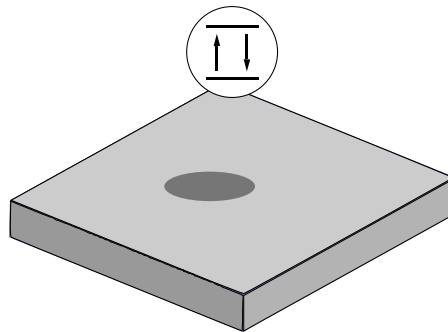

Eine Studie der Zerfallsrate eines Atoms neben planarer Strukturen

Fluktuationsinduzierte Phänomene



Bachelorarbeit
zur Erlangung des akademische Grades
Bachelor of Science (B. Sc.)
von Yassin Ouali

Betreuer: Dr. Francesco Intravaia
Erstgutachter: Prof. Dr. Kurt Busch
Zweitgutachter: Prof. Dr. Oliver Benson

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	v
1 Theoretischer Hintergrund	1
1.1 Notation	1
1.2 Maxwell-Gleichungen in Materie	1
1.3 Das Drude- und das Lorentz-Modell	6
1.4 Reflektionskoeffizienten	8
1.5 Die Methode der Greenschen Funktion	12
1.6 Greensche Funktion des Vakuums	13
1.7 Greensche Funktion einer planaren Symmetrie	16
2 Einführung in spontane Emissionsraten	19
2.1 Allgemeines	19
2.2 Dipolapproximation des Atoms	22
2.3 Quanten-Fluktuations-Dissipations-Theorem	25
2.4 Das Zwei-Zustand-System	26
2.4.1 Dipol-Operator eines Zwei-Zustand-Systems	27
2.4.2 Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems	31
2.5 Berechnung der Zerfallsrate im Vakuum	33
2.6 Berechnung der Zerfallsrate vor einem Halbraum	34
2.7 Berechnung der Zerfallsrate vor einer Platte	38
3 Spontane Emission vor planaren Strukturen	39
3.1 Untersuchung der Zerfallsrate vor einem Halbraum	40
3.1.1 Zerfallsrate vor einem Halbraum im Drude-Modell	40
3.1.2 Oberflächen-Plasmonen-Polaritonen	43
3.1.3 Zerfallsrate vor einem Halbraum im Lorentz-Modell	45
3.2 Untersuchung der Zerfallsrate vor einer Platte	48
3.2.1 Zerfallsrate vor einer Platte im Drude-Modell	48
3.2.2 Zerfallsrate vor einer Platte im Lorentz-Modell	52
4 Richtungsabhängigkeit der spontanen Emmission	55
5 Fazit und Ausblick	63
A Anhang	65
A.1 Fermis Goldene Regel	65
A.1.1 Lemma: Identität zwischen Distributionen	65

A.2 Pole des Reflektionskoeffizienten der Platte für p-Polarisiertes Licht in Nahfeld- näherung	66
A.3 Berechnung der Koordinaten zur Basis von antisymmetrischen Matrizen	67
A.4 Nahfeldnäherung im Lorentz-Modell	70
Danksagung	71

Einleitung

Fluktuationen sind elementare Prozesse, die sowohl in der klassischen als auch in der Quantenphysik stattfinden. In der phänomenologischen Thermodynamik werden sie das erste Mal im Physikstudium diskutiert, indem explizit auf ihre Anwesenheit hingewiesen wird. Gleichzeitig sind sie für weitere Untersuchungen zunächst nicht relevant, makroskopische Größen wie Teilchenzahl und Energie werden als feste Zahlen eines Systems behandelt.

In der statistischen Physik sind diese Größen aber nicht nur Zahlen, sondern Verteilungsfunktionen. Hier spielen die ersten zwei Momente eine wichtige Rolle, der Mittelwert und die Varianz. Wird in ein makroskopisches System zurückgekehrt, wird der thermodynamische Limes gezogen, indem man den Mittelwert der Verteilung als exakten Wert der Größe sieht, und die Varianz verschwinden lässt. Dies bedeutet, dass es keine Fluktuationen um den Mittelwert gibt. Sobald versucht wird z. B. ein Nano-Device zu produzieren, genügt es nicht, makroskopische Modelle zum Designen eines solchen zu benutzen. In der Nano-Skala sind fluktuationsinduzierte Phänomene dominant, sodass makroskopische Beschreibungen nicht zum Verständnis beitragen und auf eine grundlegendere Physik zurückgegriffen werden muss.

In der vorliegenden Arbeit wird ein solches fluktuationsinduziertes Phänomen näher untersucht. Dafür wird ein angeregtes Atom nahe einem makroskopischen Körpers platziert. Das Atom wird als Zwei-Zustand-System genähert. Der makroskopische Körper hat eine planare Symmetrie, in dieser Arbeit ein Halbraum oder eine Platte, und wird durch ein klassisches Materialmodell (Drude-/Lorentz-Modell) beschrieben. Beobachtet werden dann Übergänge vom angeregten Zustand in den Grundzustand. Dies liegt an Quanten-Fluktuationen des elektromagnetischen Feldes. Diese hängen stark von der Geometrie von makroskopischen Materialien ab, sodass dadurch auch die Zerfallsrate vom angeregten Zustand in den Grundzustand manipuliert werden kann. Ähnlich wie beim Purcell-Effekt wird so versucht, Einfluss auf die Zerfallsrate zu nehmen. Es stellt sich heraus, dass bei der Platzierung vor einer Platte durch die Variation von deren Dicke das Zerfallen in den Grundzustand signifikant manipuliert werden kann. Weiter wird auch eine Richtungsabhängigkeit des abgestrahlten Lichtes begutachtet, es wird nicht in den ganzen Raum gleich viel Licht emittiert. Auch dieser Effekt kann durch die Manipulation der Dicke einer Platte stark beeinflusst werden.

Im ersten Kapitel der Arbeit wird eine kurze Einführung in die Maxwell-Gleichungen der Materie gegeben, die dann die Grundlage sind für Konstruktion von Materialmodellen, wie das Drude- oder das Lorentz-Modell. Bei einer solchen Beschreibung von Materialien entsteht die Frage, wie mit Grenzschichten umgegangen wird. Dies leitet die Diskussion von den Reflexionskoeffizienten eines Halbraums und einer Platte ein. Im Anschluss wird eine grundlegende Methode zur Lösung der anfangs diskutierten Differentialgleichungen, die Methode der Greenschen-Funktion, aufgezeigt. Somit werden die klassischen Grundlagen der Thematik erarbeitet.

Im zweiten Kapitel wird eine Einführung in die spontane Emmission gegeben, die quantenmechanischer Natur ist. Hierfür wird dann ein in der Optik häufig verwendeter Interaktions-Hamiltonian erläutert und verwendet. Dadurch werden Zwei-Punkt-Korrelationsfunktionen bezüglich des Feldes und des Atoms benötigt. Die Korrelationsfunktion des Feldes wird mit Hilfe des Quanten-Fluktuations-Dissipations-Theorems errechnet. Die des Atoms wird durch die eines Zwei-Niveau-Systems genähert. Damit können Zerfallsraten errechnet werden. Begonnen wird mit der des Vakuums, dann folgt die eines Halbraums und zu guter Letzt die einer Platte. Im dritten Kapitel werden die numerischen Berechnungen dargestellt und in Abhängigkeit von unterschiedlichsten Parametern diskutiert.

Im vierten Kapitel wird die Richtungsabhängigkeit der Strahlung mit einbezogen, sodass eine richtungsabhängige Zerfallsrate untersucht werden kann. Diese wird auch in Abhängigkeit von verschiedenen Parametern numerisch berechnet und diskutiert.

KAPITEL 1

Theoretischer Hintergrund

1.1 Notation

Die Notation in dieser Arbeit ist wie folgt:

x	Skalar
\mathbf{x}, \mathbf{X}	Vektor
$\underline{x}, \underline{X}$	Matrix
$\mathbb{1}$	Einheitsoperator/-matrix
\hat{x}, \hat{X}	Operator
$\text{tr} [\hat{x}]$	Spur über Operator
$\text{Tr} [\underline{x}]$	Spur über Matrix
\mathbf{x}^*	Konjugation
\underline{x}^T	Transposition einer Matrix
$\mathbf{x} \cdot \mathbf{x}$	Skalarprodukt
$\mathbf{x}\mathbf{x}$	Dyadisches Produkt
$\underline{X}\mathbf{x}$	Matrixmultiplikation
$\underline{x} * \mathbf{x}$	Faltung zweier Funktionen
$f(\mathbf{k}) = \int_{-\infty}^{\infty} d^N \mathbf{x} f(\mathbf{x}) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{x}}$	Fouriertransformierte
$f(\mathbf{x}) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d^N \mathbf{k} f(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{k}\mathbf{x}}$	Inverse Fouriertransformierte

Tabelle 1.1: Notation

Sobald die Argumente der Funktionen weggelassen werden ist dem Kontext zu entnehmen, ob sich die Funktion im Ortsraum oder im Wellenvektorraum befinden.

1.2 Maxwell-Gleichungen in Materie

Startpunkt der Analyse sind die Maxwell-Gleichungen im Vakuum. In SI-Einheiten haben sie die Form

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} , \quad (1.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 , \quad (1.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial_t \mathbf{B} , \quad (1.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \mu_0 \epsilon_0 \partial_t \mathbf{E} . \quad (1.4)$$

Hierbei bezeichnet \mathbf{E} das elektrische Feld (E-Feld), \mathbf{B} das magnetische Feld (B-Feld), ρ die elektrische Ladungsdichte, \mathbf{j} den elektrischen Strom und zu guter Letzt sind ϵ_0, μ_0 die elektrische/magnetische Feldkonstante. Die Größen $\mathbf{E}, \mathbf{B}, \mathbf{j}, \rho$ sind Funktionen von Ort und Zeit, (\mathbf{x}, t) .

Zur Bestimmung der Lösung der Maxwell-Gleichungen kann es häufig sinnvoll sein, nicht direkt mit den Feldern zu arbeiten. Stattdessen erfolgt der Rückgriff auf das Helmholtz-Theorem, aus dem folgt, dass ein Vektorfeld, dessen Rotation verschwindet, als ein Gradientenfeld eines skalaren Potentials ϕ geschrieben werden kann und jedes divergenzfreie Feld als Rotation eines Vektorpotentials \mathbf{A} . Hierbei wird $\nabla\phi$ als Longitudinalfeld bezeichnet, da $\nabla \times (\nabla\phi) = 0$ und $\nabla \times \mathbf{A}$ als Transversalfeld, da $\nabla \cdot (\nabla \times \mathbf{A}) = 0$. Bei Verwendung von (1.2) folgt, dass

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} .$$

Aus Gleichung (1.3) folgt

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\partial_t \mathbf{B} = -\nabla \times \partial_t \mathbf{A} \\ \nabla \times (\mathbf{E} + \partial_t \mathbf{A}) &= 0 . \end{aligned}$$

Damit existiert ein Skalarfeld, dessen Gradient das Vektorfeld beschreibt, also:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} + \partial_t \mathbf{A} &= -\nabla\phi \\ \Leftrightarrow \mathbf{E} &= -\nabla\phi - \partial_t \mathbf{A} . \end{aligned}$$

Das Vorzeichen vor dem Gradientenfeld ist eine Konvention. Durch Beschreibung der Felder mittels ihrer Potentiale ist das B-Feld automatisch ohne Divergenz; (1.2) ist also erfüllt. Gleichung (1.3) wird ebenfalls automatisch erfüllt.

Die eben diskutierten Maxwell-Gleichungen heißen auch mikroskopische Maxwell-Gleichungen, da sie meist nur im Vakuum, also in Abwesenheit von makroskopischen Materialien, verwendet werden. Kommen makroskopische Materialien ins Spiel ist es sinnvoll, die Felder in weitere Felder aufzuteilen. Beschränkt wird sich zunächst auf das E-Feld in nicht-leitenden Medien (Dielektrika). Strömt ein E-Feld durch ein:

1. polares Dielektrikum (z. B. Wasser), so richten sich permanente Dipole aus und bilden ein starkes Gegenfeld.
2. nicht-polares Dielektrikum, so entstehen induzierte molekulare Dipole, die sich ebenfalls im E-Feld ausrichten. Dieser Effekt ist um Größenordnungen kleiner als Erstgenannter.

Unter Berücksichtigung der vorangegangenen Überlegung folgt der Ansatz, dass das Material eine Polarisationsladungsdichte \mathbf{P} erzeugt, die ein Potential der Form

$$\begin{aligned} \phi_{\text{Dipol}}(\mathbf{x}) &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_V d^3\mathbf{s} \mathbf{P}(\mathbf{s}) \nabla_{\mathbf{s}} \frac{1}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|} \\ &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[\int_V d^3\mathbf{s} \nabla_{\mathbf{s}} \cdot \frac{\mathbf{P}(\mathbf{s})}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|} - \int_V d^3\mathbf{s} \frac{1}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|} \nabla_{\mathbf{s}} \cdot \mathbf{P}(\mathbf{s}) \right] \end{aligned}$$

besitzt. V ist das Volumen des Materials, welches hier beschränkt ist. Das erste Integral kann auf ein Integral des ganzen Raumes erhoben werden indem $\tilde{\mathbf{P}} = \theta(V)\mathbf{P}$ und nach dem Satz von Gauss als Oberflächenintegral formuliert werden. Da mit endlichen Größen, die im Unendlichen schnell genug abfallen, gearbeitet wird, verschwindet das Oberflächenintegral. Demzufolge ergibt sich

$$\int_V d^3\mathbf{s} \nabla_{\mathbf{s}} \cdot \frac{\mathbf{P}(\mathbf{s})}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|} = \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{s} \nabla_{\mathbf{s}} \cdot \frac{\tilde{\mathbf{P}}(\mathbf{s})}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|} = \int_{\partial\mathbb{R}^3} d\mathbf{f} \cdot \frac{\tilde{\mathbf{P}}(\mathbf{s})}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|} = 0.$$

Die Tilde wird im Folgenden fallengelassen. Damit vereinfacht sich ϕ_{Dipol} und es ergibt sich ein Funktionenvergleich mit dem Potential, ausgedrückt durch die Polarisationsladungsdichte ρ_{Pol} :

$$\phi_{\text{Dipol}}(\mathbf{x}) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{s} \frac{1}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|} \nabla_{\mathbf{s}} \cdot \mathbf{P}(\mathbf{s}) \stackrel{!}{=} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{s} \frac{\rho_{\text{pol}}}{|\mathbf{s} - \mathbf{x}|}.$$

Dieses zuletzt formulierte Integral ist das Potential, dass erzeugt wird durch die Ladungsverteilung, die wiederum im Material aufgrund des externen E-Feldes entsteht. Daraus ergibt sich nun

$$\rho_{\text{pol}} = -\nabla \cdot \mathbf{P}.$$

Jetzt kann Gleichung (1.1) modifiziert werden, sodass

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{\rho}{\epsilon_0} = \frac{\rho_{\text{frei}} + \rho_{\text{pol}}}{\epsilon_0} = \frac{\rho_{\text{frei}} - \nabla \cdot \mathbf{P}}{\epsilon_0} \\ \Leftrightarrow \quad \nabla \cdot [\epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}] &= \rho_{\text{frei}} \\ \Leftrightarrow \quad \nabla \cdot \mathbf{D} &= \rho_{\text{frei}}. \end{aligned}$$

Das so eingeführte Feld

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \tag{1.5}$$

wird auch dielektrische Verschiebung genannt. Damit kann das Material getrennt von der freien Ladungsdichte (mittels der Polarisationsladungsdichte) behandelt werden¹.

