 q_l(t) &= 0
\end{aligned}$$

ここで、 $q_l(t) = q_l^\pm e^{\pm i\omega_l t}$ とする。

3次元キャビティ中での定在波を考えている。 u_l は定在波の振幅、 ω_l は固有振動数。

・もし、電荷と電流が存在するとどうなるか。

$$\begin{cases}
\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \\
\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\
\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \\
c^2 \nabla \times \mathbf{B} = \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{j}
\end{cases}$$

$$\begin{cases}
\rho = \sum_i q_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t)) \\
\mathbf{j} = \sum_i q_i v_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t))
\end{cases}$$

$$\boxed{\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j} = 0}$$

空間に対するフーリエ変換 (\mathbf{k}_n の平面波)

ここで、 \mathbf{k}_n に平行、垂直な電場を $\mathbf{E}_n = \mathbf{E}_{\parallel n} + \mathbf{E}_{\perp n}$ 。(縦電場と横電場)

$$\begin{cases}
i\mathbf{k}_n \cdot \tilde{\mathbf{E}}_n = \frac{\tilde{\rho}_n}{\epsilon_0} \\
i\mathbf{k}_n \times \tilde{\mathbf{E}}_n = -\frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{B}}_n \\
i\mathbf{k}_n \cdot \tilde{\mathbf{B}}_n = 0 \\
c^2 (i\mathbf{k}_n \times \tilde{\mathbf{B}}_n) = \frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{E}}_n + \frac{1}{\epsilon_0} \tilde{\mathbf{j}}_n
\end{cases}$$

< 縦電場 >

$$\begin{aligned}
i\mathbf{k}_n \cdot \tilde{\mathbf{E}}_{\parallel n} &= \frac{\tilde{\rho}_n}{\epsilon_0} \\
\text{or } \nabla \cdot \mathbf{E}_{\parallel} &= \frac{\rho}{\epsilon_0} \\
\mathbf{E}_{\parallel}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_i q_i \frac{\mathbf{r} - \mathbf{r}_i}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t)|^3}
\end{aligned}$$

< 横電場 >

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{B}}_n &= -i\mathbf{k}_n \times \tilde{\mathbf{E}}_{\perp n} \\
\frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{E}}_{\perp n} &= c^2 (i\mathbf{k}_n \times \tilde{\mathbf{B}}_n - \frac{1}{\epsilon_0} \tilde{\mathbf{j}}_{\perp n})
\end{aligned}$$

連続の式から、

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + i\mathbf{k}_n \cdot \tilde{\mathbf{j}}_n = 0$$

$$\tilde{\mathbf{j}}_n = \tilde{\mathbf{j}}_{n\parallel} + \tilde{\mathbf{j}}_{n\perp} \text{ とすると、 } \boxed{\tilde{\mathbf{k}}_n \cdot \tilde{\mathbf{j}}_{\perp} = 0}$$

$$i\mathbf{k}_n \cdot \left(\frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{E}}_n \right) = \left(\frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{E}}_{n\perp} + \frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{E}}_{n\parallel} \right) = i \frac{\partial \rho}{\partial t} \mathbf{k} = (i\tilde{\mathbf{k}}_n \cdot \tilde{\mathbf{j}}_{\parallel}) \cdot \mathbf{k}_n$$

$$\mathbf{k}_n \cdot \left(\frac{d}{dt} \tilde{\mathbf{E}}_{n\parallel} + \frac{1}{\epsilon_0} \tilde{\mathbf{j}}_{\parallel} \right) = 0$$

偏光を考えて、スカラーで表記すると、

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \tilde{B}_l = -ik_l \tilde{E}_l \\ \frac{d}{dt} \tilde{E}_l = -ic^2 k_l \tilde{B}_l - \frac{1}{\epsilon_0} j_{l\parallel} \end{cases}$$

ベクトルポテンシャル

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \tilde{A}_l = -\tilde{E}_l(t) \\ \frac{d}{dt} \tilde{E}_{l\perp} = \omega_l^2 \tilde{A}_l - \frac{1}{\epsilon_0} j_{l\perp} \end{cases}$$

もし、 $\tilde{j}_{l\perp} = 0$ なら、

$$\boxed{\frac{d^2}{dt^2} \tilde{A}_l + \omega_l^2 \tilde{A}_l = 0}$$

1.1.2 量子化

一辺の長さが L の完全導体に囲まれた場合の電磁場

$$u_{(l,m)} = \frac{2}{\sqrt{V}} e_x \sin\left(\frac{l\pi}{L} y\right) \sin\left(\frac{m\pi}{L} z\right) \quad (l \neq m = 1, 2, \dots, V)$$

電磁波のエネルギーは、

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= \frac{1}{2} \int_V (\epsilon_0 \mathbf{E}^2 + \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}^2) d^3 \mathbf{r} \\ &= \frac{\epsilon_0}{2} \int_V (\mathbf{E}^2 + c^2 \mathbf{B}^2) d^3 \mathbf{r} \\ &= \frac{1}{2} \sum_l (\dot{q}_l^2 + \omega_l^2 q_l^2) \\ &= \sum_l \mathcal{H}_l \quad (\mathcal{H}_l = \frac{1}{2} (\dot{q}_l^2 + \omega_l^2 q_l^2)) \end{aligned}$$

\mathcal{H}_l は調和振動子と同じハミルトニアン。

正準変数 $q_l, p_l = \dot{q}_l$

$$\mathcal{H}_l = \frac{1}{2}(\dot{q}_l^2 + \omega_l^2 q_l^2)$$

正準量子化、 $[\hat{q}_l, \hat{p}_{l'}] = i\hbar\delta_{l,l'}$

$$\begin{cases} \hat{q}_l = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega_l}}(\hat{a}_l^\dagger + \hat{a}_l) \\ \hat{p}_l = i\sqrt{\frac{\hbar\omega_l}{2}}(\hat{a}_l^\dagger - \hat{a}_l) \end{cases}$$

$$[\hat{a}_l^\dagger, \hat{a}_{l'}] = \delta_{l,l'}$$

$$\mathcal{H}_l = \hbar\omega_l(\hat{a}_l^\dagger \hat{a}_l + \frac{1}{2})$$

cavity 中の定在波の Maxwell 方程式を正準量子化できた。
エネルギー状態に対して、

$$\begin{aligned} |\alpha\rangle, \alpha &= |\alpha|e^{i\theta} \\ \langle\alpha|\hat{E}|\alpha\rangle &= 2\epsilon^{|\alpha|}\sin(\omega t - kz - \theta) \\ \langle\alpha|\hat{E}^2|\alpha\rangle &= \epsilon^2[4|\alpha|^2\sin^2(\omega t - kz - \theta) + 1] \end{aligned}$$

平均二乗偏差 or 揺らぎ

$$\begin{aligned} \Delta E &= \sqrt{\langle\alpha|\hat{E}^2|\alpha\rangle - (\langle\alpha|\hat{E}|\alpha\rangle)^2} \\ &= \epsilon \end{aligned}$$

十分大きい $|\alpha|$ であれば揺らぎ ϵ は無数でき、古典的な $\sin\omega t$ の光と考えることができる。

$$\boxed{\text{強い光}} \iff \boxed{\text{古典的な波}}$$

1.2 物質と電磁場の相互作用

$$\left\{ \begin{array}{l} \cdot \text{物質のハミルトニアン} \\ \cdot \text{単一モード電磁場のハミルトニアン} \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \hat{\mathcal{H}}_m = \frac{1}{2m}\hat{p}^2 + \hat{V}(r) \\ \hat{\mathcal{H}}_F = \hbar\omega(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{1}{2}) \end{array}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \hat{n} = \hat{a}^\dagger\hat{a} \\ \hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle \\ \hat{a}^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle \end{array} \right.$$

注)ここでは簡単のために原子の最外核の電子を考えている。電荷は $q(= -e)$ とする。

まず、物質系のハミルトニアンを考える。簡単のために基底状態 $|g\rangle$ と励起状態 $|e\rangle$ の2準位だけを考えるとする。この場合、

$$\hat{\mathcal{H}}_m = E_g|g\rangle\langle g| + E_e|e\rangle\langle e|$$

ここで、 E_g, E_e は基底、励起状態それぞれのエネルギーである。パウリ行列

$$\hat{\sigma}_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \hat{\sigma}_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \hat{\sigma}_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

ここで

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}_+ &\equiv \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_x + i\hat{\sigma}_y) = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \\ \hat{\sigma}_- &\equiv \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_x - i\hat{\sigma}_y) = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \end{aligned}$$

なので、 $\hat{\sigma}_+$ や $\hat{\sigma}_-$ は遷移をあらわす。

スピン 1/2 の演算子

$$\hat{S}_x = \frac{1}{2}\hat{\sigma}_x, \quad \hat{S}_y = \frac{1}{2}\hat{\sigma}_y, \quad \hat{S}_z = \frac{1}{2}\hat{\sigma}_z$$

$$\hat{S}_\pm = \hat{S}_x \pm i\hat{S}_y = \hat{\sigma}_\pm$$

$$\begin{aligned}
\hat{S}^2 &= \hat{S}_x^2 + \hat{S}_y^2 + \hat{S}_z^2 = S(S+1) = \frac{1}{2} \times \frac{3}{2} = \frac{3}{4} \\
&= \frac{1}{4} \left[\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \right] \\
&= \frac{3}{4} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}
\end{aligned}$$

$$[\hat{S}_i, \hat{S}_j] = i\epsilon_{ijk}\hat{S}_k$$

ここでスピン演算子を導入する。
エネルギーの原点を E_g と E_e の中点にとると、

$$\hat{\mathcal{H}}_m = \frac{\hbar\omega_0}{2}(-|g\rangle\langle g| + |e\rangle\langle e|)$$