Wie oben diskutiert wird eine Polarisationsladungsdichte durch das externe E-Feld erzeugt. Konkret kann jetzt die Polarisationsladungsdichte durch das E-Feld in der Umgebung und zu allen vorherigen Zeiten beeinflusst werden. Es folgt,

$$\mathbf{P}(\mathbf{x}, t) = \epsilon_0 \int_0^t dt' \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{x}' \underline{\chi}_e(\mathbf{x}, \mathbf{x}', t, t') \mathbf{E}(\mathbf{x}', t')$$

wobei χ_e die dielektrische Antwortfunktion ist. An dieser Stelle wird angenommen, dass unser System eine Stationarität in der Zeit und Homogenität im Raum besitzt, sodass die dielektrische Suszeptibilität nur von den Abständen $t-t'$ und $\mathbf{x} - \mathbf{x}'$ abhängt. Wird die Relation in Gleichung

¹Aus der Rechnung ist auch ersichtlich, dass obwohl für das Feld erzeugt durch das Material ein Dipolfeld postuliert wurde, das Material exakt durch dieses beschrieben wird und keine Näherung gemacht werden musste, da alle Information in ρ_{pol} liegt.

(1.5) mit genannten Annahmen eingesetzt, ergibt sich

$$\begin{aligned}\mathbf{D} &= \epsilon_0 \int_0^t dt' \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{x}' \left(\mathbb{1} \delta^3(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \delta(t - t') + \underline{\chi}_e(\mathbf{x} - \mathbf{x}', t - t') \right) \mathbf{E}(\mathbf{x}', t') \\ &\equiv \epsilon_0 \int_0^t dt' \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{x}' \underline{\epsilon}(\mathbf{x} - \mathbf{x}', t - t') \mathbf{E}(\mathbf{x}', t') = \epsilon_0 \underline{\epsilon} * \mathbf{E} .\end{aligned}$$

Hierbei bezeichnet $\underline{\epsilon}$ die dielektrische Funktion. Modelle für diese Funktion, die sowohl von früheren Zeiten als auch umgebenden Orten beeinflusst werden können, heißen nicht-lokal. Werden Näherungen gemacht, sodass die Funktion nicht vom umliegenden Material abhängt, heißt diese lokal.

Für das Magnetfeld erfolgt die Betrachtung analog mit folgendem Resultat:

$$\mathbf{B} = \mu_0 \underline{\mu} * \mathbf{H} \quad \text{und} \quad \nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{j}_{\text{frei}} + \epsilon_0 \partial_t \mathbf{D} .$$

Hierbei ist \mathbf{H} die magnetische Erregung. Somit lauten die Maxwell-Gleichungen in Materie

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho , \tag{1.6}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 , \tag{1.7}$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial_t \mathbf{B} , \tag{1.8}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \partial_t \mathbf{D} + \mathbf{j} . \tag{1.9}$$

Die Indizes „frei“ wurden an der Ladungs- und Stromdichte weggelassen. Die Materialgleichungen lauten

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \underline{\epsilon} * \mathbf{E} \quad \text{und} \quad \mathbf{B} = \mu_0 \underline{\mu} * \mathbf{H} .$$

Zur weiteren Untersuchung der Maxwell-Gleichungen ist es unhandlich, eine Zeitableitung und die Faltung beizubehalten. Bei Nutzung eines Basiswechsels eines Feldes $\mathbf{F}(t, \mathbf{x})$ in der Zeitkomponente zu den trigonometrischen Funktionen

$$\mathbf{F}(t, \mathbf{x}) = \int_{-\infty}^{\infty} dt \mathbf{F}(\omega, \mathbf{x}) e^{-i\omega t}$$

ergibt sich die Fouriertransformierte $\mathbf{F}(\omega, \mathbf{x})$, auch Spektrum des Feldes genannt. Wird das E/D-Feld und B/H-Feld in dieser Basis in z. B. Gleichung (1.9) eingesetzt, so entsteht für die linke Seite

$$\nabla \times \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathbf{H} e^{-i\omega t} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega (\nabla \times \mathbf{H}) e^{-i\omega t}$$

und für die rechte Seite

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathbf{D} e^{-i\omega t} + \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathbf{j} e^{-i\omega t} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega (-i\omega \mathbf{D} + \mathbf{j}) e^{-i\omega t} .$$

Bei Umformen der Gleichung ergibt sich

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\omega (\nabla \times \mathbf{H} + i\omega \mathbf{D} - \mathbf{j}) e^{-i\omega t} = 0 .$$

Da $e^{-i\omega t}$ mit $\omega \in \mathbb{R}$ ein vollständiges Funktionensystem ist, muss der Integrand fast überall verschwinden, sodass gilt

$$\begin{aligned}\nabla \times \mathbf{H} + i\omega \mathbf{D} - \mathbf{j} &= 0 \\ \Leftrightarrow \nabla \times \mathbf{H} &= -i\omega \mathbf{D} + \mathbf{j} .\end{aligned}$$

Bei Anwendung dieses Vorgehens auf alle Maxwell-Gleichungen folgt

Maxwell-Gleichungen in Materie der Zeit-Fouriertransformierten

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (1.10)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (1.11)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = i\omega \mathbf{B} \quad (1.12)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = -i\omega \mathbf{D} + \mathbf{j} \quad (1.13)$$

Bei den Materialgleichungen ist es sinnvoll, eine Fouriertransformation in allen Variablen durchzuführen, da die Fouriertransformation einer Faltung das Produkt der Fouriertransformierten ist, sodass:

Materialgleichungen der Fouriertransformierten

$$\mathbf{D}(\mathbf{k}, \omega) = \epsilon_0 \underline{\epsilon}(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) \quad \text{und} \quad \mathbf{B}(\mathbf{k}, \omega) = \mu_0 \underline{\mu}(\mathbf{k}, \omega) \mathbf{H}(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.14)$$

Wird der Gedankengang zur Erzeugung der Polarisation eingeschränkt, indem nicht mehr benachbarte E-Felder, sondern nur noch dem E-Feld an Ort und Stelle gestattet wird Einfluss zu nehmen, also ein lokales Materialmodell benutzt wird, so ist $\underline{\epsilon}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', t, t') \propto \delta^3(\mathbf{x} - \mathbf{x}')$. Somit ergibt sich:

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \int_0^t dt' \underline{\epsilon}(\mathbf{x}, t - t') \mathbf{E}(\mathbf{x}, t') .$$

Die Materialgleichungen können so jetzt auch nur in der Zeit fouriertransformiert werden, sodass:

$$\mathbf{D}(\mathbf{x}, \omega) = \epsilon_0 \underline{\epsilon}(\mathbf{x}, \omega) \mathbf{E}(\mathbf{x}, \omega) \quad \text{und} \quad \mathbf{B}(\mathbf{x}, \omega) = \mu_0 \underline{\mu}(\mathbf{x}, \omega) \mathbf{H}(\mathbf{x}, \omega) . \quad (1.15)$$

Wenn mit den fouriertransformierten Maxwell-Gleichungen gearbeitet wird, können die Gleichungen für die komplexen Basisvektoren $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) e^{i(\mathbf{k}\mathbf{x} - \omega t)}$ gelöst und eine Lösung im Ortsraum durch die Superposition dieser Vektoren dargestellt werden:

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} d^3\mathbf{k} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega) e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{x} - \omega t)} . \quad (1.16)$$

Da dies ein physikalisches, also messbares Feld ist, muss dieses reell sein, sodass eine Realitätsbedingung an die Fouriertransformierte gestellt wird

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega)^* = \mathbf{E}(-\mathbf{k}, -\omega) .$$

Ein solcher Basisvektor wird auch ebene und zeitharmonische Welle genannt.

1.3 Das Drude- und das Lorentz-Modell

Das Drude-Modell beschreibt ein Metall, in dem die Atomkerne fest an Gitterpunkten sitzen, also ein Ionengitter bilden und die Leitungselektronen als Elektronengas frei beweglich sind. Da die Atomkerne starr an ihren Gitterplätzen sitzen, wird die Polarisation durch die Auslenkung der Elektronen erzeugt. Es wird also eine Bewegungsgleichung für die Elektronen gesucht. Dabei wirkt das externe E-Feld als treibende Kraft auf die Elektronen. Die Atomkerne sind mit einem Streuquerschnitt verbunden, welcher dem Gas Energie entnimmt. Die Atomkerne gehen also mit einem Dämpfungsparameter γ in die Bewegungsgleichung der Elektronen ein,

$$m\ddot{\mathbf{x}}(t) + m\gamma\dot{\mathbf{x}}(t) = e\mathbf{E}(t) . \quad (1.17)$$

γ ist hier ein phänomenologischer Parameter, der invers mit der mittleren freien Weglängezeit τ zusammenhängt.

Aufgrund der Verortung der Bahnkurve ist das E,D,B,H-Feld nur von der Zeit t abhängig. Deshalb wird die Polarisation nur vom lokalen Raumpunkt und nicht von der Umgebung beeinflusst. Somit ist das Drude-Modell ein lokales Materialmodell.

Aus Gleichung (1.17) ergibt sich durch Fouriertransformation in der Zeit

$$\begin{aligned} -m\omega^2\mathbf{x}(\omega) - i\omega m\gamma\mathbf{x}(\omega) &= e\mathbf{E}(\omega) \\ \Leftrightarrow \mathbf{x}(\omega) &= \frac{-e\mathbf{E}(\omega)}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} . \end{aligned}$$

Jedes Elektron erzeugt mit dem jeweiligen Rumpfatom ein Dipol-Moment $\mathbf{d} = e\mathbf{x}$. Aufgrund der Homogenität wird also als Polarisationsladungsdichte $\mathbf{P} = \epsilon_0 n \mathbf{d}$ angenommen, wobei n die Elektronendichte ist. Bei Nutzung von Gleichungen (1.5) und (1.15) gilt

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= \epsilon_0 \underline{\epsilon} \mathbf{E} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \\ \Leftrightarrow \epsilon_0 \underline{\epsilon} \mathbf{E} &= \epsilon_0 \left(1 - \frac{e^2 n}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \right) \mathbf{E} . \end{aligned}$$

Dielektrizitätskonstante im Drude-Modell

$$\Leftrightarrow \underline{\epsilon}(\omega) = \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \right) \mathbb{1} \quad (1.18)$$

Hierbei ist $\omega_p^2 = \frac{e^2 n}{m}$ die Plasmafrequenz. Die Masse, die zu der Berechnung der Plasmafrequenz benötigt wird, ist die effektive Masse der Elektronen. Diese ist die scheinbare Masse des Elektrons in einem Ionengitter. Zu berücksichtigen ist, dass in diesem Modell Interbandübergänge oder andere komplexe Mechanismen vernachlässigt werden. Die dielektrische Funktion von Metallen weicht also stark ab sobald solche Übergänge möglich sind. In Abbildung 1.1 ist zu erkennen, dass für Gold das Drude-Modell bis zu solchen Interbandübergängen eine gute

Näherung der dielektrischen Funktion ist. Ein weiteres Materialmodell ist das Lorentz-Modell.

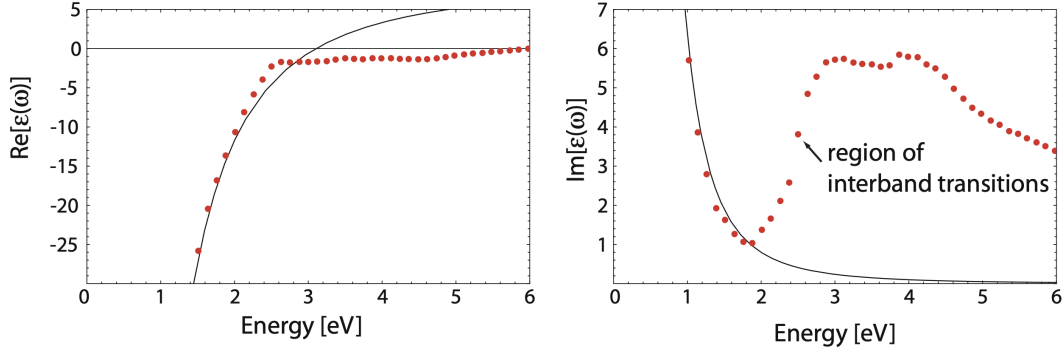


Abbildung 1.1: Fit der dielektrischen Funktion im Drude-Modell (durchgezogene Linie) an die experimentellen Werte für Gold (Punkte). Interbandübergänge beschränken die Gültigkeit des Modells bei sichtbarem und höherfrequentem Licht. Das Bild wurde aus Ref. [1] entnommen.

Hierfür wird ein zusätzlicher Term $\alpha \mathbf{x}$ in die Bewegungsgleichung aufgenommen. Dieser Term entspricht einem Federpotential und bewirkt, dass das Elektron an sein Rumpfatom gebunden ist. Damit entsteht ein Modell für Dielektrika, die nicht leitend sind, also

$$m\ddot{\mathbf{x}}(t) + m\gamma\dot{\mathbf{x}}(t) + \alpha\mathbf{x}(t) = e\mathbf{E}(t) .$$

Die Verwendung der Gleichungen (1.5) und (1.15) analog zum Drude-Modell ergibt

$$\underline{\epsilon}(\omega) = \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega - \omega_0^2} \right) \mathbb{1} .$$

Mit $\omega_0^2 = \frac{\alpha}{m}$. In der obigen Betrachtung wurde eine Federstärke für die gebundenen Elektronen erlaubt. Tatsächlich befinden sich in einem Atom Elektronen, die manchmal mehr oder weniger an das Rumpfatom gebunden sind. Besser ist es demnach mehrere Federkonstanten ω_0 zu berücksichtigen, sodass sich das Dipolmoment zu $\mathbf{d}_i = e\mathbf{x}_i$ und damit die Polarisation zu $\mathbf{P} = \epsilon_0 \sum_{\omega_{0,i}} n_i \mathbf{d}_i$ ergibt. Werden nun konkret zwei Federkonstanten erlaubt, wobei gilt $\omega_{0,1} \ll \omega_{0,2}$, und zudem gefordert, dass das treibende E-Feld keinen dominanten hochfrequenten Anteil besitzt $\mathbf{E}(\omega \gtrsim \omega_{0,2}) \ll \mathbf{E}(\omega < \omega_{0,2})$, dann lässt sich schreiben:

$$\begin{aligned} \underline{\epsilon}(\omega) &= \left(1 - \frac{\omega_{p,2}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega - \omega_{0,2}^2} - \frac{\omega_{p,1}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega - \omega_{0,1}^2} \right) \mathbb{1} \\ &\wedge \frac{\omega_{p,2}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega - \omega_{0,2}^2} \approx - \left(\frac{\omega_{p,2}}{\omega_{0,2}} \right)^2 + \mathcal{O} \left(\frac{\omega^2}{\omega_{0,2}^2} \right) \end{aligned}$$

Dielektrizitätskonstante im Lorentz-Modell

$$\Rightarrow \quad \underline{\epsilon}(\omega) \approx \left(\epsilon_{\infty} - \frac{\omega_{p,1}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega - \omega_{0,1}^2} \right) \mathbb{1}. \quad (1.19)$$

Mit $\epsilon_{\infty} = 1 + \left(\frac{\omega_{p,2}}{\omega_{0,2}} \right)^2$. Obiges Modell berücksichtigt gebundene Zustände. Diese Beiträge können zu der Dielektrizitätskonstante des Drude-Modells (1.18) hinzuaddiert werden, um Interband-übergänge zu modellieren.