ただし、 $\hbar\omega_0 = E_g - E_e$ 。
なので、パウリ演算子を用いて、

$$\hat{\mathcal{H}}_m = \frac{\hbar\omega_0}{2}\hat{\sigma}_z$$

と書ける。スピン 1/2 の演算子で書くと、

$$\hat{\mathcal{H}}_m = \hbar\omega_0\hat{S}_z$$

参考 同様に

$$\begin{aligned}
|g\rangle\langle e| &= \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} = \hat{\sigma}_+ = \hat{S}_+ \\
|e\rangle\langle g| &= \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} = \hat{\sigma}_- = \hat{S}_-
\end{aligned}$$

(a) 電磁場下でのハミルトニアン

$$\begin{aligned}
\hat{\mathcal{H}} &= \frac{1}{2m}(\hat{\mathbf{p}} - q\hat{\mathbf{A}})^2 + \hat{V}(r) + \hat{\mathcal{H}}_F \\
&= \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + \hat{V}(r) + \frac{-q}{2m}(\hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{A}} + \hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}}) + \frac{q^2}{2m}\hat{\mathbf{A}}^2 + \hat{\mathcal{H}}_F \\
&= \hat{\mathcal{H}}_m + \hat{\mathcal{H}}_F + \frac{-q}{2m}(\hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{A}} + \hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}}) + \frac{q^2}{2m}\hat{\mathbf{A}}^2
\end{aligned}$$

(b) $\hat{\mathcal{H}}_{I2}$ 項

まず、 $\hat{\mathbf{A}}^2$ の相互作用の項を考える。

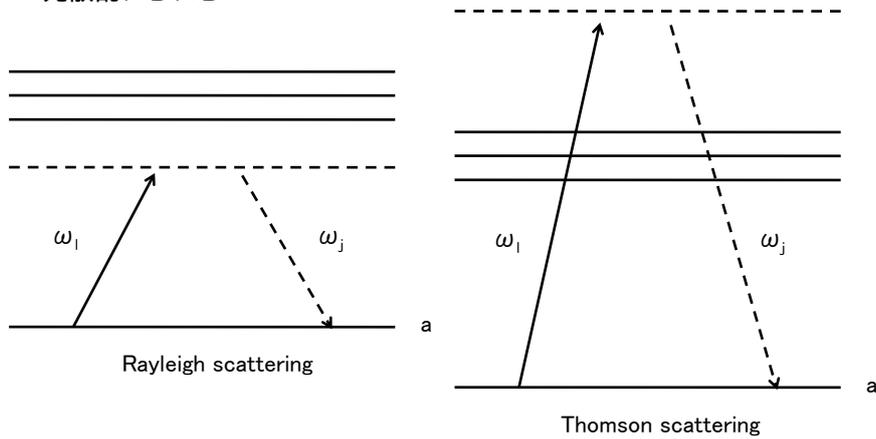
$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{H}}_{I2} &= \frac{q^2 \hat{\mathbf{A}}^2}{2m} \propto (e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \hat{a} + e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \hat{a}^\dagger) \\ &= e^{2i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \hat{a}^2 + e^{-2i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \hat{a}^{\dagger 2} + (\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})\end{aligned}$$

この項は物質系の状態を変化させない。一方 \hat{a}^2 や $\hat{a}^{\dagger 2}$ は photon の数を 2 個減らしたり、増やしたりする項である。明らかに全系のエネルギーを考えると、このようなことが起きるのは小さい。従って主要な寄与は、 $(\hat{a}\hat{a}^\dagger + \hat{a}^\dagger\hat{a})$ の項からくる。

これは、もし単一モードでなければ、 $(\hat{a}_l \hat{a}_j^\dagger + \hat{a}_l^\dagger \hat{a}_j)$ のように拡張する。

これは物質の状態を変える「弾性散乱」である。

・光散乱いろいろ



(c) $\hat{\mathcal{H}}_{I1}$ 項

$$\hat{\mathcal{H}}_{I1} = \frac{-q}{2m} (\hat{\mathbf{p}} \cdot \hat{\mathbf{A}} + \hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}}) = \frac{-q}{m} \hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}}$$

ここで $\hat{\mathcal{H}}_{I1}$ は物質の基底・励起状態間の遷移を起こすと仮定すると、

$$\hat{\mathcal{H}}_{I1} = \frac{-q}{m} |e\rangle \langle e| \hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}} |g\rangle \langle g| + \frac{-q}{m} |g\rangle \langle g| \hat{\mathbf{A}} \cdot \hat{\mathbf{p}} |e\rangle \langle e|$$

ここで、

$$\mathbf{A} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega\epsilon_0 V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \hat{a} + e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \hat{a}^\dagger$$

$u(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ とかくと、

$$\hat{\mathcal{H}}_{I1} = \hbar[\chi|e\rangle\langle g| \otimes \hat{a} + \chi'|e\rangle\langle g| \otimes \hat{a}^\dagger + \chi'^*|g\rangle\langle e| \otimes \hat{a} + \chi^*|g\rangle\langle e| \otimes \hat{a}^\dagger]$$

ここで

$$\begin{cases} \chi = \frac{-q}{m} \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar}} \langle e|u \cdot \hat{\mathbf{p}}|g\rangle \\ \chi' = \frac{-q}{m} \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar}} \langle e|u^* \cdot \hat{\mathbf{p}}|g\rangle \end{cases}$$

時間依存性

$$\begin{cases} \hat{a} \sim e^{-i\omega t} \\ \hat{a}^\dagger \sim e^{+i\omega t} \\ |e\rangle\langle g| \sim e^{+i\omega_0 t} \\ |g\rangle\langle e| \sim e^{-i\omega_0 t} \end{cases}$$

であると考え、

$$\hat{\mathcal{H}}_{I1} = \hbar[\chi|e\rangle\langle g| \otimes \hat{a} + \chi'|e\rangle\langle g| \otimes \hat{a}^\dagger + \chi'^*|g\rangle\langle e| \otimes \hat{a} + \chi^*|g\rangle\langle e| \otimes \hat{a}^\dagger]$$

各項の時間依存性はそれぞれ、 $e^{-i(\omega-\omega_0)t}$, $e^{i(\omega+\omega_0)t}$, $e^{-i(\omega+\omega_0)t}$, $e^{i(\omega-\omega_0)t}$ となる。

今、光の周波数 ω が物質の励起エネルギー ω_0 に近いと考えると、($\omega \sim \omega_0$)

$$\begin{aligned} e^{i(\omega+\omega_0)t} &\sim e^{i2\omega t} \\ e^{-i(\omega+\omega_0)t} &\sim e^{-i2\omega t} \end{aligned}$$

ほぼ 2 倍の周波数で変化する

十分に長い時間の相互作用を考えると、この項は無視できる。

これを 回転波近似 と呼ぶ。

回転波近似を用いると、

$$\hat{\mathcal{H}}_{I1} = \hbar[\chi\hat{S}_+\hat{a} + \chi^*\hat{S}_-\hat{a}^\dagger]$$

$$\left. \begin{array}{l} |g\rangle \rightarrow |e\rangle \\ \text{光子消滅} \end{array} \right) \text{ 吸収過程} \quad \left. \begin{array}{l} |e\rangle \rightarrow |g\rangle \\ \text{光子生成} \end{array} \right) \text{ 放出過程}$$

パラメータ χ について考える。 長波長近似 双極子近似

$$\begin{aligned}\chi &= \frac{-q}{m} \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar}} \langle e | \mathbf{u} \cdot \hat{\mathbf{p}} | g \rangle \\ &= \frac{-q}{m} \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar V}} \langle e | e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \cdot \hat{\mathbf{p}} | g \rangle\end{aligned}$$

「長波長近似」: $\hat{\mathbf{p}}$ が $\hat{\mathbf{r}}_0$ にほぼ局在していると考え。 (例えば原子)

例えば Rb(ルビジウム) の遷移は波長 $\lambda \sim 600\text{nm}$ 。 $|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0| \sim nm$

$$\Rightarrow \boxed{\lambda \gg |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \quad \text{長波長近似}$$

$$\boxed{\langle e | \mathbf{u} \cdot \hat{\mathbf{p}} | g \rangle}$$

$$\begin{aligned}\mathbf{u} &= \frac{\mathbf{e}}{\sqrt{V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \\ &= \frac{\mathbf{e}}{\sqrt{V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)} \\ &= \frac{\mathbf{e}}{\sqrt{V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} \{1 + i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0) + \dots\}\end{aligned}$$

ここで、 $|\mathbf{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$ (λ : 波長)

$$\begin{aligned}i \frac{2\pi}{\lambda} (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \\ \lambda \gg |\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|\end{aligned}$$

すなわち、電子のひろがりより光の波長の方がずっと長いと考える。これを「長波長近似」と呼ぶ。この場合 $\{1 + i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0) + \dots\}$ の第2項を無視することが出来る。

$$\begin{aligned}\chi &= \frac{-q}{m} e \langle e | e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} \hat{\mathbf{p}} | g \rangle \\ &= \frac{-q}{m} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} e \langle e | \hat{\mathbf{p}} | g \rangle \\ \frac{-q}{m} \hat{\mathbf{p}} &= -q \frac{d}{dt} \hat{\mathbf{x}} = \frac{1}{i\hbar} [-q\hat{\mathbf{x}}, \hat{\mathcal{H}}_m] \text{ なので} \\ \chi &= \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} \frac{q}{i\hbar} e \langle e | \hat{\mathbf{x}} \hat{\mathcal{H}}_m - \hat{\mathcal{H}}_m \hat{\mathbf{x}} | g \rangle \\ &= \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} i q \frac{\omega_0}{2} e \langle e | \hat{\mathbf{x}} | g \rangle \\ &= \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar V}} i \omega_0 e \langle e | e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} e | q \hat{\mathbf{x}} | g \rangle\end{aligned}$$

$$= \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar V}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0} i\omega_0 \mathbf{e} \langle e|\hat{\mathbf{d}}|g\rangle$$

$$\text{or } = \sqrt{\frac{1}{2\omega\epsilon_0\hbar V}} \mathbf{u}(\mathbf{r}_0) \langle e|\hat{\mathbf{d}}|g\rangle$$

これから χ を大きくするには、 $|e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_0}| = 1$ を考えると、 V が小さいか $\langle e|\hat{\mathbf{d}}|g\rangle$ が大きいかがである。

V は電磁波が共振器 (cavity) 注にあるときは、その volume であるので、cavity の大きさか $\lambda/2$ の「微小共振器」で巨大にすることができる。

以上のハミルトニアンをまとめると、

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_F + \hat{\mathcal{H}}_m + \hat{\mathcal{H}}_{I1}$$

$$= \hbar\omega(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{1}{2}) + \hbar\omega_0\hat{S}_z + \hbar\chi(\hat{S}_+\hat{a} + \hat{S}_-\hat{a}^\dagger)$$

このように物質を 2 準位系、電磁場をシングルモードに限った系で、Jaynes-Cammings model と呼ぶ。

このモデルは原子や多くの自由度の物質や多モード多色の光を扱うことはできないが、自然放出などの電磁場を量子化しなければならない現象の解明に役に立つ。

(d)dressed atom picture

Jaynes-Cammings model を用いて、2 準位系と光の相互作用をみる。

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \hbar\omega\hat{a}^\dagger\hat{a} + \hbar\omega_0\hat{S}_z + \frac{\hbar\omega}{2} \times \text{ : 無摂動ハミルトニアン}$$

$$\hat{\mathcal{H}}_I = \hbar\chi(\hat{S}_+\hat{a} + \hat{S}_-\hat{a}^\dagger)$$

$\hat{\mathcal{H}}_0$ の問題は簡単に解けて、

$$\left(\begin{array}{l} \hat{\mathcal{H}}_0|g, n\rangle = (-\frac{\hbar\omega_0}{2} + n\hbar\omega)|g, n\rangle \\ \hat{\mathcal{H}}_0|e, n\rangle = (\frac{\hbar\omega_0}{2} + n\hbar\omega)|e, n\rangle \end{array} \right)$$

$\hat{\mathcal{H}}_I$ の効果

$$\langle e, n|\hat{\mathcal{H}}_I|g, n+1\rangle = \langle g, n+1|\hat{\mathcal{H}}_I|e, n\rangle$$

$$= \hbar\chi\sqrt{n+1}$$

のみで解をもつ非対角要素を与える。

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{H}} &= \sum_{n=0}^{\infty} \hat{\mathcal{H}}_n \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\frac{\hbar\omega_0}{2} + (n+1)\hbar\omega & \hbar\chi\sqrt{n+1} \\ \hbar\chi\sqrt{n+1} & \frac{\hbar\omega_0}{2} + n\hbar\omega \end{pmatrix}\end{aligned}$$

ここで、1は $|g, n+1\rangle$ で2は $|e, n\rangle$ を基底にとる。
2×2行列の固有値は

$$E_{\pm}^n = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega \pm \frac{\hbar}{2}\sqrt{\Delta^2 + 4\chi^2(n+1)}$$

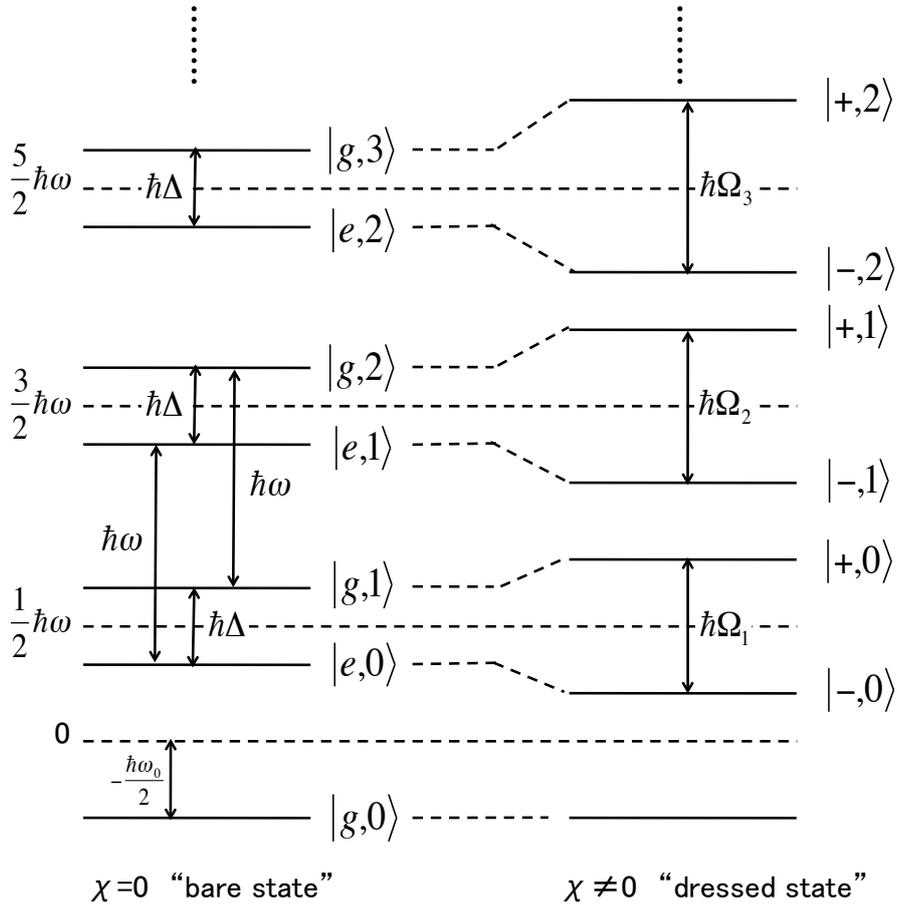
ここで、 $\Delta = \omega - \omega_0$ である。
 $\Omega_n = \sqrt{\Delta^2 + 4\chi^2(n+1)}$ をラビ周波数とよぶ。

固有状態は、

$$\begin{aligned}|+n\rangle &= \cos\theta_n |g, n+1\rangle - \sin\theta_n |e, n\rangle \\ |-n\rangle &= \sin\theta_n |g, n+1\rangle + \cos\theta_n |e, n\rangle \\ \cos\theta_n &= \frac{\Omega_n - \Delta}{\sqrt{(\Omega_n - \Delta)^2 + 4\chi^2(n+1)}} \\ \sin\theta_n &= \frac{2\chi(n+1)}{\sqrt{(\Omega_n - \Delta)^2 + 4\chi^2(n+1)}}\end{aligned}$$

このように、相互作用を含めたエネルギー固有状態で系の問題考える場合を”dressed state picture”とよぶ。相互作用をいれない場合を”bare state”とよぶ。

全系のエネルギーは無限につづく。



• $\Delta = 0$ の場合 ($\omega = \omega_0$ 、完全共鳴)

$$E_{\pm}^n = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega \pm \hbar\sqrt{(n+1)\chi}$$

$$|\pm n\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|g, n+1\rangle \mp |e, n\rangle)$$

これから $\Delta = 0$ の場合でも相互作用によって縮退がとけることがわかる

• $|\frac{\Delta}{\chi}| \gg 1, \Delta > 0$ の場合 (detuning が大きい場合)

$$\begin{cases} E_+^n = E_g^{n+1} - \frac{\hbar\chi^2(n+1)}{\Delta} \\ E_-^n = E_e^n + \frac{\hbar\chi^2(n+1)}{\Delta} \end{cases}$$

$$\begin{aligned}
 | + n \rangle &\sim |g, n + 1\rangle \\
 | - n \rangle &\sim |e, n\rangle
 \end{aligned}$$

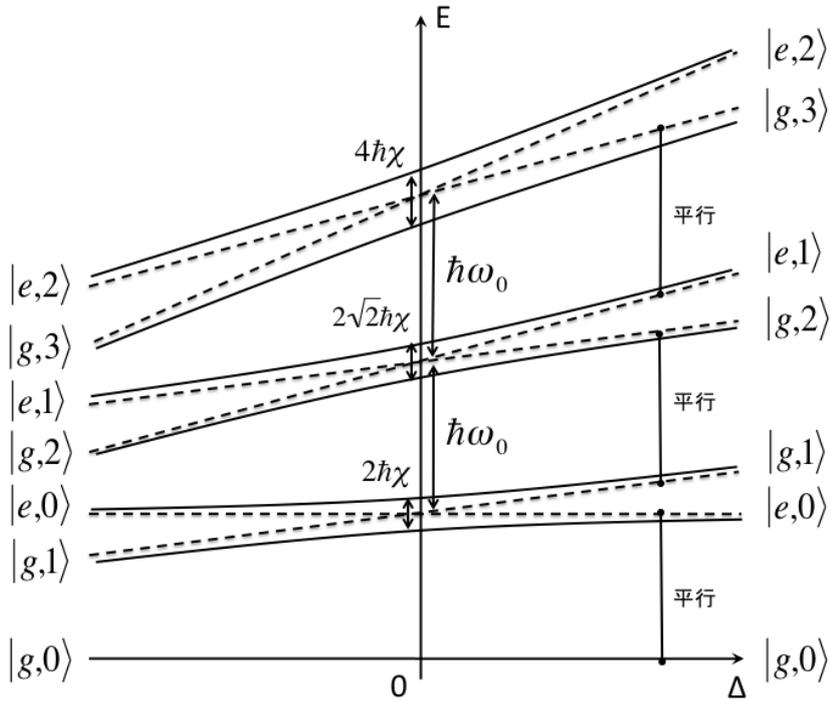
固有状態は $\chi = 0$ のままであり、エネルギーだけか $\pm \frac{\hbar\chi^2(n+1)}{\Delta}$ だけシフトしているように見える。 ライトシフト

$n=0$ の場合でもこのラビ周波数は $\Omega_0 = \sqrt{\Delta^2 + 4\chi^2}$ だけ存在する。
この分裂は真空ラビ分裂とよばれる。