1.4 Reflektionskoeffizienten

Die Beschreibungen der obigen Materialien sind makroskopisch. Was passiert aber, wenn zwei verschiedene Materialien im Raum existieren und so eine Grenzfläche entsteht? Innerhalb eines Materials gelten die Maxwell-Gleichungen. An der Grenzschicht jedoch kommt es zu einer Überraschung, einer Unstetigkeit, hervorgerufen durch die Beschreibung des Materials als Kontinuum. Es gelten dann Grenzbedingungen, die hier diskutieren werden.

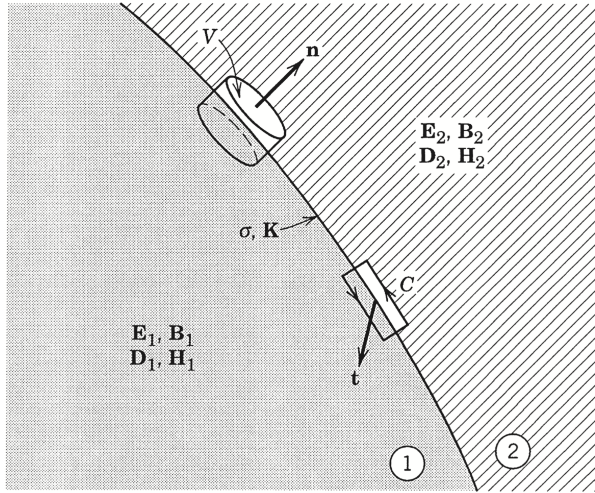


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung einer mit idealisierten Flächenladungen und Flächenströmen der Dichte σ bzw. \mathbf{K} belegten Trennfläche verschiedener Medien. Das Volumen V wird von einem flachen Zylinder begrenzt, dessen Deckflächen in jeweils einem der beiden Medien liegen. Die Normale \mathbf{n} zeigt von Material 1 ins Material 2. Die rechteckige Kurve C liegt teilweise in dem einen, teilweise in dem anderen Medium. Die von C aufgespannte Fläche F ist senkrecht zur Trennfläche gerichtet, sodass ihre Normale \mathbf{t} Tangentenvektor der Trennfläche ist. Das Bild wurde aus Ref. [2] entnommen.

Ausgangspunkt der Diskussion ist Bild 1.2. Werden die Gleichungen, die mit einer Rotation formuliert sind ((1.8) und (1.9)) über ein Rechteck der Fläche F , welches über die Kurve C in Abb. 1.2 definiert ist und die Grenzfläche durchstößt, integriert, so folgt mittels des Stokesschen

Satzes

$$\begin{aligned}
& \int_F dF \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = - \int_F d\mathbf{F} \cdot \partial_t \mathbf{B} \\
& \Leftrightarrow \quad \mathbf{n} \times (\mathbf{E}_2 - \mathbf{E}_1) = 0 , \\
& \int_F dF \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) = - \int_F d\mathbf{F} \cdot (\partial_t \mathbf{D} + \mathbf{j}) \\
& \Leftrightarrow \quad \mathbf{n} \times (\mathbf{H}_2 - \mathbf{H}_1) = \mathbf{K} .
\end{aligned}$$

Somit ist die parallele Komponente des E-Feldes stetig und die des H-Feldes unstetig um den Wert des enthaltenen Oberflächenstroms \mathbf{K} .

Werden die Gleichungen, die mit einer Divergenz formuliert sind ((1.6) und (1.7)) über einen kleinen Zylinder mit Deckfläche ΔA integriert, der die Grenzfläche beinhaltet, so folgt mittels des Gaußschen Satzes

$$\begin{aligned}
& \int_V d^3\mathbf{x} \nabla \cdot \mathbf{D} = \int_V d^3\mathbf{x} \rho \\
& \Leftrightarrow \quad \mathbf{n} \cdot (\mathbf{D}_2 - \mathbf{D}_1) \Delta A = Q_{\text{frei}} , \\
& \int_V d^3\mathbf{x} \nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \\
& \Leftrightarrow \quad \mathbf{n} \cdot (\mathbf{B}_2 - \mathbf{B}_1) \Delta A = 0 .
\end{aligned}$$

Damit ist die senkrechte Komponente des \mathbf{D} -Feldes unstetig. Der Wert springt um die an der Grenzschicht enthaltene Ladungsdichte $\sigma = \frac{Q_{\text{frei}}}{\Delta A}$. Die senkrechte Komponente des \mathbf{B} -Feldes ist stetig.

Um die Reflektionskoeffizienten zu berechnen, werden die Stetigkeitsbedingungen auf Basisvektoren der Fouriertransformierten, ebene Wellen, untersucht, wie in Abbildungen 1.3a und 1.3b skizziert. Die explizite Diskussion erfordert weiteres Umformen der Maxwell-Gleichungen und Arbeiten im Fourierraum, was in Ref. [2] nachvollzogen werden kann. Die daraus resultierenden Reflektionskoeffizienten sind

$$\begin{aligned}
r_p &= \frac{n \cos(\alpha) - \frac{\mu}{\mu'} \sqrt{n'^2 - n^2 \sin^2(\alpha)}}{n \cos(\alpha) + \frac{\mu}{\mu'} \sqrt{n'^2 - n^2 \sin^2(\alpha)}} , \\
r_s &= \frac{\frac{\mu}{\mu'} n'^2 \cos(\alpha) - n \sqrt{n'^2 - n^2 \sin^2(\alpha)}}{\frac{\mu}{\mu'} n'^2 \cos(\alpha) - n \sqrt{n'^2 - n^2 \sin^2(\alpha)}} , \\
&\text{mit: } n = \sqrt{\mu \epsilon} .
\end{aligned}$$

Hier wurde das Material als isotrop genähert, sodass die dielektrische Verschiebung $\underline{\chi} \rightarrow \chi$ und somit auch $\underline{\epsilon} \rightarrow \epsilon$ Skalare sind (genauso $\underline{\mu}$). Dies sind wie bereits erwähnt die Reflektionskoeff-

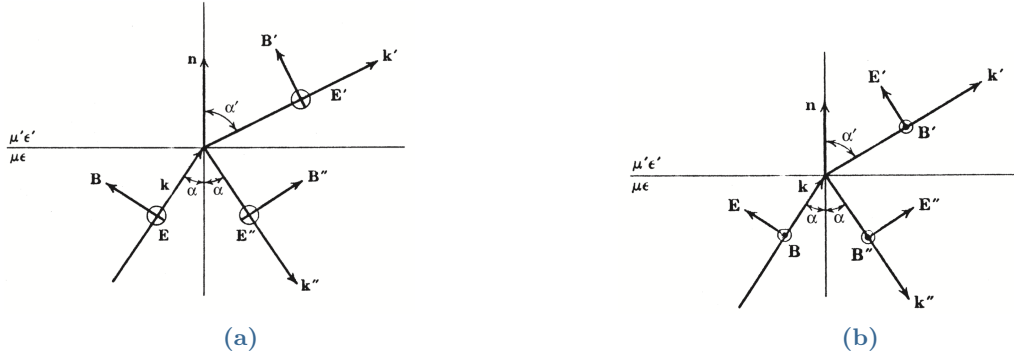


Abbildung 1.3: Reflektion und Brechung eines Lichtstrahls, dessen elektrischer Feldvektor in einer Ebene senkrecht (a) bzw. parallel (b) zur Einfallsebene schwingt. Das Bild wurde aus Ref. [2] entnommen.

fizienten für die Basisvektoren der Fouriertransformation, also ebene Wellen der Form

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{x} - \omega t)} = \left(\mathbf{E}_s(\mathbf{k}, \omega) + \mathbf{E}_p(\mathbf{k}, \omega) \right) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{x} - \omega t)} .$$

Das gesamte reflektierte E-Feld wird dann über die inverse Fouriertransformation aus Gleichung (1.16) bestimmt

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} d^3 \mathbf{k} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \left(r_s \mathbf{E}_s(\mathbf{k}, \omega) + r_p \mathbf{E}_p(\mathbf{k}, \omega) \right) e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{x} - \omega t)} .$$

Das später betrachtete Atom ist im Vakuum positioniert, sodass $n = 1$. Zudem stellt sich heraus, dass für optische Frequenzbereiche keine starke Magnetisierung des Materials stattfinden, sodass

$$1 = \mu \approx \mu' \Leftrightarrow \frac{\mu}{\mu'} \approx 1 ,$$

$$n' = \sqrt{\epsilon'} \equiv \sqrt{\epsilon} .$$

Für die weitere Berechnung werden diese Koeffizienten nicht in Abhängigkeit des Winkels benötigt, sondern in Abhängigkeit des Wellenvektors \mathbf{k} . Um diese Terme weiter umzuformen werden die Dispersionsrelation und Winkelidentitäten benötigt:

$$|\mathbf{k}| = \frac{\omega}{c} ,$$

$$\sin(\alpha) = \frac{|\mathbf{k}_{\parallel}|}{|\mathbf{k}|} \equiv \frac{k}{|\mathbf{k}|} = \frac{ck}{\omega} ,$$

$$\cos(\alpha) = \sqrt{1 - \sin^2(\alpha)} = \sqrt{1 - \frac{c^2 k^2}{\omega^2}} .$$

Es ist zu beachten, dass $|\mathbf{k}| \neq k = |\mathbf{k}_{\parallel}|$. Mit obigen Bedingungen und Identitäten ergibt sich:

Reflektionskoeffizienten einer Grenzschicht

$$r_p = \frac{\kappa - \kappa_m}{\kappa + \kappa_m} \quad r_s = \frac{\epsilon\kappa - \kappa_m}{\epsilon\kappa + \kappa_m} \quad (1.20)$$

Wobei die Funktionen

$$\kappa = \sqrt{k^2 - \frac{\omega^2}{c^2}} \quad \text{und} \quad \kappa_m = \sqrt{k^2 - \epsilon \frac{\omega^2}{c^2}} \quad (1.21)$$

definiert wurden. Damit erschließt sich, wie sich ebene Wellen an einer Grenzschicht verhalten. Die Stetigkeitsbedingungen konnten anschaulich über die Wellenvektoren und Ein-/Austrittswinkel beschrieben werden. Interessant ist, wenn eine zweite Grenzschicht hinter der Ersten platziert wird, denn dann entstehen Reflexionen an dieser, welche wiederum an der ersten Grenzschicht zu Interferenzen führen. Die Herleitung dieses Reflektionskoeffizienten kann in Ref. [3] nachgelesen werden.

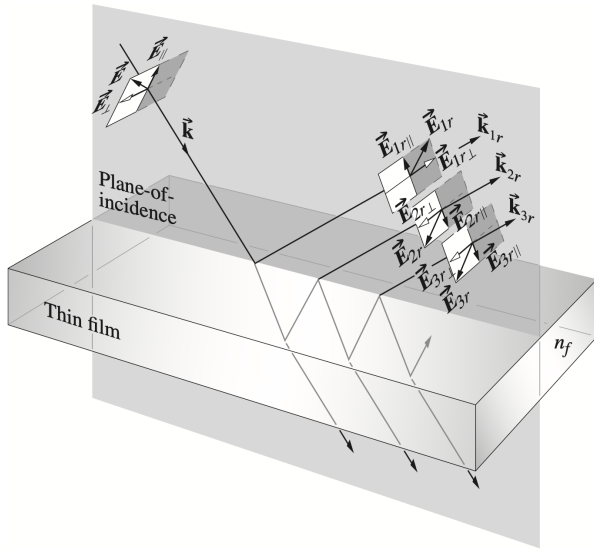


Abbildung 1.4: Reflexion und Brechung eines Lichtstrahls an einer Platte. Das Bild wurde aus Ref. [3] entnommen.

Im Fall von nicht absorbierenden Medien, also Medien die dem E-Feld keine Energie entziehen, ergibt sich der Reflektionskoeffizient²:

$$r_{p/s, \text{Platte}} = \frac{r_{p/s} (1 - e^{i\delta})}{1 - r_{p/s} e^{i\delta}} .$$

²Aufgrund von Vorzeichen-Konventionen, die in dieser Arbeit verwendet werden, wird der Reflektionskoeffizient aus Ref. [4] entnommen.

Mit $r_{p/s}$ als Reflektionskoeffizienten eines Halbraums und

$$\delta = 2d \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon - c^2 \frac{k^2}{\omega^2}} = 2id\kappa_m .$$

Hierbei wurde vorausgesetzt, dass über und unter der Platte das selbe Material, in diesem Fall Vakuum, vorliegt. Es ergibt sich also:

Reflektionskoeffizient einer Platte

$$r_{p/s, \text{Platte}} = \frac{r_{p/s} (1 - e^{-2d\kappa_m})}{1 - r_{p/s} e^{-2d\kappa_m}} \quad (1.22)$$

1.5 Die Methode der Greenschen Funktion

Im Folgendem wurde sich an Ref. [5] orientiert. Die Methode der Greenschen Funktion dient zur Lösung von inhomogenen Differentialgleichungen der Form

$$\hat{D}\mathbf{A}(\mathbf{x}) = \mathbf{B}(\mathbf{x}) ,$$

wobei \hat{D} ein linearer Differentialoperator ist, der auf das Vektorfeld \mathbf{A} wirkt. Das Vektorfeld \mathbf{B} ist die Inhomogenität der Differentialgleichung und wird meist auch Quellenterm genannt. Lösungen solcher Gleichungen können als Summe der homogenen und partikulären Lösung geschrieben werden. In der vorliegenden Diskussion gilt die Annahme, dass die homogene Lösung bereits bekannt ist. Um nun die partikuläre Lösung zu finden wird die Funktion benötigt, deren Anwendung des Differentialoperators eine Delta-Funktion ergibt

$$\hat{D}_{\mathbf{x}} \mathbf{G}_i(\mathbf{x}, \mathbf{x}') = \mathbf{n}_i \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') ,$$

sodass eine beliebige Lösung durch Faltung dieser mit der Inhomogenität entsteht. Eine solche Funktion heißt Greensche Funktion. \mathbf{n}_i ist dabei ein beliebiger Einheitsvektor, wobei gilt $\mathbf{n}_i \cdot \mathbf{n}_j = \delta_{ij}$. Kompakt können die drei Gleichungssysteme wie folgt mit Hilfe der dyadischen Greenschen Funktion geschrieben werden:

$$\hat{D}\underline{G} = \left(\hat{D}\mathbf{G}_1 \mid \hat{D}\mathbf{G}_2 \mid \hat{D}\mathbf{G}_3 \right) = \mathbb{1}\delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') .$$

Hierbei wirkt der Differentialoperator auf die einzelnen Spalten der Dyade. Wie oben bereits erwähnt, ist nun die partikuläre Lösung gegeben durch $\underline{G} * \mathbf{B}$, denn

$$\begin{aligned} \hat{D}_{\mathbf{x}}(\underline{G} * \mathbf{B})(\mathbf{x}) &= \hat{D}_{\mathbf{x}} \int_V d^3\mathbf{x}' \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \mathbf{B}(\mathbf{x}') = \int_V d^3\mathbf{x}' (\hat{D}_{\mathbf{x}} \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}')) \mathbf{B}(\mathbf{x}') \\ &= \int_V d^3\mathbf{x}' \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \mathbf{B}(\mathbf{x}') = \mathbf{B}(\mathbf{x}) . \end{aligned}$$

Ob das Integral und der Differentialoperator vertauscht werden können, muss im konkreten Fall untersucht werden.

1.6 Greensche Funktion des Vakuums

Nun folgt die Verwendung der zuvor betrachteten Greenschen Funktion in homogenen linearen Medien. Gesucht ist die Lösung der in der Zeit-Komponente fouriertransformierten Maxwell-Gleichungen (1.10)-(1.13). Die Differentialoperatoren sind jetzt lediglich Operatoren, die auf die räumliche Koordinate wirken. Deswegen wird die Greensche Funktion nur in diesen Koordinaten gesucht. Um die zeitabhängigen Felder zu erhalten wird in der Zeit invers fouriertransformiert. Für das weitere Vorgehen wird die explizite Frequenzabhängigkeit weggelassen. Im Weiteren finden die Felder in Form ihrer Potentiale Verwendung, also

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}) = i\omega \mathbf{A}(\mathbf{x}) - \nabla \phi(\mathbf{x}) , \quad (1.23)$$

$$\mathbf{H}(\mathbf{x}) = \frac{1}{\mu_0 \mu} \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{x}) . \quad (1.24)$$

Damit ergibt sich unter Verwendung von 1.13:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{x}) = \mu_0 \mu \mathbf{j}(\mathbf{x}) - i\omega \mu_0 \epsilon_0 \mu \epsilon (i\omega \mathbf{A}(\mathbf{x}) - \nabla \phi(\mathbf{x})) . \quad (1.25)$$

Es wurden die Materialgleichungen (1.15) verwendet, wobei $\underline{\epsilon} = \epsilon \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \delta(\mathbf{t} - \mathbf{t}')$ und $\underline{\mu}$ analog vereinfacht wurden. Die Potentiale sind nicht eindeutig festgelegt. Eine sogenannte Eichfreiheit besteht in der Festlegung der Divergenz des Vektorpotentials. Hier fiel die Wahl auf die sogenannte Lorentz-Eichung

$$\nabla \cdot \mathbf{A}(\mathbf{x}) = i\omega \mu_0 \epsilon_0 \mu \epsilon \phi(\mathbf{x}) . \quad (1.26)$$

Bei Verwendung von 1.25 und der Identität, dass $\nabla \times \nabla = -\nabla^2 + \nabla \nabla$, ergibt sich

$$\begin{aligned} -\nabla^2 \mathbf{A}(\mathbf{x}) &= \mu_0 \mu \mathbf{j}(\mathbf{x}) + \omega^2 \mu_0 \mu \epsilon_0 \epsilon \mathbf{A}(\mathbf{x}) \\ \Leftrightarrow \quad \left(\nabla^2 + k^2 \right) \mathbf{A}(\mathbf{x}) &= \mu_0 \mu \mathbf{j}(\mathbf{x}) . \end{aligned}$$

Mit $k^2 = \omega^2 \mu_0 \mu \epsilon_0 \epsilon$. Unter Nutzung von Gleichung 1.10 und den Potentialen folgt

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (i\omega \mathbf{A}(\mathbf{x}) - \nabla \phi) &= \frac{\rho(\mathbf{x})}{\epsilon_0 \epsilon} \\ \Leftrightarrow \quad \left(\nabla^2 + k^2 \right) \phi(\mathbf{x}) &= \frac{\rho(\mathbf{x})}{\epsilon_0 \epsilon} . \end{aligned}$$

Sämtliche Gleichungen für die Potentiale entsprechen der Form

$$\left(\nabla^2 + k^2 \right) f(\mathbf{x}) = g(\mathbf{x}) . \quad (1.27)$$

Diese ist als Helmholtz-Gleichung bekannt und besitzt die Greensche Funktion

$$G_H(\mathbf{x}, \mathbf{x}') = \frac{e^{\pm ik|\mathbf{x}-\mathbf{x}'|}}{4\pi|\mathbf{x}-\mathbf{x}'|} . \quad (1.28)$$

Damit ergibt sich für das Vektorpotential die folgende partikuläre Lösung

$$\mathbf{A}(\mathbf{x}) = (G_H * \mathbf{A})(\mathbf{x}) = \mu_0 \mu \int_V d^3 \mathbf{x}' \mathbf{j}(\mathbf{x}') G_H(\mathbf{x}, \mathbf{x}') . \quad (1.29)$$

Bisher erfolgte die Betrachtung von Potentialen. Nun ist die Rückkehr zum E-Feld notwendig. Hierfür wird die Rotation der Maxwell-Gleichung 1.12 gebildet:

$$\begin{aligned} \nabla \times \nabla \times \mathbf{E} &= i\omega \mu \mu_0 \nabla \times \mathbf{H} && \left| \text{Einstetzen von 1.13} \right. \\ \Leftrightarrow \nabla \times \nabla \times \mathbf{E} &= \omega^2 \mu_0 \mu \epsilon_0 \epsilon \mathbf{E} + i\omega \mu \mu_0 \mathbf{j} \\ \Leftrightarrow \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{x}) - k^2 \mathbf{E}(\mathbf{x}) &= i\omega \mu \mu_0 \mathbf{j}(\mathbf{x}) . \end{aligned}$$

Nun folgt der Versuch, die Greensche Funktion von Gleichung 1.28 auf die des Differentialoperators der Bestimmungsgleichung des E-Feldes in homogenen Medien zurückzuführen. Für die Greensche Funktion des E-Feldes gilt also

$$\nabla \times \nabla \times \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') - k^2 \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') = \mathbb{1} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') .$$

Damit liegt eine physikalische Veranschaulichung der Greenschen Funktion vor. Jede Spalte der Greenschen Funktion entspricht dem E-Feld erzeugt durch einen Strom am Punkt \mathbf{x}' , der jeweils in $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z$ zeigt! Die gesamte partikuläre Lösung ist damit die Superposition aller Punktströme, ausgedrückt durch das Integral

$$\mathbf{E}(\mathbf{x})_{\text{part}} = i\omega \mu \mu_0 \int_V d^3 \mathbf{x}' \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \mathbf{j}(\mathbf{x}') . \quad (1.30)$$

Die vollständige Lösung lautet somit

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}) = \mathbf{E}_0(\mathbf{x}) + i\omega \mu \mu_0 \int_V d^3 \mathbf{x}' \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \mathbf{j}(\mathbf{x}') .$$

Hierbei ist $\mathbf{E}_0(\mathbf{x})$ die homogene Lösung. Für die magnetische Erregung sieht die Gleichung sehr ähnlich aus. Beide Gleichungen sind auch als Volumen-Integral-Gleichungen bekannt. Sie bilden das Fundament für Formalismen wie die Momenten-Methode, die Lippman-Schwinger-Gleichung und die gekoppelte Dipol-Methode.

Nun aber zurück zur konkreten Darstellung der Greenschen Funktion. Wird das E-Feld durch seine Potentiale ausgedrückt (1.23) und die Lorentz-Eichung (1.26) genutzt, gilt

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}) = i\omega \left(1 + \frac{1}{k^2} \nabla \nabla \cdot \right) \mathbf{A}(\mathbf{x}) . \quad (1.31)$$

Mit der Methode der Greenschen Funktion (1.30) wird obiger Ausdruck zu

$$i\omega\mu\mu_0 \int_V d^3\mathbf{x}' \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \mathbf{j}(\mathbf{x}') = i\omega \left(1 + \frac{1}{k^2} \nabla \nabla \cdot \right) \mathbf{A}(\mathbf{x}) . \quad (1.32)$$

Wie bereits erwähnt, wird die Greensche Funktion durch einen Strom der Form

$$\mathbf{j} = (i\omega\mu_0\mu)^{-1} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \mathbf{e}_i$$

erzeugt. Somit hat das Vektorpotential (1.29) auf der rechten Seite der Gleichung (1.32) die Form

$$\mathbf{A}(\mathbf{x}) = \frac{G_H(\mathbf{x}, \mathbf{x}')}{i\omega} \mathbf{e}_i .$$

Wird dieser Strom auch noch in die linke Seite eingesetzt ergibt sich

$$\mathbf{G}_i = \left(1 + \frac{1}{k^2} \nabla \nabla \cdot \right) G_H(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \mathbf{e}_i .$$

Folglich gilt für die gesamte Dyade:

$$\underline{G} = \left(\mathbb{1} + \frac{1}{k^2} \nabla \nabla \cdot \mathbb{1} \right) G_H(\mathbf{x}, \mathbf{x}') \quad (1.33)$$

Im Weiteren wird die explizite Form (siehe Ref. [2]) für das Vakuum $\mu = \epsilon = 1$ benötigt:

Greensche Funktion des Vakuums

$$\underline{G}_{\text{Vak}}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{\omega}{c} \right) e^{i\frac{\omega\rho}{c}} \left[\frac{3\mathbf{e}\mathbf{e} - \mathbb{1}}{\left(\frac{\omega\rho}{c} \right)^3} \left(1 - i\frac{\omega\rho}{c} \right) + \frac{\mathbb{1} - \mathbf{e}\mathbf{e}}{\frac{\omega\rho}{c}} \right] \quad (1.34)$$

Mit $\mathbf{x} - \mathbf{x}' = \boldsymbol{\rho} = \mathbf{e}\rho$, \mathbf{e} ist ein Einheitsvektor.

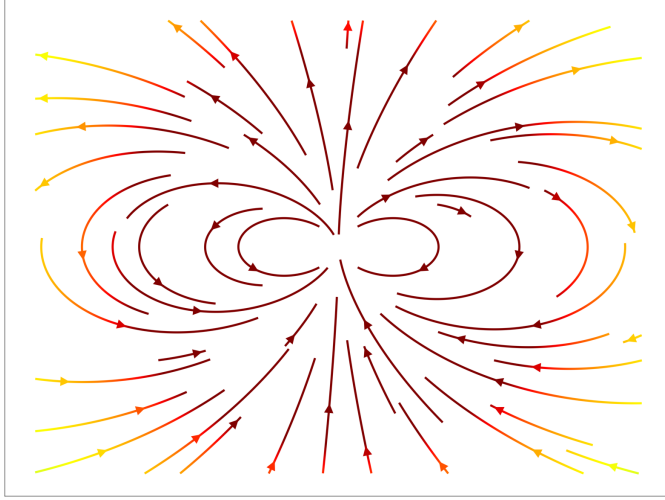


Abbildung 1.5: Dargestellt ist das E-Feld eines Dipols im Vakuum. Dieses ist eine Spalte des stationären Vakuums-Green-Tensors. Dieser wird mit $\frac{\omega\rho}{c} \rightarrow 0$ aus Gleichung (1.34) erhalten, siehe Ref. [6]. Die Linien verlaufen tangential zu den Feldstärkevektoren, sind aber keine Feldlinien, da sie nicht bei Ladungen beginnen oder enden. Je dunkler die Feldlinien, desto größer ist der Feldstärkevektor. Bild freundlicherweise zur Verfügung gestellt von Bettina Beverungen.

1.7 Greensche Funktion einer planaren Symmetrie

Die spannendere Greensche Funktion im Vergleich zu der im Vakuum, die in dieser Arbeit betrachtet wird, ist die einer planaren Struktur (siehe Ref. [7]). Der Raum wird jetzt in eine Richtung parallel zu der Symmetrieebene $\mathbf{x}_{\parallel} = (x, y)^T$ und senkrecht zu dieser aufgeteilt. Die senkrechte Achse ist somit die z -Achse. Die analytische Funktion kann bis jetzt nur im Fourierraum der zwei Symmetrierichtungen dargestellt werden

$$\underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \mathbf{t}) = \underline{G}(\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel}, z, z', t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \int_{\mathbb{R}^2} \frac{d\mathbf{k}_{\parallel}}{(2\pi)^2} \underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) e^{i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot (\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel}) - i\omega t},$$

Wobei \mathbf{k}_{\parallel} der Wellenvektor parallel zu der Symmetrieebene ist. Tatsächlich zeigt sich, dass die Dyade in einen Vakuum-Term zerfällt, der identisch zu (1.34) ist, und in einen Streu-Term, der vom Material verursacht wird

$$\underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) = \underline{G}_{\text{Vak}}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) + \underline{G}_{\text{Streu}}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega).$$

Für die spätere Berechnung der Zerfallsrate ist die Auswertung der Dyade bei $z = z'$ wichtig, im Argument steht somit nur noch z .

Greensche Funktion einer planaren Struktur

$$\underline{G}_{\text{Streu}}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) = \frac{\kappa}{2\epsilon_0} \left(r^p(\omega, \mathbf{k}_{\parallel}) \underline{\Pi}_p + \frac{\omega^2}{c^2 \kappa^2} r^s(\omega, \mathbf{k}_{\parallel}) \underline{\Pi}_s \right) e^{-2\kappa z} \quad (1.35)$$

Hierbei ist κ wie in (1.21) definiert. Die Branchcuts von κ wurden so gelegt, dass $\text{Re}(\kappa) > 0$ und $\text{Im}(\kappa) < 0$. Die Faktoren r^s und r^p sind die Reflektionskoeffizienten der jeweiligen Polarisation. Diese hängen über den Wellenvektor für das Drude-/Lorentz-Modell nur von dessen Betrag

$|\mathbf{k}_\parallel| = k$ ab. Die Matrizen sind gegeben durch das dyadische Produkt der Vektoren

$$\mathbf{s} = \frac{\mathbf{k}}{k} \times \mathbf{e}_z \quad \mathbf{p}_\pm = \mp i \left(\frac{\mathbf{k}}{k} \pm i \frac{k}{\kappa} \mathbf{e}_z \right),$$

wobei \mathbf{e}_z der Einheitsvektor in z-Richtung ist und $\mathbf{k} = (\mathbf{k}_\parallel, 0)^T = (k_x, k_y, 0)^T$, also

$$\underline{\Pi}_s = \mathbf{s}\mathbf{s} = \begin{pmatrix} \frac{k_y^2}{k^2} & -\frac{k_y k_x}{k^2} & 0 \\ -\frac{k_y k_x}{k^2} & \frac{k_x^2}{k^2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \underline{\Pi}_p = \mathbf{p}\mathbf{p} = \begin{pmatrix} \frac{k_x^2}{k^2} & \frac{k_y k_x}{k^2} & -i \frac{k_x}{\kappa} \\ \frac{k_y k_x}{k^2} & \frac{k_y^2}{k^2} & -i \frac{k_y}{\kappa} \\ i \frac{k_x}{\kappa} & i \frac{k_y}{\kappa} & \frac{k^2}{\kappa^2} \end{pmatrix}. \quad (1.36)$$

Weiterführend kann nun für eine Platte die transmittierte Green-Dyade berechnet werden (siehe Ref. [5]). Mit diesen abstrakten Ergebnissen ist unmittelbar durch numerische Evaluation dieser das gesamte E-Feld gegeben (siehe Abbildung 1.6). Solche analytischen Greentensoren sind nur für einige wenige Symmetrien wie planare Symmetrien, Zylinder und Kugeln bekannt. Ist aber eine nicht durch diese Greentensoren approximierbare Geometrie von Interesse, so wurde gezeigt, dass der Greentensor ein reskaliertes E-Feld eines Dipols ist. Also kann durch numerische Evaluation der Maxwell-Gleichungen das Feld erzeugt durch einen Dipol errechnet und somit der Green-Tensor approximiert werden.