• Rapid Adiabatic Passage

$$|g, n + 1\rangle \rightarrow |e, n\rangle$$

断熱的に detuning Δ を時間的に変化させることで、物質状態を $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ に変化させることができる。



補足 双極子ハミルトニアン Göppert-Mayer gauge

$$\begin{cases} A'(r, t) = A(r, t) + \nabla f \\ \phi(r, t) = \phi(r, t) - \frac{\partial}{\partial t} f \end{cases}$$

ゲージ変換をクーロンゲージ $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ 。 $\mathbf{A}_\perp \neq 0$ (横成分)
これにより、 \mathbf{A} を横成分に制限できる。

$$F(\mathbf{r}, t) = -(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t) \quad \mathbf{r}_0 : \text{原子核の位置}$$

$$\begin{cases} \mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}, t) - \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t) \\ \phi'(\mathbf{r}, t) = \phi_{\text{ク-ロン}}(\mathbf{r}) + (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \cdot \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t)) \end{cases}$$

$$\hat{\mathcal{H}} = \frac{1}{2m} (\hat{\mathbf{p}} - q\mathbf{A}'(\mathbf{r}, t))^2 + q\phi_{\text{ク-ロン}}(\hat{\mathbf{r}}) + q(\hat{\mathbf{r}} - \mathbf{r}_0) \cdot \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t))$$

$$\begin{cases} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}, t) \\ \hat{\mathbf{d}} = q(\hat{\mathbf{r}} - \mathbf{r}_0) : \text{分極オペレーター とすると} \end{cases}$$

$$\hat{\mathcal{H}} = \frac{1}{2m} (\hat{\mathbf{p}} - q\mathbf{A}'(\mathbf{r}, t))^2 + q\phi_{\text{ク-ロン}}(\hat{\mathbf{r}}) - \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}$$

長波長近似 $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_0$

$\mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) \rightarrow 0, \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \rightarrow \mathbf{E}(\mathbf{r}_0, t)$
 $\hat{\mathbf{d}}$ は localize していると考え

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}} &= \hat{\mathcal{H}}_0 - \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_0, t) \\ (\hat{\mathcal{H}}_0 &= \frac{1}{2m} \hat{\mathbf{p}}^2 + q\phi_{\text{ク-ロン}}(\hat{\mathbf{r}})) \end{aligned}$$

自然な形で分極演算子が定義できる。

自由電荷がなく、束縛電荷のみだと、これは原子のハミルトニアン

1.3 半古典近似 (semi-classical treatment)

Janes-Cammings モデル

$$\hat{\mathcal{H}} = \hbar\omega(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{1}{2}) + \hbar\omega_0\hat{S}_z + \hbar\chi(\hat{S}_+\hat{a} + \hat{S}_+\hat{a}^\dagger)$$

この系は cavity QED とよばれる系、共振器中の原子や量子ドット等に適用される。

cavity QED では χ を大きくとれることから、detuning Δ の効果を実験的に観測可能であるとされる。 $\Delta \rightarrow 0, n \rightarrow 0$ の極限での $|g, 1\rangle, |e, 0\rangle$ の分裂エネルギー $\Omega_0 = \hbar\chi$ (真空のラビ分裂) が十分大きいということである。

しかし、cavity がつくれて、強いレーザーで 2 準位系を仮定する場合は多い。

このような場合は、光としてはコヒーレント状態、すなわち古典光として扱う方がよい。光を古典的に扱う近似を半古典近似とよぶ。

すなわち、 $\hat{a} \rightarrow a_0 e^{-i\omega t}$ のように \hat{a} を c 数として扱う。この時、ハミルトニアンは、

$$\hat{\mathcal{H}} = \hbar\omega\hat{S}_z \mathcal{H}_M + \hbar\chi(\hat{S}_+ a_0 e^{-i\omega t} + \hat{S}_- a_0^* e^{+i\omega t}) \mathcal{H}_{MR}$$

となる。いわゆる pure state $|g\rangle$ や $|e\rangle$ と書くことができない。それは原子ごとによって $|g\rangle$ や $|e\rangle$ を縦行列にとるからである。その場合は密度行列を使って、混合状態 (mixed state) として扱うことにする。

$$\left(\begin{array}{l} \hat{\rho}(t) = \sum_n \omega_n |\phi_n(t)\rangle\langle\phi_n(t)| \\ \sum_n \omega_n = 1 \\ \text{物理量は期待値として、} \\ \langle\hat{M}\rangle = Tr(\hat{\rho}\hat{M}) \\ \text{とトレースをとることによって得られる。} \end{array} \right.$$

1.4 密度行列による光と物質の相互作用の取り扱い

波動関数

$$|\psi\rangle = \sum_j c_j(t)|j\rangle \quad \{|j\rangle : \text{完全系}\}$$

(a) pure state 密度行列

$$\begin{aligned} \rho &\equiv |\psi\rangle\langle\psi| \\ &= \sum_{j,k} c_j(t)c_k^*(t)|j\rangle\langle k| \\ &= \sum_{j,k} |j\rangle\rho_{jk}\langle k| \end{aligned}$$

ここで、 $\rho_{jk} = c_j c_k^* (= \langle j|\rho|k\rangle)$

対角成分 $\rho_{jj} = |c_j|^2$ 時刻 t に j 状態にいる確率

非対角成分 $\rho_{jk} = c_j c_k^*$ j to k の遷移確率に関係

ここまでは pure state。一般的には混合状態 (mixed state) なので、

$$\begin{aligned} \rho &= \sum_n \omega_n |\psi_n\rangle\langle\psi_n| \\ &= \sum_{j,k} \omega_n c_j^n c_k^{n*} |j\rangle\langle k| \quad \text{なので} \\ \sum_n \omega_n c_j^n c_k^{n*} &= \rho_{jk} \end{aligned}$$

(b) 運動方程式

Schrödinger 方程式

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi\rangle &= \hat{\mathcal{H}} |\psi\rangle \\ -i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \langle\psi| &= \langle\psi| \hat{\mathcal{H}} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho &= i\hbar \frac{\partial}{\partial t} (|\psi\rangle\langle\psi|) \\ &= \hat{\mathcal{H}} |\psi\rangle\langle\psi| - |\psi\rangle\langle\psi| \hat{\mathcal{H}} \\ &= [\hat{\mathcal{H}}, \rho] \quad \text{Liouville 方程式 (Schrödinger 表示)} \end{aligned}$$

$\hat{\mathcal{L}} = [\hat{\mathcal{H}}, \]$ で定義される Liouvillian を導入すると、

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}} \rho$$

形式解

$$\rho(t) = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}} t} \rho(0)$$

一般的にな演算子 A に対して、

$$e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}} t} A = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}} t} A e^{\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}} t}$$

が成り立つ。

(問題) これを証明せよ。

(c) いくつかの表示

・ 輻射場についての Heisenberg 表示 ρ_R

$$\begin{aligned} \rho &\equiv e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_R t} \rho_R \\ \dot{\rho}_R &= -\frac{i}{\hbar} (\hat{\mathcal{L}}_M + \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t)) \rho_R \end{aligned}$$

ただし、 $\hat{\mathcal{L}}_{MR}(t) = e^{+\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_R t} \hat{\mathcal{L}}_{MR} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_R t}$

・ 相互作用表示 ρ_I

$$\begin{aligned} \rho &\equiv e^{-\frac{i}{\hbar} (\hat{\mathcal{L}}_M - \hat{\mathcal{L}}_R) t} \rho_I \\ \dot{\rho}_I &= -\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t) \rho_I \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{ただし、} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t) &= e^{\frac{i}{\hbar} (\hat{\mathcal{L}}_M - \hat{\mathcal{L}}_R) t} \hat{\mathcal{L}}_{MR} e^{-\frac{i}{\hbar} (\hat{\mathcal{L}}_M - \hat{\mathcal{L}}_R) t} \\ &= e^{\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t} \end{aligned}$$

\mathcal{L}_M と \mathcal{L}_R は可換。

これから、

$$\rho_R = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t} \rho_I$$

(d) 相互作用表示での摂動計算

$$\dot{\rho}_I = -\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t) \rho_I$$

初期値 $\rho_I(-\infty)$ を右辺の ρ_I として用いて、そこからの変化を逐次近似により取り込んでいく。

$$\rho_I^{(1)} = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t_1) \rho_I(-\infty)$$

次に $\rho_I \rightarrow \rho_I(-\infty) + \rho_I^{(1)}(t)$ として代入する。

$$\rho_I^{(2)} = \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t_1) \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t_2) \rho_I(-\infty)$$

これを繰り返す。

$$\rho_I = \rho_I(-\infty) + \rho_I^{(1)}(t) + \rho_I^{(2)}(t) + \dots$$

(e) 摂動を ρ_R によって表す。

ρ_R, ρ_I の定義から、

$$\begin{aligned} \rho_I^{(2)} &= e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t} \rho_I^{(2)} \\ &= \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t} e^{\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t_1} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t_1) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t_1} \\ &\quad \times e^{\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t_2} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t_2) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t_2} \rho_I(-\infty) \end{aligned}$$

ここで下線部は、 $e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{L}}_M t} [e^{-\frac{i}{\hbar} (\hat{\mathcal{L}}_M + \hat{\mathcal{L}}_R) t} \rho(t)]_{t \rightarrow -\infty}$
 $t \rightarrow -\infty$ では熱平行状態かつ $\hat{\mathcal{L}}_{MR} \rightarrow 0$ とすると、 $\hat{\mathcal{L}}_R$ と $\hat{\mathcal{L}}_M$ は可換。
 また、

$$\begin{aligned} \dot{\rho} &= -\frac{i}{\hbar} \mathcal{L} \rho = 0 \text{ より} \\ &[\mathcal{H}, \rho] = 0 \end{aligned}$$