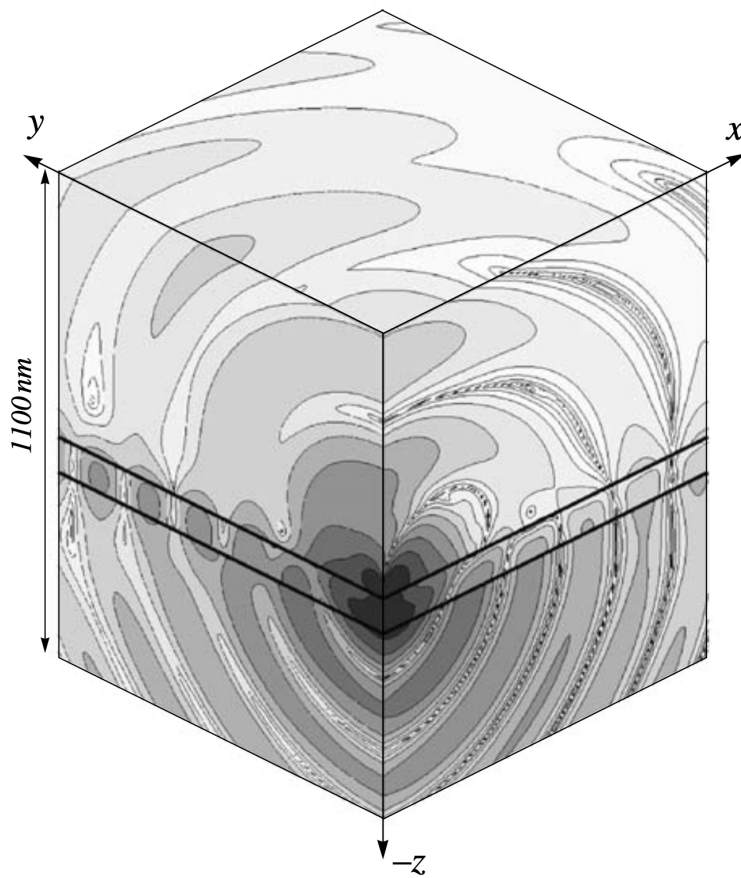


Abbildung 1.6: Leistungsdichte eines Dipols über einem Wellenleiter zu einem bestimmten Zeitpunkt. Der Dipol befindet sich in Höhe von 20 nm und seine Achse liegt in der x, z -Ebene. ($\theta = 60^\circ$, $\lambda = 488\text{ nm}$, $d = 80\text{ nm}$, $\epsilon_1 = 1$, $\epsilon_2 = 5$, $\epsilon_3 = 2.25$). Zwischen zwei aufeinanderfolgenden Kontourlinien ist ein Faktor von 2 der Leistungsdichte. Das Bild wurde aus Ref. [5] entnommen.

Einführung in spontane Emissionsraten

2.1 Allgemeines

In diesem Kapitel wird die Theorie des spontanen Zerfalls diskutiert. Die Ausführung folgt im wesentlichen Ref. [8]. Spontane Emission bezeichnet einen Prozess, bei dem ein System in einem Zustand, der nicht der Grundzustand ist, in diesen übergeht. Im Gegensatz zu der stimulierten Emission wird spontane Emission durch Vakuumfluktuationen erzeugt. Hier handelt es sich also um einen konkreten Fall der Berechnung von Übergangsamplituden. Sie beschreiben die Wahrscheinlichkeit, dass ein Zustand, meist Anfangszustand genannt, im Laufe der Zeit in einen anderen Zustand, meist finaler Zustand genannt, übergeht. In der Quantenmechanik wird eine Übergangsamplitude mittels Projizieren des finalen Zustandes $|f\rangle$ („final“) aus dem Anfangszustand $|i\rangle$ („initial“) berechnet

$$A_{i \rightarrow f} = \langle f | i \rangle .$$

Hierbei wird die Zeitabhängigkeit zunächst unterdrückt. Selbstverständlich ist bei nicht-stationären Zuständen die Frage relevant, welche Werte die Übergangsamplitude zu einer konkreten Zeit annimmt. Der anfängliche Zustand wird dann zum Zeitpunkt t_i angenommen und entwickelt sich gemäß des Zeitentwicklungsoperators weiter

$$A_{i \rightarrow f}(t) = \langle f | i(t) \rangle = \langle f | \hat{U}(t - t_i) | i \rangle . \quad (2.1)$$

Die tatsächliche Wahrscheinlichkeit, den finalen Zustand $|f\rangle$ zu erhalten, ergibt sich aus dem Betragsquadrat der Amplitude

$$P_{i \rightarrow f}(t) = \left| A_{i \rightarrow f}(t) \right|^2 .$$

Die Wahrscheinlichkeit, den Zustand zu wechseln, also nicht im Anfangszustand zu verweilen $i \rightarrow \not{i}$, entspricht der Summe aller möglichen finalen Zustände

$$P_{\not{i}}(t) = \sum_f \left| A_{i \rightarrow f}(t) \right|^2 .$$

Die Wahrscheinlichkeit, den Zustand zu behalten, ergibt sich entsprechend zu

$$P_i(t) = 1 - \sum_f \left| A_{i \rightarrow f}(t) \right|^2 .$$

Beim Versuch, eine solche Übergangswahrscheinlichkeit mit der Störungstheorie zu berechnen, wird auf die Tatsache zurückgegriffen, dass sich der Hamiltonian schreiben lässt als

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_I$$

wobei \hat{H}_0 der Hamiltonian des Systems ist, aus dem die Zustände $|f\rangle, |i\rangle$ als Eigenzustände stammen und \hat{H}_I („Interaction“) der Stör-Hamiltonian, der extern hervorgerufen wird. In der unmittelbar folgenden Rechnung wird eine explizite Zeitabhängigkeit des Hamiltonian \hat{H}_0 ausgeschlossen. Interessant ist jetzt der Zeitentwicklungsoperator $\hat{U}(t - t_i)$. Dieser ist als Operator definiert, der die Gleichung

$$\frac{d}{dt}\hat{U}(t - t_i) = -\frac{i}{\hbar}\hat{H}\hat{U}(t - t_i)$$

löst. Im vorliegenden Fall also

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\hat{U}(t - t_i) + \frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\hat{U}(t - t_i) &= -\frac{i}{\hbar}\hat{H}_I\hat{U}(t - t_i) \\ \Leftrightarrow \frac{d}{dt}\left(e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)}\hat{U}(t - t_i)\right) &= -\frac{i}{\hbar}\underbrace{\left(e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)}\hat{H}_Ie^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)}\right)}_{\equiv \hat{H}_I(t)}\left(e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)}\hat{U}(t - t_i)\right). \end{aligned}$$

Nun folgt das Integrieren der Gleichung mit $\int_{t_i}^t dt$, sodass

$$e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)}\hat{U}(t - t_i) = 1 - \frac{i}{\hbar} \int_{t_i}^t dt' \hat{H}_I(t') \left(e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t'-t_i)}\hat{U}(t' - t_i)\right).$$

Terme der Ordnung $\hat{H}_I(t)\hat{H}_I(t')$ sind zu vernachlässigen, denn unter Benutzung der ersten Ordnung stellt sich heraus, dass die Übergangsrate quadratisch im Stör-Hamiltonian ist. Würden hier Terme höherer Ordnung mitberücksichtigt werden, würde die Übergangsrate kubische und Terme 4. Ordnung des Stör-Hamiltonians beinhalten. Das Ergebnis des Versuchs, die Gleichung iterativ in sich selbst einzusetzen, ergibt

$$\hat{U}(t - t_i) \approx e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)} \left(1 - \frac{i}{\hbar} \int_{t_i}^t dt' \hat{H}_I(t')\right).$$

Mit diesem Zeitentwicklungsoperator kann jetzt unter Verwendung der Gleichung (2.1) die Übergangsamplitude berechnet werden, also

$$\begin{aligned} A_{i \rightarrow f} &= \langle f | \hat{U}(t - t_i) | i \rangle \\ &\approx \langle f | e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)} | i \rangle - \langle f | e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)} \frac{i}{\hbar} \int_{t_i}^t dt' \hat{H}_I(t') | i \rangle. \end{aligned}$$

Gehören die Zustände zu verschiedenen Energieniveaus E_i, E_f , gilt

$$\begin{aligned} A_{i \rightarrow f} &= -e^{-\frac{i}{\hbar} E_f(t-t_i)} \frac{i}{\hbar} \int_{t_i}^t dt' \langle f | \hat{H}_I(t') | i \rangle \\ &= -e^{-\frac{i}{\hbar} E_f(t-t_i)} \frac{i}{\hbar} \int_{t_i}^t dt' \langle f | \hat{H}_I | i \rangle e^{-\frac{i}{\hbar} (E_i - E_f)(t' - t_i)} . \end{aligned}$$

Die Übergangswahrscheinlichkeit ergibt sich aus dem Betragsquadrat

$$P_{i \rightarrow f}(t - t_i) = \left| A_{i \rightarrow f}(t - t_i) \right|^2 = \frac{\left| \langle f | \hat{H}_I | i \rangle \right|^2}{\hbar^2} \left| \int_{t_i}^t dt' e^{-\frac{i}{\hbar} (E_i - E_f)t'} \right|^2 .$$

Nun kann eine Übergangsrate berechnet werden. Eine Rate ist hier wie in der klassischen Mechanik zu verstehen. Die Geschwindigkeit ist die Rate der Veränderung des Ortes etc., welche sich mathematisch in der Ableitung nach der Zeit widerspiegelt. Des weiteren wird $t_i \rightarrow -\infty$ geschickt, und der Zeitpunkt der Messung gegen $t \rightarrow \infty$. Es ergibt sich:

$$\frac{d}{dt} P_{i \rightarrow f}(t - t_i) = \frac{\left| \langle f | \hat{H}_I | i \rangle \right|^2}{\hbar^2} 2\pi\delta\left(\frac{E_i - E_f}{\hbar}\right) = \gamma_{i \rightarrow f} \quad (2.2)$$

Dies entspricht Fermis goldener Regel (siehe Ref. [9])! Eine ausführliche Rechnung ist im Anhang A.1 zu finden. Das bedeutet nun, dass eine Rate in Verbindung mit der Ableitung der Übergangswahrscheinlichkeit konsistent ist und wie folgt definiert werden kann:

$$\gamma_{i \rightarrow f} = \lim_{-t_i, t \rightarrow \infty} \frac{dP_{i \rightarrow f}}{dt}$$

Außerdem ist nicht die Übergangswahrscheinlichkeit in einen konkreten Zustand über zu gehen von Interesse, sondern aus diesen in einen beliebigen Zustand zu zerfallen. Die Wahrscheinlichkeit davon ist dann die Summe der Übergangswahrscheinlichkeiten über alle finalen Zustände

$$P_f = \sum_f P_{i \rightarrow f} ,$$

sodass analog eine Zerfallsrate definiert werden kann:

Zerfallsrate

$$\gamma = \lim_{-t_i, t \rightarrow \infty} \frac{dP_f}{dt} \quad (2.3)$$

Das ist die zentrale Größe der vorliegenden Arbeit. Sie beschreibt wie groß die Rate eines quantenmechanischen Systems ist, aus einem Anfangszustand in einen beliebigen anderen Zustand zu zerfallen. In Kapitel 3 werden die Bezeichnungen Zerfallsrate und Dissipationsrate synonym verwendet. Gemeint ist hier, dass Energie aus dem Atom in das E-Feld dissipiert.

Eine Zerfallsrate ist ein konkreter Fall einer Dissipationsrate. Für das weitere Vorgehen wird angenommen, dass das System vollständig zerfällt, also $P_f = 1$ und $P_i = 0$. $|i\rangle, |f\rangle$ sind immer noch Energieeigenzustände von \hat{H}_0 , sodass gilt

$$\begin{aligned} P_{i \rightarrow f}(t) &= |A_{i \rightarrow f}(t)|^2 \approx \frac{1}{\hbar^2} \left| \int_{t_i}^t dt' \langle f | \hat{H}_I(t') | i \rangle \right|^2 \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_i}^t dt' \int_{t_i}^t dt'' \langle i | \hat{H}_I(t') | f \rangle \langle f | \hat{H}_I(t'') | i \rangle, \end{aligned}$$

folglich ist

$$\begin{aligned} P_f &= \sum_f P_{i \rightarrow f}(t) \approx \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_i}^t dt' \int_{t_i}^t dt'' \langle i | \hat{H}_I(t') \left(\sum_f |f\rangle \langle f| \right) \hat{H}_I(t'') | i \rangle \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_i}^t dt' \int_{t_i}^t dt'' \langle i | \hat{H}_I(t') \underbrace{\left(\sum_f |f\rangle \langle f| + |i\rangle \langle i| \right)}_{=1} \hat{H}_I(t'') | i \rangle \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{t_i}^t dt' \int_{t_i}^t dt'' \langle i | \hat{H}_I(t') \hat{H}_I(t'') | i \rangle. \end{aligned}$$

Da $\langle i | \hat{H}_I(t) | i \rangle = 0$, kann in der obigen Summe der finalen Zustände der anfängliche Zustand hinzugefügt werden. Da diese Zustände Energieeigenzustände sind, also eine vollständige Basis des Hilbert-Raumes bilden, ist ihre Summe 1. Das Ergebnis ist ein Ausdruck, der unabhängig der finalen Zustände ist.