また下線部は、

$$\begin{aligned} [e^{\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{H}} t} \rho(t) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{\mathcal{H}} t}]_{t \rightarrow -\infty} &= \rho(-\infty) \\ (\rho, \mathcal{H} \text{ は可換だから}) \end{aligned}$$

同様に、

$$\begin{aligned} & e^{-\frac{i}{\hbar}\mathcal{L}_M t}\rho(-\infty) \\ = & e^{-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}_M t}\rho(\infty)e^{-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}_M t} = \rho(-\infty) \end{aligned}$$

(\mathcal{H}_M と \mathcal{H}_R も可換)

したがって、

$$\begin{aligned} \rho_I^{(2)} &= \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^2 \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \\ &\times e^{-\frac{i}{\hbar}\mathcal{L}_M(t-t_1)} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t_1) e^{\frac{i}{\hbar}\mathcal{L}_M(t_1-t_2)} \hat{\mathcal{L}}_{MR}(t_2) \rho(-\infty) \end{aligned}$$

• \mathcal{H}_{MR}

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{MR} &= -\frac{q}{m} \mathbf{A} \cdot \hat{\mathbf{p}} + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}^2 \\ or &= -\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}_0, t) \end{aligned}$$

• 光学過程

$$\begin{cases} \rho_R^{(2)} : \text{光の吸収、発光の遷移確率} \\ \rho_R^{(4)} : \text{光散乱、吸収 + 発光} \end{cases}$$

• 分極

$$P^{(n)} = Tr_M \{ d^\dagger \rho^{(n)} \}$$

$$P = P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots$$

$\rho_R^{(2)}$ は 2 次の非線形分極 (SHG, OR) に関わる。

$\rho_R^{(3)}$ は 3 次の非線形分極 (フォトンエコー、カーゲート)

(f) Born-Oppenheimer 近似

$$\rho_R = -i(\mathcal{L}_M + \mathcal{L}_{MR}(t))\rho_R$$

物質系をもう少し考える。 \mathcal{H}_M の詳細。原子、分子は2準位系だけでない。内部自由度が他にもある。ここでは、分子を念頭においてハミルトニアン \mathcal{H}_M を2つに分ける。

$$\boxed{\text{電子 } \mathcal{H}_e} \iff \text{電子-格子相互作用 } \mathcal{H}_{eN} \iff \boxed{\text{核 } \mathcal{H}_N}$$

← 2準位系以外の自由度をこのまとめる。(|g> や |e> の細かいシフトも与える)

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_M &= \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_N + \mathcal{H}_{eN} \\ \mathcal{L}_M &= \mathcal{L}_e + \mathcal{L}_N + \mathcal{L}_{eN} \\ \mathcal{L}_{MR} &= \mathcal{L}_{eR} + \mathcal{L}_{NR} \quad \leftarrow \mathcal{H}_{MR} = \mathcal{H}_{eR} + \mathcal{H}_{NR}\end{aligned}$$

ここで

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{eR} &= - \sum_{\alpha,i} e\hat{x}_{i\alpha} \cdot \hat{E}_i \\ \mathcal{H}_{NR} &= - \sum_{\alpha,i} e\hat{\gamma}_{i\alpha} \cdot \hat{E}_i\end{aligned}$$

核は原子に比べてゆっくりと動く。核の位置を R に固定して、電子の問題を解き、それから核の問題を解く。(BO 近似)

$$|\psi\rangle = |\gamma\rangle|R_\gamma\rangle$$

$$\{\mathcal{H}_e + \mathcal{H}_{eN}(R)\}|\gamma\rangle \sim |\gamma\rangle(\omega_\gamma + W_\gamma(R))$$

残りの核のハミルトニアン

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_N + \underline{W_\gamma(R)} + \omega_\gamma &\equiv \mathcal{H}_\gamma \\ \mathcal{H}_N &= W_N(\text{運動エネルギー}) + U_N(\text{ポテンシャル})\end{aligned}$$

(核のみの関数。ただし電子は γ という状態にいる。)

下線部は断熱ポテンシャル。

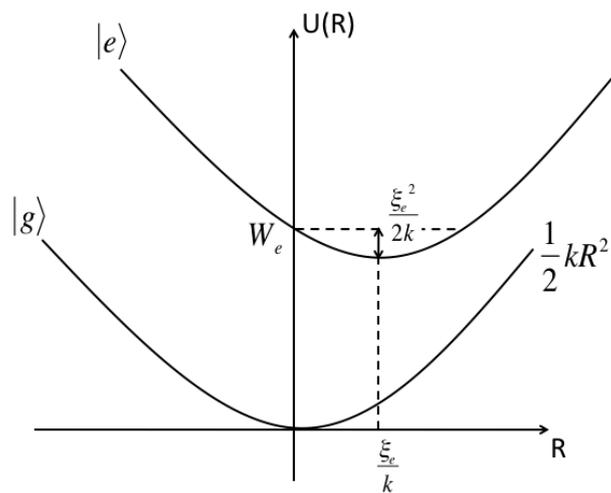
全波動関数

$$\boxed{|\psi\rangle = |\gamma\rangle|R_\gamma\rangle}$$

$$\begin{aligned}U_N &= \frac{1}{2}KR^2 \\ W_\gamma(R) &= \underline{\xi_\gamma R} \quad (\text{線形相互作用}) \\ U_\gamma(R) &= \omega_\gamma + U_N W_\gamma(R) \\ &= \frac{1}{2}K\left(R - \frac{\xi_\gamma}{K}\right)^2 - \frac{\xi_\gamma^2}{2K} + W_\gamma\end{aligned}$$

断熱ポテンシャル

あとは運動エネルギー W_N を考えて、それぞれの電子準位で調和振動子の問題を解く。



1.5 線形光学過程

$$\begin{aligned}
S(\omega_1) &= \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{d}{dt} \text{Tr}_{M,R} \{ |m\rangle \langle m | \rho^{(2)} \} \\
&= \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{d}{dt} \text{Tr}_{M,R} \{ |m\rangle \langle m | e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{L}_R t} \rho_R^{(2)} \} \\
&= \lim_{t \rightarrow \infty} \left(\frac{-i}{\hbar} \right)^2 \frac{d}{dt} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \text{Tr}_{M,R} \{ |m\rangle \langle m | e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{L}_R t - \frac{i}{\hbar} \mathcal{L}_M(t-t_1)} \\
&\quad \times \underline{\mathcal{L}_{MR}(t_1) e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{L}_M(t_1-t_2)} \mathcal{L}_{MR}(t_2) \rho(-\infty)}_A \} \\
&= \lim_{t \rightarrow \infty} \left(\frac{-i}{\hbar} \right)^2 \frac{d}{dt} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \text{Tr}_{M,R} \{ |m\rangle \langle m | e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_R t} e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_M(t-t_1)} \\
&\quad \times A e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_M(t-t_1)} e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_R t} \} \\
&= \lim_{t \rightarrow \infty} \left(\frac{-i}{\hbar} \right)^2 \frac{d}{dt} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \text{Tr}_M \{ |m\rangle \langle m | A \}
\end{aligned}$$

ここで、 $\mathcal{H}_R, \mathcal{H}_M, |m\rangle \langle m|$ は可換。電磁場は古典的に扱うので、 Tr 中の R ははずす。

相互作用ハミルトニアン \mathcal{H}_{MR} も Born-Oppenheimer 近似でかく。

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{MR} &= -\hat{d} \cdot \hat{E} + h.c. \\
&\simeq \hat{d} \cdot a_0 e^{-i\omega_1 t} + h.c. \quad \text{半古典近似} \\
d &\equiv |m\rangle \hat{d}_{mg} \langle g| \quad \text{双極子演算子}
\end{aligned}$$

ここで、 \hat{d}_{mg} は核に相互作用する operator である。

J.C. model では $\hat{S}_+ \equiv |m\rangle \langle g|$ に相当。違いは \hat{d}_{mg}

初期条件

$$\rho(-\infty) = |g\rangle \rho_g \langle g|$$

電子は基底状態。核は熱平衡状態 (mixed state) 後で熱平衡状態での平均をとる。

以上から、半古典近似、BO 近似のもとで、

$$\begin{aligned}
S(\omega_1) &= \lim_{t \rightarrow \infty} \left(\frac{-i}{\hbar} \right)^2 \frac{d}{dt} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \text{Tr}_M \{ |m\rangle \langle m | \\
&\quad \times \underline{\mathcal{L}_{MR}(t_1) e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{L}_M(t_1-t_2)} \mathcal{L}_{MR}(t_2) |g\rangle \langle g|} \}_{A'}
\end{aligned}$$

$$\mathcal{L}_{MR} = [-d, \] E e^{-i\omega_1 t} + \text{h.c.}$$

より、 $4 \times 4 = 16$ の項が trace の中にある。

以下、2通りのやり方で計算する。まずはまともに計算する。

A' の右側の $\mathcal{L}_{MR}(t_2)$ を展開して、

$$A' = |m\rangle\langle m| \mathcal{L}_{MR}(t_1) e^{-i\mathcal{H}_M(t_1-t_2)} \\ \times \{ [-d, |g\rangle\rho_g\langle g|] E e^{-i\omega_1 t_2} + [-d^\dagger, |g\rangle\rho_g\langle g|] E^* e^{i\omega_1 t} \} e^{i\mathcal{H}_M(t_1-t_2)}$$

[,] の中は例えば、

$$[-d, |g\rangle\rho_g\langle g|] = -d|g\rangle\rho_g\langle g| + |g\rangle\rho_g\langle g|d \\ = -|m\rangle\hat{d}_{mg}\langle g|g\rangle_{-1}\rho_g\langle g| + |g\rangle\rho_g\langle g|m\rangle_{=0}\hat{d}_{mg} \\ = -|m\rangle\hat{d}_{mg}\rho_g\langle g|$$

さらに、BO 近似により

$$e^{-\mathcal{H}_M(t_1-t_2)}|m\rangle = |m\rangle e^{-\mathcal{H}_m(t_1-t_2)}$$

ただし $\mathcal{H}_m = \omega_m + \underline{W_m(R)} + \mathcal{H}_N$ (電子励起状態 m における核の operator)。