Um die Zerfallsrate zu erhalten, wird die Ableitung nach der Zeit von der Übergangswahrscheinlichkeit berechnet, also

$$\frac{d}{dt} P_f(t) = \frac{2}{\hbar^2} \int_{t_i}^t dt' \operatorname{Re} \left[\langle i | \hat{H}_I(t) \hat{H}_I(t') | i \rangle \right].$$

Dieser Ausdruck kann jetzt noch für gemischte Energieeigenzustände verallgemeinert werden, indem die Mittelwertbildung durch das Spurbilden über den Dichteoperator $\hat{\rho} = \sum_i |i\rangle \langle i|$ ersetzt wird, sodass

$$\frac{d}{dt} P_f(t) = \frac{2}{\hbar^2} \int_{t_i}^t dt' \operatorname{Re} \left[\operatorname{tr} \left(\hat{H}_I(t) \hat{H}_I(t') \hat{\rho} \right) \right] \equiv \frac{2}{\hbar^2} \int_{t_i}^t dt' \operatorname{Re} \left[\left\langle \hat{H}_I(t) \hat{H}_I(t') \right\rangle \right]. \quad (2.4)$$

2.2 Dipolapproximation des Atoms

Ähnlich wie bei Abschnitt 1.2 wird das Atom als Dipol im E-Feld genähert. Bei optischen Übergängen ist das elektrische Dipolmoment dominant gegenüber dem magnetischen, sodass dieses vernachlässigt wird. Das Potential eines solchen Dipols ist in der klassischen Physik durch

$-\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{x}_A)$ gegeben (A steht für Atom). Abweichend davon wird in der Quantenfeldtheorie der Status von Vektoren zu Operatoren erhoben. Damit entspricht der Interaktionshamiltonian $\hat{H}_I = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{x}_A)$. Hierbei ist der Hilbert-Raum \mathcal{H} das Tensorprodukt¹ zwischen dem des Atoms und dem des Feldes $\mathcal{H}_A \otimes \mathcal{H}_F$ (F steht für Feld). Der Dipol-Operator ergibt sich aus einem konkreten Modell des Atoms und hat die Form $\hat{\mathbf{d}} \otimes \mathbb{1}_F$. Der Operator des Feldes wird durch die sogenannte zweite Quantisierung berechnet und hat die Form $\mathbb{1}_A \otimes \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{x}_A)$.

Wie schon der Hilbert-Raum wird auch der nicht wechselwirkende Hamilton-Operator in zwei geteilt $\hat{H}_0 = \hat{H}_{0,A} \otimes \mathbb{1}_F + \mathbb{1}_A \otimes \hat{H}_{0,F}$. Die $\mathbb{1}$ wird im Folgendem nicht mehr notiert, da aus der Bezeichnung oder dem Kontext klar hervorgeht, was gemeint ist. Es gilt, dass alle Operatoren zu verschiedenen Hilbert-Räumen kommutieren, also z. B. $[\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{x}_A), \hat{\mathbf{d}}] = 0$. Darüber hinaus soll der Dichteoperator in ein einfaches Produkt zerfallen $\hat{\rho} = \hat{\rho}_A \otimes \hat{\rho}_F$ und das Gesamtsystem stationär sein. Für die Rechnung wird die Leibniz-Regel benutzt, sodass sich ergibt

$$\begin{aligned} \dot{\hat{\rho}} &= -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\rho}] = [\hat{H}_{0,A}, \hat{\rho}_A] \otimes \hat{\rho}_F + \hat{\rho}_A \otimes [\hat{H}_{0,F}, \hat{\rho}_F] \stackrel{!}{=} 0 \\ \Leftrightarrow [\hat{H}_{0,A}, \hat{\rho}_A] &= 0 \quad \text{und} \quad [\hat{H}_{0,F}, \hat{\rho}_F] = 0. \end{aligned}$$

Dies sind viel diskutierte Bedingungen, welche physikalisch intuitiv sind, aber beachtet werden müssen, denn sie treffen Aussagen über den anfänglichen Zustand vom Atom, als auch dem Feld. Diese Annahmen erlauben es, den Zeitentwicklungsoperator bezüglich des ungestörten Hamiltonians und den Dichteoperator zu vertauschen. Damit sind alle Mittel vorhanden, um weiterzurechnen. Hier noch einmal ein Blick auf die Zeitentwicklung:

$$\begin{aligned} \hat{H}_I(t) &= e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0(t-t_i)} \hat{H}_I e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_0(t-t_i)} \\ &= - \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,A}(t-t_i)} \hat{\mathbf{d}} e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,A}(t-t_i)} \right) \cdot \left(e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,F}(t-t_i)} \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{x}_A) e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,F}(t-t_i)} \right) \\ &= -\hat{\mathbf{d}}(t) \cdot \hat{\mathbf{E}}(\mathbf{x}_A)(t). \end{aligned}$$

Eine solche Separation des Operators des Feldes und des Atoms lässt sich auch für den Erwartungswert des Störterms (2.4) durchführen, indem auf Teilspurbildung zurückgegriffen wird

$$\begin{aligned} \langle \hat{H}_I(t) \hat{H}_I(t') \rangle &= \langle \hat{\mathbf{d}}(t) \cdot \hat{\mathbf{E}}(t) \hat{\mathbf{d}}(t') \cdot \hat{\mathbf{E}}(t') \rangle = \langle \hat{d}_i(t) \hat{E}_i(t) \hat{d}_j(t') \hat{E}_j(t') \rangle \\ &= \langle \hat{d}_j(t) \hat{d}_i(t') \rangle_A^T \langle \hat{E}_i(t) \hat{E}_j(t') \rangle_F = \text{Tr} \left[\langle \hat{\mathbf{d}}(t) \hat{\mathbf{d}}(t') \rangle_A^T \langle \hat{\mathbf{E}}(t) \hat{\mathbf{E}}(t') \rangle_F \right], \end{aligned}$$

wobei die Einsteinsche Summenkonvention verwendet wurde. Es sei daran erinnert, dass die Ausdrücke $\hat{\mathbf{d}}(t) \hat{\mathbf{d}}(t')$ und $\hat{\mathbf{E}}(t) \hat{\mathbf{E}}(t')$ Dyaden sind. Diese zwei Matrizen können angepasst werden, indem die Vertauschbarkeit des Hamilton-Operators und des Dichteoperators und die Zyklizität

¹Für ein Verständnis, warum das Tensorprodukt eine natürliche Formulierung für die Kombination von Quantensystemen ist, wird auf Ref. [10] verwiesen.

der Spur benutzt wird

$$\begin{aligned}\langle \hat{\mathbf{X}}(t)\hat{\mathbf{X}}(t') \rangle &= \text{tr} \left[e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t'-t_i)} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)} \hat{\mathbf{X}} e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t_i)} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t'-t_i)} \hat{\mathbf{X}} \hat{\rho} \right] \\ &= \text{tr} \left[e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{\mathbf{X}} e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0\tau} \hat{\mathbf{X}} \hat{\rho} \right] = \langle \hat{\mathbf{X}}(\tau)\hat{\mathbf{X}}(0) \rangle .\end{aligned}$$

Dabei ist $\tau = t' - t$. Nun wird der Störterm weiter umgeformt zu

$$\begin{aligned}\langle \hat{H}_I(t)\hat{H}_I(t') \rangle &= \text{Tr} \left[\left\langle \hat{d}_i(t)\hat{d}_j(t') \right\rangle_{\text{A}}^T \left\langle \hat{E}_i(t)\hat{E}_j(t') \right\rangle_{\text{F}} \right] \\ &= \text{Tr} \left[\left\langle \hat{d}_i(\tau)\hat{d}_j(0) \right\rangle_{\text{A}}^T \left\langle \hat{E}_i(\tau)\hat{E}_j(0) \right\rangle_{\text{F}} \right] \\ &= \text{Tr} \left[\underline{C}_{\text{A}}^T(\tau)\underline{C}_{\text{F}}(\tau) \right] .\end{aligned}$$

wobei nun die Zwei-Punkt-Korrelationsfunktionen

$$\underline{C}(\tau)_{\text{A}} = \langle \hat{\mathbf{d}}(\tau)\hat{\mathbf{d}}(0) \rangle \quad \text{und} \quad \underline{C}(\tau)_{\text{F}} = \langle \hat{\mathbf{E}}(\tau)\hat{\mathbf{E}}(0) \rangle$$

eingeführt wurden. Um den Realteil in 2.4 zu berechnen, wird eine Symmetrie der Korrelationsfunktionen genutzt

$$\langle \hat{H}_I(t)\hat{H}_I(t') \rangle^* = \langle \hat{H}_I(t')\hat{H}_I(t) \rangle = \text{Tr} \left[\underline{C}_{\text{A}}^T(-\tau)\underline{C}_{\text{F}}(-\tau) \right] .$$

Einsetzen in (2.4) ergibt

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}P_I(t) &= \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{t-t_i} d\tau \left(\text{Tr} \left[\underline{C}_{\text{A}}^T(\tau)\underline{C}_{\text{F}}(\tau) \right] + \text{Tr} \left[\underline{C}_{\text{A}}^T(-\tau)\underline{C}_{\text{F}}(-\tau) \right] \right) \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{-(t-t_i)}^{t-t_i} d\tau \text{Tr} \left[\underline{C}_{\text{A}}^T(\tau)\underline{C}_{\text{F}}(\tau) \right] .\end{aligned}$$

Der Ausdruck wird weiter bearbeitet, sodass das Quanten-Fluktuations-Dissipations-Theorem verwendet werden kann (siehe Abschnitt 2.3). Bei Verwendung der Fouriertransformierten

$$\underline{C}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \underline{S}(\omega) e^{-i\omega\tau} \Rightarrow \underline{S}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \underline{C}(\omega) e^{i\omega\tau}$$

und den Annahmen, dass der anfängliche Zustand zur Zeit $t_i \rightarrow -\infty$ präpariert wurde und die Messung zum Zeitpunkt $t \rightarrow \infty$ stattfindet, gilt

$$\begin{aligned}\gamma &= \lim_{-t_i, t \rightarrow \infty} \frac{dP_t}{dt} = \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \operatorname{Tr} \left[\underline{C}_A^T(\tau) \underline{C}_F(\tau) \right] \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \operatorname{Tr} \left[\underline{S}_A^T(\omega) \underline{S}_F(\omega') \right] e^{i(\omega+\omega')\tau} \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \delta(\omega + \omega') \operatorname{Tr} \left[\underline{S}_A^T(\omega) \underline{S}_F(\omega') \right] .\end{aligned}$$

Zerfallsrate in Dipolapproximation

$$\gamma = \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \operatorname{Tr} \left[\underline{S}_A^T(-\omega) \underline{S}_F(\omega) \right] \quad (2.5)$$

Die nächsten beiden Kapitel beschäftigen sich damit, die beiden obigen Matrizen auszurechnen.

2.3 Quanten-Fluktuations-Dissipations-Theorem

An dieser Stelle wird von Korrelationsfunktionen gesprochen, welche zudem noch fouriertransformiert sind. Wieso das ganze Umformen? Es stellt sich die Frage, ob mit Fermis goldener Regel solche Zerfallsraten berechnet werden können. Die Schwierigkeit liegt im Berechnen des Übergangsmatrixelements $\langle f | \hat{H}_I | i \rangle$. Nur für den Fall ohne Material werden Fockzustände und die Wirkung der Auf- und Absteigeoperatoren auf diese benötigt, sodass ein wohldefinierter Grundzustand entsteht (siehe Ref. [11]). Sobald aber ein Material in die Umgebung gebracht wird, ist die Untersuchung hochgradig nicht trivial, da eine veränderter Grundzustand und Auf- und Absteigeoperatoren auftreten. Aus diesem Grund wird sich hier mit einem Ergebnis der Linear-Response Theorie geholfen, dem Quanten-Fluktuations-Dissipations-Theorem (QFDT)². Voraussetzung für dieses ist, dass sich das System zu Beginn im thermischen Gleichgewicht befindet, sodass der Dichte-Operator des kanonischen Ensembles zur Beschreibung genutzt wird

$$\hat{\rho}_{0,F} = \frac{\exp(-\beta \hat{H}_0)}{\operatorname{Tr} \left[\exp(-\beta \hat{H}_0) \right]} ,$$

mit $\beta = \frac{1}{k_B T}$. Wird das System nun durch H_I gestört, ist es möglich die Zeitentwicklung des Dichteoperators ähnlich wie den Zeitentwicklungsoperator in der Störung zu entwickeln. Daraus ergeben sich dann direkt Störterme in den Erwartungswerten von Operatoren, wie z. B. dem E-Feld

$$\langle \hat{\mathbf{E}}(t) \rangle \approx \langle \hat{\mathbf{E}}(t) \rangle_{\hat{\rho}_{0,F}} + \langle \delta \hat{\mathbf{E}}(t) \rangle ,$$

²Siehe auch Ref. [12]

wobei

$$\langle \delta \hat{\mathbf{E}}(t) \rangle = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \left\langle \left[\hat{\mathbf{E}}(t), \hat{\mathbf{E}}(t') \right] \right\rangle_{\hat{\rho}_{0,F}} \mathbf{j}(t') .$$

Es stellt sich heraus, dass die Fouriertransformierte des Störterms eng mit der Greenschen Funktion verknüpft werden kann, also

$$\langle \delta \hat{\mathbf{E}}(\omega) \rangle = \underline{G}(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega) \mathbf{j}(\omega) .$$

Durch obige Gleichung kann die Greensche Funktion eng mit der Zwei-Punkt-Korrelationsfunktion gebracht werden, sodass sich ergibt

$$\underline{S}_F(\omega) = \frac{\hbar}{\pi} \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}} \text{Im} [\underline{G}(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega)] = \frac{\hbar}{\pi} (n(\omega) + 1) \text{Im} [\underline{G}(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega)] ,$$

mit $n(\omega) = \left(e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1 \right)^{-1}$. Dies ist das QFDT für Felder. Eingesetzt in (2.5) ergibt sich

$$\gamma = \frac{2}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega (n(\omega) + 1) \text{Tr} \left[\underline{S}_A^T(-\omega) \underline{G}_I(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega) \right] . \quad (2.6)$$

2.4 Das Zwei-Zustand-System

Das für die vorliegende Arbeit verwendete Atommodell³ entspricht einem nicht relativistischen Einteilchenproblem, der Schrödinger-Gleichung. Beim Lösen der Schrödinger-Gleichung des Wasserstoffatoms mit einem Elektron gibt es unendlich viele Energie-Eigenzustände des Systems. Dies gilt für alle Atome. Darüber hinaus besitzen alle Atome eine Radialsymmetrie des Hamiltonians und die Wellenfunktion lässt sich wie beim Wasserstoffatom in einen Radialanteil und einen Winkelanteil separieren. Der Radialanteil kann hierbei deutlich komplexer als der eines Wasserstoffatoms werden. Ein Beispiel ist ein Atom, modelliert durch das Klapisch-Potential.