同様に $\mathcal{H}_g = \mathcal{H}_N$

$$A' = |m\rangle d_{mg} E e^{-i\omega_1 t_1} e^{-i\mathcal{H}_g(t_1-t_2)} \rho_g d_{gm} E^* e^{i\omega_1 t_2} e^{i\mathcal{H}_m(t_1-t_2)} \langle m| - \text{h.c.}$$

また Tr_M のうち、電子部分は自明 ($|m\rangle \langle m|$ だから)。故に Tr_N のみ残る。

以上から、

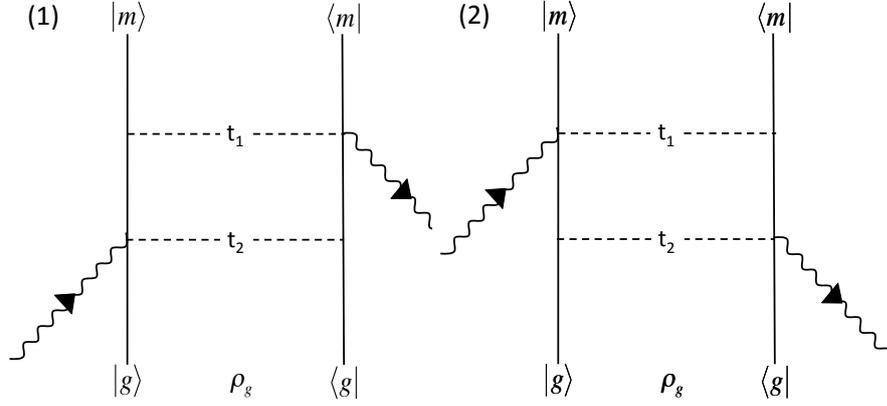
$$S(\omega_1) = \lim_{t \rightarrow \infty} \left(\frac{-i}{\hbar} \right)^2 \frac{d}{dt} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \\ \times Tr_N \{ -(d_{mg} E e^{-i\omega_1 t_1}) e^{-i\mathcal{H}_g(t_1-t_2)} \rho_g (d_{gm} E^* e^{i\omega_1 t_2}) e^{i\mathcal{H}_m(t_1-t_2)} \} - \text{h.c.}$$

同様の式を Feynman diagram を使って導出する。

光との相互作用が 4 回ある $\rho^{(4)}$ を考える。

$|g\rangle\rho_g\langle g|$ からスタートして、電子部分が $|g\rangle\langle g|$ に戻る過程を考える。

光の吸収の場合は $|g\rangle\rho_g\langle g|$ から $|m\rangle\langle m|$ なので、ケットで先に吸収されるか (1)、ブラで先に吸収されるか (2) の 2 パターンしかない。



(1) の場合 Tr_N の中は、

$$\begin{aligned} & \left(\frac{-i}{\hbar}\right)^2 Tr_N \{ -(d_{mg} E e^{-i\omega_1 t_1}) e^{-i\mathcal{H}_m(t_1-t_2)} \rho_g (d_{gm} E^* e^{i\omega_1 t_2}) e^{i\mathcal{H}_g(t_1-t_2)} \} \\ & = Tr_N \left\{ -\left(\frac{-i}{\hbar}\right)^2 e^{-i\mathcal{H}_m(t_1-t_2)} d_{mg} \rho_g e^{i\mathcal{H}_g(t_1-t_2)} d_{gm} |E|^2 e^{i\omega_1(t_1-t_2)} \right\} \end{aligned}$$

(2) の場合 (1)* とすることが示せる。

$$\begin{aligned} S(\omega_1) & = \lim_{t \rightarrow \infty} \left(\frac{-i}{\hbar}\right)^2 \frac{d}{dt} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 ((1) + (2)) \\ & = \lim_{t \rightarrow \infty} \left(\frac{-i}{\hbar}\right)^2 (-1) \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 Tr_N \{ e^{-i\mathcal{H}_m(t_1-t_2)} d_{mg} \rho_g e^{i\mathcal{H}_g(t_1-t_2)} d_{gm} |E|^2 e^{i\omega_1(t_1-t_2)} + c.c. \} \\ t - t_2 & = \tau \text{ とおくと、} \\ & = \lim_{t \rightarrow \infty} \left\{ \underbrace{\int_0^{\infty} d\tau Tr_N \{ e^{-i\mathcal{H}_m \tau} d_{mg} \rho_g e^{i\mathcal{H}_g \tau} d_{gm} |E|^2 e^{i\omega_1 \tau} \}}_{(a)} \right. \\ & \quad \left. + \underbrace{\int_0^{\infty} d\tau Tr_N \{ d_{mg} e^{-i\mathcal{H}_g \tau} \rho_g d_{gm} e^{i\mathcal{H}_m \tau} |E|^2 e^{-i\omega_1 \tau} \}}_{(b)} \right\} \end{aligned}$$

(b) で $\tau = -\tau'$ とおくと、

$$\begin{aligned} (b) & = \int_{-\infty}^0 d\tau' Tr_N \{ d_{mg} e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_g \tau'} \rho_g d_{gm} e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_m \tau'} |E|^2 w^{i\omega_1 \tau'} \} \\ & = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau' Tr_N \{ d_{mg} e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_g \tau} \rho_g d_{gm} e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_m \tau} |E|^2 w^{i\omega_1 \tau} \} \end{aligned}$$

ここで、 $\langle \bigcirc \rangle = Tr_N \{ \bigcirc \rho_g \}$

すなわち、基底状態の核の振動モードで平均をとることに相当する。

故に、

$$S_{ab}(\omega_1) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \langle d_{gm} e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_m \tau} d_{mg} e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_g \tau} |E|^2 e^{-i\omega_1 \tau} \rangle$$

吸収スペクトルの式。

これで分子等において熱分布をした振動子の中での電子系の吸収が記述できた。

コンドン近似

d_{mg} は核の座標に依らないとする。

平均操作の外に出せる

$$\begin{aligned} S_{ab}(\omega_1) &= \int_{-\infty}^{\infty} d\tau |d_{gm}|^2 |E|^2 e^{-i\omega_1 \tau} \langle e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_m \tau} e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_g \tau} \rangle \\ &= |d_{gm}|^2 |E|^2 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i\omega_1 \tau} \langle e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_m \tau} e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_g \tau} \rangle \end{aligned}$$

($\langle \quad \rangle$ はコヒーレンスをみている。)

ここから、量子統計の計算になる。

cumulant 展開を 2 次で止めると、

$$\begin{aligned} S_{ab}(\omega_1) &= |d_{gm} E|^2 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i(\omega_1 - \langle V \rangle) \tau} e^{-g^*(\tau)} \\ g^*(\tau) &= \int_0^{\tau} ds' \int_0^{s'} ds'' \langle \delta V(s') \delta V(s'') \rangle \\ &: \text{time - broadening function (揺らぎの自己相関関数)} \end{aligned}$$

$$\begin{cases} V = \mathcal{H}_m - \mathcal{H}_g \\ V(s') = \langle V(s') \rangle + \delta V(s') \end{cases}$$

1.6 Bloch 方程式

ここでは、また J.C. モデルを 1-3 のように半古典近似で考える。

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{H}} &= \hbar(a^\dagger a + \frac{1}{2}) + \hbar\omega_0 \hat{S}_z + \hbar\chi(\hat{S}_+ \hat{a} + \hat{S}_- \hat{a}^\dagger) \\ &= \hbar\omega_0 \hat{S}_z + \hbar\chi(\hat{S}_+ a_0 e^{-i\omega t} + \hat{S}_- a_0^\dagger e^{i\omega t}) \\ &\quad + (\text{電磁場の古典的なエネルギー}) \quad \underline{\text{半古典近似}} (+\text{回転波近似})\end{aligned}$$

(a) 半古典近似における 2 準位系の密度

行列

$$\begin{aligned}\hat{\rho}(t) &= \begin{pmatrix} \rho_{gg}(t) & \rho_{ge}(t) \\ \rho_{eg}(t) & \rho_{ee}(t) \end{pmatrix} : \text{行列表示} \\ &= \rho_{gg}|g\rangle\langle g| + \rho_{ee}|e\rangle\langle e| + \rho_{ge}|g\rangle\langle e| + \rho_{eg}|e\rangle\langle g|\end{aligned}$$

それぞれ

$$\begin{aligned}\left. \begin{aligned} \rho_{gg} &\equiv \langle g|\hat{\rho}|g\rangle \\ \rho_{ee} &\equiv \langle e|\hat{\rho}|e\rangle \end{aligned} \right\} \text{対角要素: } \textit{population} \text{ (占拠数)} \\ \left. \begin{aligned} \rho_{ge} &\equiv \langle g|\hat{\rho}|e\rangle \\ \rho_{eg} &\equiv \langle e|\hat{\rho}|g\rangle \end{aligned} \right\} \text{非対角要素: } \textit{coherence} \text{ (コヒーレンス)}\end{aligned}$$

純粋状態の場合

$$\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi| \quad |\psi\rangle = C_g|g\rangle + C_e|e\rangle$$

と書ける。

(b) Bloch vector

Bloch vector を次のように定義する。

$$\begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{ge} + \rho_{eg} \\ i(\rho_{eg} - \rho_{ge}) \\ \rho_{ee} - \rho_{gg} \end{pmatrix} \equiv \mathbf{u}$$

逆に解くと、

$$\begin{cases} \rho_{gg} = \frac{1}{2}(1 - w) \\ \rho_{ee} = \frac{1}{2}(1 + w) \\ \rho_{eg} = \frac{1}{2}(u - iv) \\ \rho_{ge} = \rho_{eg}^* = \frac{1}{2}(u + iv) \end{cases}$$

(c) Bloch vector を用いて J.C.model の運動方程式を書き直す。

$$\begin{aligned}\sigma_0 &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \\ \sigma_y &= \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}\end{aligned}$$

より、密度行列は

$$\begin{aligned}\hat{\rho} &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1+w & u-iv \\ u+iv & 1-w \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + \frac{u}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \\ &\quad + \frac{v}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} + \frac{w}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{2} (\hat{\mathbf{I}} + \mathbf{u} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}})\end{aligned}$$

となる。単位ベクトルは恒等演算子。
パウリ演算子の期待値は次のようになる。

$$\langle \hat{\boldsymbol{\sigma}} \rangle = Tr(\hat{\rho} \hat{\boldsymbol{\sigma}}) = Tr\left(\frac{\hat{\boldsymbol{\sigma}} + (\mathbf{u} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}) \hat{\boldsymbol{\sigma}}}{2}\right)$$

パウリ演算子の成分は以下の関係式を満たす。

$$\begin{cases} \hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_k = \delta_{jk} \hat{\mathbf{I}} + i \sum_l \epsilon_{jkl} \hat{\sigma}_l \\ Tr(\hat{\sigma}_i) = 0, \quad Tr(\hat{\mathbf{I}}) = 2 \end{cases}$$

これを用いると、

$$\langle \hat{\boldsymbol{\sigma}} \rangle = \mathbf{u}$$

Liouville 方程式

$$i\hbar \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = [\hat{\mathcal{H}}, \hat{\rho}]$$

ここで

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{H}} &= \frac{\hbar\omega_0}{2} \hat{\sigma}_z + \hbar\chi a_0 (\cos\omega t \cdot \hat{\sigma}_x + \sin\omega t \cdot \hat{\sigma}_y) \\ &= \mathbf{k} \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}\end{aligned}$$

ただし、

$$\mathbf{k} = \begin{pmatrix} \hbar\chi a_0 \cos\omega t \\ \hbar\chi a_0 \sin\omega t \\ \frac{\hbar\omega_0}{2} \end{pmatrix}$$

とハミルトニアンは書ける。

$$\begin{aligned} \hat{S}_z &= \frac{1}{2}\hat{\sigma}_z \\ \hat{S}_+ &= \hat{\sigma}_+ = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_x + i\hat{\sigma}_y) = \frac{1}{2}(\hat{S}_x + i\hat{S}_y) \\ \hat{S}_- &= \hat{\sigma}_- = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_x - i\hat{\sigma}_y) = \frac{1}{2}(\hat{S}_x - i\hat{S}_y) \end{aligned}$$

一方、密度行列は $\hat{\rho} = \frac{1}{2}(\hat{I} + \mathbf{u} \cdot \hat{\sigma})$ だったから、

$$\begin{aligned} [\hat{\mathcal{H}}, \hat{\rho}] &= [\mathbf{k} \cdot \hat{\sigma}, \frac{1 + \mathbf{u} \cdot \hat{\sigma}}{2}] \\ i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho} &= \frac{i\hbar}{2} \dot{\mathbf{u}} \cdot \hat{\sigma} \end{aligned}$$

さらに、 $[\sigma_j, \sigma_k] = 2i \sum_l \epsilon_{jkl} \hat{\sigma}_l$ を使うと、

$$\begin{aligned} [\mathbf{k} \cdot \hat{\sigma}, \frac{\mathbf{u} \cdot \hat{\sigma}}{2}] &= \frac{1}{2} \{k_i \hat{\sigma}_i u_j \hat{\sigma}_j - u_j \hat{\sigma}_j k_i \hat{\sigma}_i\} \\ &= \frac{2i}{2} \{\epsilon_{jkl} k_i u_j \sigma_k\} \\ &= i(\mathbf{k} \times \mathbf{u}) \cdot \hat{\sigma} \end{aligned}$$

故に、

$$\begin{aligned} \frac{i\hbar}{2} \dot{\mathbf{u}} \cdot \hat{\sigma} &= i(\mathbf{k} \times \mathbf{u}) \cdot \hat{\sigma} \\ \dot{\mathbf{u}} &= \boldsymbol{\beta} \times \mathbf{u} \quad \text{ただし、} \boldsymbol{\beta} = \frac{2\mathbf{k}}{\hbar} \end{aligned}$$

\mathbf{u} は古典的なベクトルなので、これは $\boldsymbol{\beta}$ の周りを回転するコマと同じ運動 (= 歳差運動) となる。(なぜかという $\boldsymbol{\beta}$ は時間依存性がある)

Field Averaging

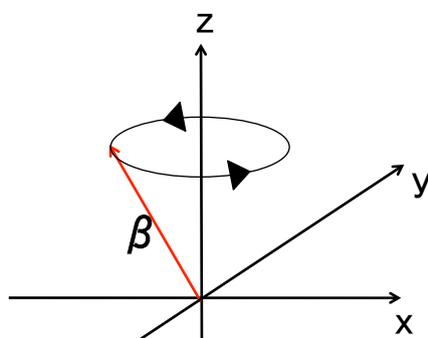
$$\begin{cases} \frac{du}{dt} = 2\chi a_0 \sin\omega t \cdot w - \omega_0 v \\ \frac{dv}{dt} = -2\chi a_0 \cos\omega t \cdot w + \omega_0 u \\ \frac{dw}{dt} = 2\chi a_0 \cos\omega t \cdot v - 2\chi a_0 \sin\omega t \cdot u \end{cases}$$

見通しが悪い。

Bloch vector (密度行列)

$$\beta = \frac{2}{\hbar} \begin{pmatrix} \hbar\chi a_0 \cos\omega t \\ \hbar\chi a_0 \sin\omega t \\ \frac{\hbar\omega_0}{2} \end{pmatrix}$$

回転軸が回転する。



補足

もし、 $a_0 = 0$ であれば (光なし)

$$\beta = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \omega_0 \end{pmatrix}$$

$$\dot{u} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \omega_0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} u_x \\ u_y \\ u_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -u_y\omega_0 \\ u_x\omega_0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} \dot{u}_x = -u_y\omega_0 \\ \dot{u}_y = u_x\omega_0 \end{pmatrix} \rightarrow \frac{d}{dt}(u_x^2 + u_y^2) = 0$$

$$\ddot{u}_x = -\dot{u}_y\omega_0 = -\omega^2 u_x$$

ゆえに、

$$\begin{pmatrix} u_x = -u_0 \sin\omega_0 t \\ u_y = u_0 \cos\omega_0 t \\ u_z = u_z^0 \end{pmatrix} \rightarrow \begin{pmatrix} \text{一つの解} \\ t = 0, u = u_0 \\ \text{の場合} \end{pmatrix}$$

u_z は変化しない。 u_x, u_y は円運動する。
角振動数は 2 準位系のエネルギー差の各振動数 ω_0 である。

u_x, u_y は ρ の非対角要素であったので、コヒーレンスである。

$$\begin{aligned}\rho_{eg} + \rho_{ge} &= u_0 \sin \omega_0 t \\ i(\rho_{eg} - \rho_{ge}) &= u_0 \cos \omega_0 t\end{aligned}$$

i をかけて足す。

$$\begin{aligned}2\rho_{ge} &= u_0 e^{i\omega_0 t + \frac{\pi}{2}i} \\ \left(\begin{aligned} \rho_{ge} &= \frac{u_0}{2} e^{i\omega_0 t + \frac{\pi}{2}i} \\ \rho_{eg} &= u_0 e^{-i\omega_0 t - \frac{\pi}{2}i} \end{aligned} \right.\end{aligned}$$

コヒーレンスの時間依存性を表している。

$$\rho_{eg} = \langle e | \hat{\rho} | g \rangle \sim e^{i\omega_0 t}$$

ここで、光の回転座標系で考えてみる。

$$\theta = \begin{pmatrix} \cos \omega_0 t & \sin \omega_0 t & 0 \\ -\sin \omega_0 t & \cos \omega_0 t & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

$$\mathbf{u}' = \theta \mathbf{u} = \begin{pmatrix} u \cos \omega t + v \sin \omega t \\ -u \sin \omega t + v \cos \omega t \\ w \end{pmatrix} \quad (1.2)$$

(1.1)、(1.2) より、さらに、

$$\begin{aligned}\dot{\mathbf{u}}' &= \dot{\theta} \mathbf{u} + \theta \dot{\mathbf{u}} = \dot{\theta} \theta^{-1} \theta \mathbf{u} + \theta M \theta^{-1} \theta \mathbf{u} \\ &= (\dot{\theta} \theta^{-1} + \theta M \theta^{-1}) \mathbf{u}'\end{aligned} \quad (1.3)$$

ここで、

$$M = \begin{pmatrix} 0 & -\beta_z & \beta_y \\ \beta_z & 0 & -\beta_x \\ -\beta_y & \beta_x & 0 \end{pmatrix} \quad (1.4)$$

(1.1)、(1.4) より、

$$\theta M \theta^{-1} = \begin{pmatrix} 0 & -\beta_z & 0 \\ \beta_z & 0 & -2\chi a_0 \\ 0 & 2\chi a_0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.5)$$

$$\dot{\theta} = \begin{pmatrix} -\omega_0 \sin \omega t & \omega_0 \cos \omega t & 0 \\ -\omega_0 \cos \omega t & -\omega_0 \sin \omega t & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

ゆえに、

$$\dot{\theta} \theta^{-1} = \begin{pmatrix} 0 & \omega & 0 \\ -\omega & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

(1.5)、(1.6) より、

$$M' = \begin{pmatrix} 0 & -\beta_z + \omega & 0 \\ \beta_z - \omega & 0 & -2\chi a_0 \\ 0 & 2\chi a_0 & 0 \end{pmatrix}$$

したがって、回転座標系では、

$$\dot{\mathbf{u}}' = \boldsymbol{\beta}' \times \mathbf{u} \quad \boldsymbol{\beta} = \begin{pmatrix} 2\chi a_0 \\ 0 \\ \omega_0 - \omega \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \kappa \\ 0 \\ \Delta \end{pmatrix}$$

(光の振動数と振幅を決めると、固定された回転軸!)