Bei der Betrachtung zweier Zustände, die Energien besitzen, die beim vorliegenden System relevant sind, werden andere Zustände in der Hoffnung, dass sie die Dynamik des Systems nicht beeinflussen, vernachlässigt. In unserem Beispiel bedeutet dies, dass das Atom sich zu Beginn in einem Anfangszustand höherer Energie befindet und dann in ein tieferliegendes Energieniveau zerfällt. Die Wahrscheinlichkeit, in irgendein anderes Energie-Niveau zu zerfallen, ist sehr klein. Konkret ist später bei der Berechnung der Übergang vom $5^2P_{\frac{1}{2}} \rightarrow 5^2S_{\frac{1}{2}}$ des Rubidium Atoms gemeint. Es handelt sich bei diesem Vorgehen um eine sehr starke Vereinfachung des Systems, die zu interessanten Eigenschaften eben dieses führt, wie sich später zeigen wird. Die höher-energetische Eigenfunktion wird mit „excited-state“ $|e\rangle$, die nieder-energetische mit

³Siehe auch Ref. [13]

„ground-state“ $|g\rangle$ benannt⁴. Ein allgemeiner Zustand hat also die Form

$$|\psi\rangle = c_e |e\rangle + c_g |g\rangle$$

mit komplexen Koeffizienten c_e, c_g . Mit $|e\rangle$ und $|g\rangle$ als Basis ist das Zwei-Zustand-System ein \mathbb{C}^2 -Hilbert-Raum. In diesem ist der Hamiltonian $H_{A,0} \in \mathbb{C}_{2 \times 2}$

$$H_{0,A} = \begin{pmatrix} E_e & 0 \\ 0 & E_g \end{pmatrix}.$$

Eine Basis für alle hermiteschen Operatoren ist gegeben durch z. B. die Pauli-Matrizen

$$\begin{aligned} \mathbb{1} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}; \quad \sigma_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \\ \sigma_+ &= \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}; \quad \sigma_- = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Die Operatoren σ_+ und σ_- sind die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren im Zwei-Zustands-System. Der Hamiltonian lässt sich dann schreiben als

$$\begin{aligned} H_{0,A} &= \begin{pmatrix} E_e & 0 \\ 0 & E_g \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} E_e + E_g + (E_e - E_g) & 0 \\ 0 & E_e + E_g - (E_e - E_g) \end{pmatrix} \\ &= \frac{\hbar}{2} \omega_{eg} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} + \mathbb{1} \frac{E_e + E_g}{2}, \end{aligned}$$

wobei $\omega_{eg} = \frac{E_e - E_g}{\hbar}$. Der letzte Term ist eine konstante Verschiebung der Energie um $\frac{E_e + E_g}{2}$, der von der Eigenwertgleichung abgezogen werden kann, denn konstante Verschiebungen ändern weder die Eigenwerte noch die Eigenvektoren, sodass keine physikalischen Größen beeinflusst werden. Der Hamiltonian ergibt sich dann zu:

Hamiltonian eines Zwei-Zustand-Systems

$$\hat{H}_{0,A} = \frac{\hbar}{2} \omega_{eg} \hat{\sigma}_3 \quad (2.7)$$

2.4.1 Dipol-Operator eines Zwei-Zustand-Systems

Um den Dipol-Operator zu bestimmen wird, vom klassischen Dipolmoment und vom Korrespondenzprinzip ausgegangen. Es gilt: $\psi(\mathbf{x}) = \langle \mathbf{x} | \psi \rangle$. Wichtig zu unterscheiden ist noch die Ladungsdichte ρ_{Ladung} von der Ortsdichte ρ_{Ort} . Hier gilt die Beziehung⁵ $\rho_{\text{Ladung}} = q \rho_{\text{Ort}}$,

⁴Hier werden nicht-degenerierte Energieniveaus vorausgesetzt.

⁵Dies ist eine heuristische Herleitung. Für z. B. eine Ladungsverteilung mit Vorzeichenwechsel kann diese Beziehung nicht angewandt werden.

wobei q die Ladung ist

$$\mathbf{d} = \int_V dV \mathbf{x} \rho_{\text{Ladung}} = q \int_V dV \mathbf{x} \rho_{\text{Ort}} = q \int_V dV \mathbf{x} \psi(\mathbf{x}) \psi^*(\mathbf{x}) = \langle \psi | q \hat{\mathbf{x}} | \psi \rangle .$$

Demzufolge ist der assoziierte Operator in der Quantenmechanik $\hat{\mathbf{d}} = q \hat{\mathbf{x}}$.

In einem Zwei-Zustand-System ist für einen allgemeinen Zustand der Mittelwert des Dipol-Operators gegeben durch

$$\langle \Psi | \hat{\mathbf{d}} | \Psi \rangle = |c_e|^2 \langle e | q \hat{\mathbf{x}} | e \rangle + c_e^* c_g \langle e | q \hat{\mathbf{x}} | g \rangle + c_g^* c_e \langle g | q \hat{\mathbf{x}} | e \rangle + |c_g|^2 \langle g | q \hat{\mathbf{x}} | g \rangle .$$

Wie bereits erwähnt, teilt sich die Lösung in einen Radial- und einen Winkelanteil auf. Das bedeutet, dass der Winkelanteil durch die Kugelflächenfunktionen beschrieben werden kann. Für diese gilt nun

- bei einem Übergang von $\mathbf{x} \rightarrow -\mathbf{x}$, also $(r, \theta, \phi) \rightarrow (r, \pi - \theta, \pi + \phi)$

$$Y_{lm}(\pi - \theta, \pi + \phi) = (-1)^l Y_{lm}(\theta, \phi) .$$

- für die komplexe Konjugation

$$Y_{l,-m} = (-1)^m Y_{lm}^*(\theta, \phi) .$$

Somit verschwinden $\langle g | q \mathbf{x} | g \rangle = \langle e | q \mathbf{x} | e \rangle = 0$. Es gibt also nur ein Dipolmoment, wenn das Produkt $c_e c_g^* \neq 0$, also der Zustand eine Superposition des angeregten und Grundzustands ist. Mit Einführen des Matrixelements $\mathbf{d} = \langle g | q \mathbf{x} | e \rangle$ ergibt sich für den Mittelwert

$$\langle \psi | \hat{\mathbf{d}} | \psi \rangle = c_e c_g^* \mathbf{d} + c_g c_e^* \mathbf{d}^* = \langle \psi | (\sigma_- \mathbf{d}^* + \sigma_+ \mathbf{d}) | \psi \rangle .$$

Das gilt für beliebige Zustände $|\psi\rangle$, sodass sich der Dipol-Operator schreiben lässt als

$$\hat{\mathbf{d}} = \sigma_+ \mathbf{d} + \sigma_- \mathbf{d}^* = \hat{\mathbf{b}}^\dagger + \hat{\mathbf{b}} ,$$

wobei die Konjugation zeilenweise zu verstehen ist. Nun folgt die Betrachtung der Zeitentwicklung von $\hat{\mathbf{b}}$: Die Zeitentwicklung eines Operators ist mit Hilfe des Zeitentwicklungsoperators $\hat{U}(t - t_i)$ von der Form: $\hat{\mathbf{b}}(t) = \hat{U}^\dagger(t - t_i) \hat{\mathbf{b}} \hat{U}(t - t_i)$. Da der ungestörte Hamiltonian zeitunabhängig ist ergibt sich

$$\hat{U}(t - t_i) = e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,A}(t-t_i)} \quad \Rightarrow \quad \hat{\mathbf{b}}(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,A}(t-t_i)} \hat{\mathbf{b}}(0) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,A}(t-t_i)} .$$

Es wird nun eine Differentialgleichung für diesen aufgestellt

$$\frac{d}{dt} \hat{\mathbf{b}}(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,A}(t-t_i)} \frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}_{0,A}, \hat{\mathbf{b}}(0) \right] e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{0,A}(t-t_i)} .$$

In konkreten Fall des Dipoloperators ergibt sich also

$$\frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{0,A}, \hat{\mathbf{b}}(0)] = \frac{i\omega_{eg}}{2} [\hat{\sigma}_3, \hat{\sigma}_-] \mathbf{d}^* = -i\omega_{eg} \hat{\sigma}_- \mathbf{d}^*,$$

sodass

$$\frac{d}{dt} \hat{\mathbf{b}}(t) = -i\omega_{eg} \hat{\mathbf{b}}(t).$$

Damit stellt sich die Zeitentwicklung des Dipoloperators wie folgt dar:

$$\hat{\mathbf{d}}(t) = \hat{\mathbf{b}} e^{-i\omega_{eg}t} + \hat{\mathbf{b}}^\dagger e^{i\omega_{eg}t}. \quad (2.8)$$

Diese Zeitentwicklung eines Operators ist deckungsgleich mit der der Operatoren des Harmonischen Oszillators, wie z. B. Auf-/Absteige-, Ort- und Impuls-Operatoren. Das, was das hier verwendete System spezifiziert, sind die Kommutator-Relationen von $\hat{\mathbf{b}}$ und $\hat{\mathbf{b}}^\dagger$. Die folgende Rechnung kann also auch für andere Systeme verwendet werden. Gleichung (2.8) kann noch weiter bearbeitet werden zu

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{d}} = \hat{\mathbf{d}}(0) = \hat{\mathbf{b}} + \hat{\mathbf{b}}^\dagger \quad \dot{\hat{\mathbf{d}}} \equiv \dot{\hat{\mathbf{d}}}(0) = -i\omega_{eg} \hat{\mathbf{b}} + i\omega_{eg} \hat{\mathbf{b}}^\dagger &\Leftrightarrow i \frac{\dot{\hat{\mathbf{d}}}}{\omega_{eg}} = \hat{\mathbf{b}} - \hat{\mathbf{b}}^\dagger \\ \Rightarrow \quad \hat{\mathbf{b}} = \frac{1}{2} \left(\hat{\mathbf{d}} + i \frac{\dot{\hat{\mathbf{d}}}}{\omega_{eg}} \right). \end{aligned}$$

Bei Nutzung von $\dot{\hat{\mathbf{d}}} = \dot{\hat{\mathbf{d}}}^\dagger$ gilt zudem

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{d}}(t) &= \frac{1}{2} \left(\hat{\mathbf{d}} + i \frac{\dot{\hat{\mathbf{d}}}}{\omega_{eg}} \right) e^{-i\omega_{eg}t} + \frac{1}{2} \left(\hat{\mathbf{d}} - i \frac{\dot{\hat{\mathbf{d}}}}{\omega_{eg}} \right) e^{i\omega_{eg}t} \\ &= \hat{\mathbf{d}} \cos(\omega_{eg}t) + \frac{\dot{\hat{\mathbf{d}}}}{\omega_{eg}} \sin(\omega_{eg}t). \end{aligned}$$

Eingesetzt in die Matrix $\underline{C}_A(\tau)$ folgt, dass

$$\underline{C}_A(\tau) = \langle \hat{\mathbf{d}}(\tau) \hat{\mathbf{d}} \rangle = \langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle \cos(\omega_{eg}\tau) + \langle \dot{\hat{\mathbf{d}}} \hat{\mathbf{d}} \rangle \frac{\sin(\omega_{eg}\tau)}{\omega_{eg}}.$$

Auf die Fouriertransformation wird zum jetzigen Zeitpunkt verzichtet. Stattdessen wird die folgende Symmetrieeigenschaft der adjungierten Matrix $\underline{C}_A(\tau)$ ausgenutzt. Unter Verwendung der Zyklizität der Spur, $\text{tr}[\hat{x}]^* = \text{tr}[\hat{x}^\dagger]$ und dass der Hamiltonian mit dem Dichteoperator kommutiert, gilt

$$\left(\underline{C}_A^\dagger \right)_{ij}(\tau) = \langle \hat{\mathbf{d}}(\tau) \hat{\mathbf{d}}(0) \rangle_{ij}^\dagger = \text{tr} \left[\left(\hat{d}_j(\tau) \hat{d}_i(0) \hat{\rho}_A \right)^\dagger \right] = \text{tr} \left[\hat{d}_j(-\tau) \hat{d}_i(0) \hat{\rho}_A \right] = (\underline{C}_A)_{ij}(-\tau).$$

Unter Verwendung der Symmetrie $\underline{C}_A(\tau) = \underline{C}_A^\dagger(-\tau)$ muss gelten

$$\begin{aligned}\underline{C}_A(-\tau)^\dagger &= \langle \hat{\mathbf{d}}\hat{\mathbf{d}} \rangle \cos(\omega_{eg}\tau) - \langle \dot{\hat{\mathbf{d}}}\hat{\mathbf{d}} \rangle^\dagger \frac{\sin(\omega_{eg}\tau)}{\omega_{eg}} \\ &= \langle \hat{\mathbf{d}}\hat{\mathbf{d}} \rangle \cos(\omega_{eg}\tau) - \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle \frac{\sin(\omega_{eg}\tau)}{\omega_{eg}} \stackrel{!}{=} \underline{C}_A(\tau) .\end{aligned}$$

Das gilt nur wenn

$$\langle \dot{\hat{\mathbf{d}}}\hat{\mathbf{d}} \rangle = -\langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle . \quad (2.9)$$

Nun wird der Term $\langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle$ in einen symmetrischen und einen antisymmetrischen Term aufgespalten

$$\begin{aligned}\langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle_{ij} &= \langle \hat{d}_i\dot{\hat{d}}_j \rangle = \frac{1}{2} \langle \hat{d}_i\dot{\hat{d}}_j + \hat{d}_j\dot{\hat{d}}_i \rangle + \frac{1}{2} \langle \hat{d}_i\dot{\hat{d}}_j - \hat{d}_j\dot{\hat{d}}_i \rangle \\ &= \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle_{ij}^s + \frac{i}{2} \langle \epsilon_{knm} \hat{\mathbf{d}}_n \dot{\hat{\mathbf{d}}}_m \rangle (-i\epsilon_{kij}) \quad \left| \text{denn } \epsilon_{kij}\epsilon_{knm} = \delta_{in}\delta_{jm} - \delta_{im}\delta_{jn} \right. \\ \Rightarrow \quad \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle &= \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^s + \frac{i}{2} \langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle \cdot \underline{L} = \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^s + \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^{as} .\end{aligned} \quad (2.10)$$

wobei die Generatoren der Rotation $(\underline{L}_k)_{ij} = -i\epsilon_{kij}$ benutzt werden. Dabei wird keine Annahme über die Matrix getroffen, das Vorgehen ist also auf jede beliebige Matrix anwendbar. Interessant ist dabei der antisymmetrische Term, dessen konkrete Form mit dem Drehimpuls des Atoms verknüpft ist

$$\langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle = q^2 \langle \hat{\mathbf{x}} \times \dot{\hat{\mathbf{x}}} \rangle \propto \langle \hat{\mathbf{L}} \rangle . \quad (2.11)$$

Unter Nutzung von (2.9) für den symmetrischen Teil kann dieser umgeschrieben werden zu

$$\langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle_{ij}^s = \frac{\langle \hat{d}_i\dot{\hat{d}}_j \rangle + \langle \hat{d}_j\dot{\hat{d}}_i \rangle}{2} = \frac{\langle \hat{d}_i\dot{\hat{d}}_j \rangle - \langle \hat{d}_j\dot{\hat{d}}_i \rangle}{2} = i \frac{\langle -i[\hat{d}_i, \dot{\hat{d}}_j] \rangle}{2} = i \frac{D_{ij}}{2} .$$

Analog gilt für den Term $\langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle$

$$\langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle = \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^s + \frac{i}{2} \langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle \cdot \underline{L} = \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^s + \langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^{as} .$$

Interessant ist hier, dass der antisymmetrische Teil einen Vektor enthält $\langle \hat{\mathbf{d}} \times \hat{\mathbf{d}} \rangle$, der in der klassischen Physik immer verschwindet, aber in der Quantenmechanik nicht verschwinden muss! Dieser Mittelwert ist stark von der Modellierung des Dipoloperators abhängig. Er wird in einem folgenden Teil der Arbeit konkret berechnet (4.4). Hier ein anderes Beispiel für ein Operator dessen Wert in der klassischen Mechanik verschwindet, aber in der Quantenmechanik in der Regel nicht verschwindet:

$$\langle \hat{\mathbf{L}} \times \hat{\mathbf{L}} \rangle \neq 0 ,$$

wobei $\hat{\mathbf{L}}$ der Drehimpulsoperator ist. Grund hierfür ist, dass $[\hat{\mathbf{L}}_i, \hat{\mathbf{L}}_j] \neq 0$ für $i \neq j$.