ここで Rabi 周波数の定義を思い出すと、

$$\Omega_n = \sqrt{\Delta^2 + 4\chi^2(n+1)}$$

$\sqrt{n+1} \sim a_0$ (電場振幅: 古典近似) とすると β の大きさは (非共鳴な場合の) Rabi 周波数であることがわかる。

特に共鳴 ($\omega = \omega_0$) の場合には、 $\Delta = 0$ となり、 \mathbf{u}' は x 軸まわりに反時計回りまわりに回転することになる。

例えば、初期条件の $\rho_{ee} = 0, \rho_{gg} = 1$ とすると、 $W' = W = -1$ となり、図のように大きさ 1 で x 軸のまわりに反時計、あわりに円運動することになる。

この動きを nutation と呼ぶ (章動)

(d) 緩和過程

光を切って十分時間が経つと、

$$\begin{aligned} \text{population : } & \rho_{ee} - \rho_{gg} = W' \rightarrow -1 \\ \text{コヒーレンス : } & \rho_{eg}^* - \rho_{ge}^* \rightarrow 0 \\ & u' \rightarrow 0, v' \rightarrow 0 \end{aligned}$$

これまでの取り扱いでは、光を古典的であったので、自然放出のような緩和過程が入らない。

物質系を 2 準位系 + 核 + 電子のように相互作用を考える。

ここでは、緩和過程を手で入れることにする。

$$\dot{\mathbf{u}}' = \boldsymbol{\beta}' \times \mathbf{u}' + \begin{pmatrix} -u'/T_2' \\ -v'/T_2' \\ -(1+w)/T_1 \end{pmatrix}$$

population, coherence、それぞれの緩和時間を T_1, T_2 としている。
具体的には、

$$\begin{cases} \frac{du'}{dt} = -\Delta v' - \frac{u'}{T_2'} \\ \frac{dv'}{dt} = -\kappa w - \frac{v'}{T_2'} \\ \frac{dw}{dt} = -\kappa v' - \frac{1+w}{T_1} \end{cases}$$

緩和時間が早い極限では (レート方程式極限)

$$\begin{aligned} \frac{du'}{dt} &= \frac{dv'}{dt} = 0 \\ v' &= -\frac{u'}{\Delta T_2'} \\ w &= \frac{1}{v} \left(\Delta u' + \frac{u'}{\Delta T_2'^2} \right) \\ &= \frac{1}{v} \left(\Delta + \frac{1}{\Delta T_2'^2} \right) (-\Delta T_2') \\ &= -\frac{1}{\kappa T_2'} (\Delta^2 T_2'^2 + 1) v' \end{aligned}$$

$$\boxed{\frac{dw}{dt} = -2Rw - \frac{1+w}{T_1}}$$

$$\begin{cases} R = \frac{1}{2T_1} \frac{I}{1+(\Delta T_2')^2} \\ I = \kappa^2 T_1 T_2' \end{cases}$$

自由誘導減衰

コヒーレンスを誘起した後、光を切ってその後何が起きるかをみる。

$\kappa = 0$ の場合、

$$\begin{cases} \frac{du'}{dt} + \frac{u'}{T_2} = -\Delta v' \\ \frac{dv'}{dt} + \frac{v'}{T_2} = -\kappa w \\ \frac{dw}{dt} + \frac{1+w}{T_1} = 0 \end{cases}$$
$$\rightarrow w = w_0 e^{-\frac{t}{T_1}} - 1$$

上の第一式、第二式より、

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{1}{2} (u'^2 + v'^2) \right) + \frac{1}{T_2} (u'^2 + v'^2)$$

$$u'^2 + v'^2 = (u_0'^2 + v_0'^2) e^{-\frac{2}{T_2} t}$$

$\Delta = o(\omega = \omega_0)$ の場合は、Bloch ベクトルは xy 面でベクトルが縮みつつ、 z 方向下向きに倒れていく。

$\Delta \neq 0$ の場合は、 xy 面で回転してから落ち着く。

$\Delta = 0$ の場合

$$\begin{cases} u' = 0 \\ v' = e^{-\frac{t}{T_2}} \\ w = e^{-\frac{t}{T_1}} - 1 \end{cases}$$

回転座標系から戻すと、

$$\begin{aligned} u \cos \omega_0 t + v \sin \omega_0 t &= 0 \\ u \sin \omega_0 t + v \cos \omega_0 t &= e^{-\frac{t}{T_2}} \end{aligned}$$

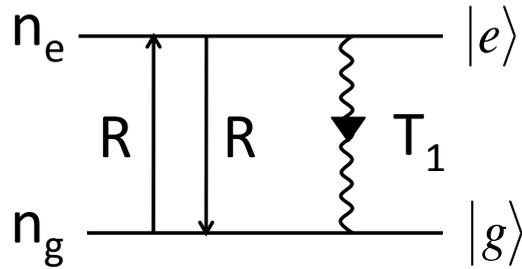
$$\left\{ \begin{aligned} v &= e^{-\frac{t}{T_2}} \cos \omega_0 t u = -e^{-\frac{t}{T_2}} \sin \omega_0 t \end{aligned} \right.$$

$$\rho_{ge} = u + iv = e^{-\frac{t}{T_2}} (-\sin \omega_0 t + i \cos \omega_0 t)$$

$$\rho_{eg} = u - iv = e^{-\frac{t}{T_2}} e^{-i\omega_0 t - \frac{\pi}{2} i}$$

自由誘導減衰は $(-\frac{\pi}{2})$ 位相が入射波よりずれている。

これは、 $\langle \rho_{ee} \rangle = n_e, \langle \rho_{gg} \rangle = n_g$ とし、次のようなレート方程式を考えるとよく理解できる。



$$\begin{cases} n_e = -Rn_e + Rn_g - \frac{n_e}{T_1} \\ n_g = -Rn_g + Rn_e + \frac{n_e}{T_1} \end{cases}$$

上式の(第一式)-(第二式)より、

$$\begin{cases} (n_e - n_g) = -2R(n_e - n_g) \frac{2n_e}{T_1} \\ (n_e + n_g) = 0 \end{cases}$$

$$\left. \begin{array}{l} n_e + n_g = 1 \\ n_e - n_g = w \end{array} \right\} \rightarrow n_e = \frac{1+w}{2}$$

上式と同じ結果になる。

$$\frac{dw}{dt} = -2Rw - \frac{1+w}{T_1}$$

ここで、 $R = \frac{1}{2T_1} \frac{I}{1+(\Delta T_2')^2}, I = \kappa^2 T_1 T_2', \kappa = 2\chi a_0$ 。

定常状態を考えると、(来典型なので、これでも $e^{-i\omega t}$ で回っている。)

$$\begin{aligned} w &= -\frac{(\Delta T_2')^2 + 1}{(\Delta T_2')^2 + 1 + I} \\ &= -\frac{\Delta^2 + (\frac{1}{T_2'})^2}{\Delta^2 + (\frac{1}{T_2'})^2 + \frac{T_1}{T_2'}(2\chi a_0)} \end{aligned}$$

一方、

$$v' = -\frac{T_2' \kappa}{(\Delta T_2')^2 + 1} w = \frac{T_2' \kappa}{(\Delta T_2')^2 + 1 + I}$$

$$P = N \text{Tr}(\rho \mu) = N(\rho_{eg} d_{ge})$$

故に、

$$\rho_{eg} = \frac{[\omega_0 - \omega + i(\frac{1}{T_2})] \kappa}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\frac{1}{T_2})^2 + \frac{T_1}{T_2} (2\chi a_0)^2}$$

$$\chi = \frac{\mu}{\hbar}$$

$$P = \epsilon_0 \chi E_0 e^{i\omega t}$$

と見比べると、

$$\begin{aligned} \chi &= \chi_1 + i\chi_2 \\ \chi_1(\omega) &= \frac{N(\omega_0 - \omega) \frac{\hbar}{\epsilon_0} \chi^2}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\frac{1}{T_2})^2 + 4 \text{frac} T_1 T_2' (\chi E_0)} \\ \chi_2(\omega) &= \frac{N(\frac{1}{T_2}) \frac{\hbar}{\epsilon_0} \chi^2 E_0}{(\omega_0 - \omega)^2 + (\frac{1}{T_2})^2 + 4 \text{frac} T_1 T_2' (\chi E_0)} \end{aligned}$$

(e) パルス照射 共鳴 $\omega = \omega_0$ を考える。

x 軸まわりの角度 $\theta = \kappa t = 2\chi a_0 t$

このとき $t \ll T_1, T_2'$ とする。

• $\theta = \frac{\pi}{2} \Rightarrow \frac{\pi}{2}$ パルス

$$u_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix} \rightarrow u' = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$$

基底状態 (コヒーレンスなし) \rightarrow コヒーレント状態

• $\theta = \pi \Rightarrow \pi$ パルス

$$u_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix} \rightarrow u' = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$$

100 % 励起状態をつくれる。

(f) 不均一幅

ω_0 が ω を中心に分布がある場合を考える。 Δ は 0 を中心に幅を持つ。

$$f(\Delta) = \frac{1}{\Delta_0} e^{-\left(\frac{\Delta}{\Delta_0}\right)^2}$$

のように分布している。これを不均一幅と呼ぶ。

$\Delta_0 \gg \frac{1}{T_1}, \frac{1}{T_2}$ の場合は、緩和より早く不均一幅の影響が現れる。
光がない場合の

$$u_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$$

の時間発展 ($\frac{\pi}{2}$ パルス光照射のあとの) を考える。

$$u' = \sum_{\Delta} f(\Delta) u'_{\Delta}$$

Δ の符号に、回転する向きが異なる。 Δ の和によって平均値はどんどん 0 になっていく。(あたかも、緩和のように Bloch ベクトルの大きさは 0 に近づく)

(g) フォトンエコー