2.4.2 Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems

Zusammenfassend gilt also

$$\underline{C}_A(\tau) = \left(\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s + \langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^{as} \right) \cos(\omega_{eg} \tau) + \left(\langle \hat{\mathbf{d}} \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^s + \langle \hat{\mathbf{d}} \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle^{as} \right) \frac{\sin(\omega_{eg} \tau)}{\omega_{eg}} .$$

Das Resultat der Fouriertransformation des Ausdrucks in der Zeit ist

$$\begin{aligned} \underline{S}_A(\omega) = & \frac{1}{2} \left(\left[\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s + \frac{D}{2\omega_{eg}} \right] + \left[\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^{as} + \frac{\langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle \cdot \underline{L}}{2\omega_{eg}} \right] \right) \delta(\omega - \omega_{eg}) \\ & + \frac{1}{2} \left(\left[\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s + \frac{D}{2\omega_{eg}} \right] + \left[\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^{as} + \frac{\langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle \cdot \underline{L}}{2\omega_{eg}} \right] \right) \delta(\omega + \omega_{eg}) . \end{aligned} \quad (2.12)$$

Dabei sind in den eckigen Klammern jeweils der symmetrische oder antisymmetrische Anteil enthalten. Wird jetzt in die Zerfallsrate (2.6) eingesetzt, so verschwindet die Spur über den antisymmetrischen Teilen, da der Imaginär-Teil der Greenschen Funktion symmetrisch ist und die Spur über Matrizen verschiedener Symmetrie verschwindet, sodass

$$\begin{aligned} \gamma = & \frac{1}{\hbar} \left(n(\omega_{eg}) + 1 \right) \text{Tr} \left[\left(\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s - \frac{D}{2\omega_{eg}} \right) \underline{G}_I(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega_{eg}) \right] \\ & - \frac{1}{\hbar} n(\omega_{eg}) \text{Tr} \left[\left(\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s + \frac{D}{2\omega_{eg}} \right) \underline{G}_I(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, -\omega_{eg}) \right] . \end{aligned}$$

Hierbei wurde ausgenutzt, dass gilt

$$n(-\omega) = \frac{1}{e^{-\frac{\hbar\omega}{k_b T}} - 1} = \frac{e^{\frac{\hbar\omega}{k_b T}}}{1 - e^{\frac{\hbar\omega}{k_b T}}} = \frac{1}{1 - e^{\frac{\hbar\omega}{k_b T}}} - 1 = -(n(\omega) + 1) .$$

Aufgrund dessen, dass sich das System im quantenmechanischen Vakuum⁶ befindet, gilt für die Temperatur $T = 0$ und $n(\omega) = 0$, sodass

$$\gamma = \frac{1}{\hbar} \text{Tr} \left[\left(\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s - \frac{D}{2\omega_{eg}} \right) \underline{G}_I(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega_{eg}) \right] .$$

Aber zurück zum Zwei-Zustand-System: In diesem ist der Dipoloperator explizit gegeben, die oben benötigten Komponenten können somit ausgerechnet werden. Hierfür ist es günstig, den Dipoloperator in anderer Form zu schreiben. Dazu werden die Operatoren $\hat{\sigma}_1$ und $\hat{\sigma}_2$ eingeführt

$$\sigma_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} ,$$

mit der Anti- bzw. Kommutator-Relation

$$[\hat{\sigma}_i, \hat{\sigma}_j] = 2i\epsilon_{ijk}\hat{\sigma}_k \quad \text{und} \quad \{\hat{\sigma}_i, \hat{\sigma}_j\} = 2\delta_{ij}\mathbb{1} .$$

Somit gilt $\hat{\sigma}_{\pm} = \frac{\hat{\sigma}_1 \pm i\hat{\sigma}_2}{2}$. Bei Einsetzen in den Dipoloperator ergibt sich:

$$\hat{\mathbf{d}} = \hat{\sigma}_1 \frac{\mathbf{d} + \mathbf{d}^*}{2} - \hat{\sigma}_2 \frac{\mathbf{d} - \mathbf{d}^*}{2i} = \hat{\sigma}_1 \mathbf{d}^R + \hat{\sigma}_2 \mathbf{d}^I . \quad (2.13)$$

Jetzt ist der Dipol-Operator in einen Real- und einen Imaginär-Teil aufgespalten. Nun soll die Matrix $\underline{D}_{ij} = -i \left\langle \left[\hat{d}_i, \hat{d}_j \right] \right\rangle$ berechnet werden. Mit Gleichung (2.7) ergibt sich

$$\hat{\mathbf{d}} = \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_A, \hat{\mathbf{d}}] = \frac{i\mathbf{d}^R\omega_{eg}}{2} [\hat{\sigma}_3, \hat{\sigma}_1] + \frac{i\mathbf{d}^I\omega_{eg}}{2} [\hat{\sigma}_3, \hat{\sigma}_2] = -\omega_{eg} (\mathbf{d}^R\hat{\sigma}_2 - \mathbf{d}^I\hat{\sigma}_1) ,$$

sodass nun

$$-i \left[\hat{d}_i, \hat{d}_j \right] = i\omega_{eg} (\mathbf{d}^R\mathbf{d}^R [\hat{\sigma}_1, \hat{\sigma}_2] - \mathbf{d}^I\mathbf{d}^I [\hat{\sigma}_2, \hat{\sigma}_1]) = -2\omega_{eg} (\mathbf{d}^R\mathbf{d}^R + \mathbf{d}^I\mathbf{d}^I) \hat{\sigma}_3 .$$

Jetzt wird auch der symmetrischen Teil berechnet, sodass

$$\hat{\mathbf{d}}\hat{\mathbf{d}}_{ij}^s = d_i^R d_j^R \hat{\sigma}_1^2 + d_i^I d_j^I \hat{\sigma}_2^2 + \frac{d_i^R d_j^I + d_i^I d_j^R}{2} \underbrace{(\hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2 + \hat{\sigma}_2 \hat{\sigma}_1)}_{=0, \text{Antikommutator}} = d_i^R d_j^R \mathbb{1} + d_i^I d_j^I \mathbb{1} .$$

⁶Ein klassisches Vakuum kann an ein Wärmebad gekoppelt werden. Dies führt dazu, dass Photonen in diesem erzeugt werden und es sich in einem angeregtem Fock-Zustand befindet. Hier aber wird das System im Grundzustand $|0\rangle$ untersucht, sodass die Temperatur verschwinden muss.

Es gilt insgesamt

$$\begin{aligned} \left(\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s - \frac{D}{2\omega_{eg}} \right)_{ij} &= \langle d_i^R d_j^R \hat{\sigma}_1^2 + d_i^I d_j^I \hat{\sigma}_2^2 \rangle + \langle (d_i^R d_j^R + d_i^I d_j^I) \hat{\sigma}_3 \rangle \\ &= (d_i^R d_j^R + d_i^I d_j^I) \langle \mathbb{1} + \hat{\sigma}_3 \rangle . \end{aligned}$$

Unter der Annahme, dass das betrachtete Atom anfänglich im angeregten Zustand ist, sodass $\hat{\rho}_A = |e\rangle \langle e|$, ergibt sich

$$\left(\langle \hat{\mathbf{d}} \hat{\mathbf{d}} \rangle^s - \frac{D}{2\omega_{eg}} \right) = 2 (\mathbf{d}^R \mathbf{d}^R + \mathbf{d}^I \mathbf{d}^I)$$

und somit die Zerfallsrate:

Zerfallsrate im Vakuum eines Zwei-Zustand-Systems

$$\gamma = \frac{2}{\hbar} \mathbf{d}^R \cdot \underline{G}_I(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}^R + \frac{2}{\hbar} \mathbf{d}^I \cdot \underline{G}_I(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}^I \quad (2.14)$$

Eine Prüfung der Konsistenz der Gleichung ist, dass die Zerfallsrate verschwindet, sobald das Grund-Niveau als anfänglicher Zustand besetzt ist, da mit $\hat{\rho}_A = |g\rangle \langle g| \Rightarrow \langle \mathbb{1} + \hat{\sigma}_3 \rangle = 0$.

2.5 Berechnung der Zerfallsrate im Vakuum

Mit Gleichung (2.14) können Zerfallsraten des gewählten Zwei-Zustand-Systems bestimmt werden. Die Umgebung wird durch die Greensche Funktion modelliert. In den Folgenden beiden Abschnitten werden die Ergebnisse aus Ref. [14] reproduziert.

Zunächst folgt die Beschäftigung mit der einfachsten Umgebung, dem Vakuum. In Abschnitt 1.5 wurde die Greensche Funktion im Vakuum (1.34) hergeleitet. Nun wird ihr Imaginär-Teil berechnet:

$$\begin{aligned} \text{Im} [\underline{G}_{\text{Vak}}] (\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) &= \frac{\underline{G}_{\text{Vak}} - \underline{G}_{\text{Vak}}^*}{2i} \\ &= \frac{1}{8i\pi\epsilon_0} \left(\frac{\omega}{c} \right)^3 \left(e^{i\frac{\omega\rho}{c}} \left[\frac{3\mathbf{ee} - \mathbb{1}}{\left(\frac{\omega\rho}{c} \right)^3} \left(\mathbb{1} - i\frac{\omega\rho}{c} \right) + \frac{\mathbb{1} - \mathbf{ee}}{\frac{\omega\rho}{c}} \right] - e^{-i\frac{\omega\rho}{c}} \left[\frac{3\mathbf{ee} - \mathbb{1}}{\left(\frac{\omega\rho}{c} \right)^3} \left(\mathbb{1} + i\frac{\omega\rho}{c} \right) + \frac{\mathbb{1} - \mathbf{ee}}{\frac{\omega\rho}{c}} \right] \right) \\ &= \frac{1}{8i\pi\epsilon_0} \left(\frac{\omega}{c} \right)^3 \left(\underbrace{\left[e^{i\frac{\omega\rho}{c}} - e^{-i\frac{\omega\rho}{c}} \right]}_{2i \sin\left(\frac{\omega\rho}{c}\right)} \left[\frac{3\mathbf{ee} - \mathbb{1}}{\left(\frac{\omega\rho}{c} \right)^3} + \frac{\mathbb{1} - \mathbf{ee}}{\frac{\omega\rho}{c}} \right] - i\frac{\omega\rho}{c} \underbrace{\left[e^{i\frac{\omega\rho}{c}} + e^{-i\frac{\omega\rho}{c}} \right]}_{2 \cos\left(\frac{\omega\rho}{c}\right)} \frac{3\mathbf{ee} - \mathbb{1}}{\left(\frac{\omega\rho}{c} \right)^3} \right) \end{aligned}$$

$$= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{\omega}{c} \right)^3 \left(\frac{3\mathbf{ee} - \mathbb{1}}{\left(\frac{\omega\rho}{c} \right)^3} \left[\sin\left(\frac{\omega\rho}{c} \right) - \frac{\omega\rho}{c} \cos\left(\frac{\omega\rho}{c} \right) \right] + \sin\left(\frac{\omega\rho}{c} \right) \frac{\mathbb{1} - \mathbf{ee}}{\frac{\omega\rho}{c}} \right).$$

Für die spontane Zerfallsrate wird diese Funktion an der Stelle $(\mathbf{x}, \mathbf{x}, \omega)$ ausgewertet. Das wird erreicht, indem der Limes $\rho \rightarrow 0$ gezogen wird. Im hinteren Term ist der bekannte Limes $\lim_{x \rightarrow 0} \frac{\sin(x)}{x} = 1$ und im vorderen

$$\lim_{x \rightarrow 0} \frac{\sin(x) - x \cos(x)}{x^3} \stackrel{L'Hopital}{=} \lim_{x \rightarrow 0} \frac{x \sin(x)}{3x^2} = \frac{1}{3}.$$

Also ergibt sich

$$\text{Im} [G_{\text{Vak}}] (\mathbf{x}, \mathbf{x}, \omega) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{\omega}{c} \right)^3 \left(\mathbf{ee} - \frac{\mathbb{1}}{3} + \mathbb{1} - \mathbf{ee} \right) = \frac{1}{6\pi\epsilon_0} \left(\frac{\omega}{c} \right)^3 \mathbb{1}.$$

Einsetzen in die Gleichung (2.14) ergibt

$$\gamma = \frac{2}{\hbar} \mathbf{d}^{\text{R}} \cdot \underline{G}_{\text{I}}(\mathbf{x}_{\text{A}}, \mathbf{x}_{\text{A}}, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}^{\text{R}} + \frac{2}{\hbar} \mathbf{d}^{\text{I}} \cdot \underline{G}_{\text{I}}(\mathbf{x}_{\text{A}}, \mathbf{x}_{\text{A}}, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}^{\text{I}} = \frac{1}{3\pi\epsilon_0\hbar} \left(\frac{\omega}{c} \right)^3 \left[(\mathbf{d}^{\text{R}})^2 + (\mathbf{d}^{\text{I}})^2 \right].$$

Die spontane Emmision ist im Vakuum nicht verschwindend! Dies ist ein fundamentales Ergebnis der Quanten-Elektro-Dynamik. Allein mit der Schrödingergleichung lässt sich das nicht erklären. In dieser sind die Energieeigenzustände das Spektrum des Hamiltonians und somit orthogonal zueinander. Ein angeregter Zustand wird nie in einen darunterliegenden zerfallen, da es keinen Überlapp gibt. Wird aber zusätzlich das Feld quantisiert, so sind es keine Eigenzustände des gesamten Hamiltonians und somit erzeugt das quantisierte E-Feld einen Überlapp. Wie das Ergebnis oben zeigt, ist dieser Überlapp selbst für das quantenmechanische (QM) Vakuum nicht verschwindend. Dies führt zur Frage, ob das QM Vakuum tatsächlich leer ist, oder ob es Fluktuationen in diesem gibt. Und wenn es solche Fluktuationen gibt, mit welcher Energie werden sie erzeugt? Ist die Nullpunktsenergie, die beim harmonischen Oszillator errechnet wurde, vielleicht doch von Bedeutung?

2.6 Berechnung der Zerfallsrate vor einem Halbraum

Nachdem die Zerfallsrate im Vakuum berechnet wurde, wird nun der nächste Fall betrachtet, ein Halbraum. Wie schon zuvor muss jetzt der Imaginär-Teil der Greenschen Funktion berechnet werden. Hierbei ist zu beachten, dass nur der gestreute Teil neu zu berechnen ist, da die Gleichungen zur Berechnung der Zerfallsrate linear bezüglich der Greenschen-Funktion ist und somit der Vakuum-Anteil absepariert werden kann $\gamma = \gamma_{\text{Vak}} + \gamma_{\text{Streu}}$. Das Koordinatensystem und weitere Größen sind wie im Abschnitt 1.7 definiert. Die Außerdiagonalelemente haben die

folgende Form

$$\begin{aligned} \left(\underline{G}_{\text{Streu}}(\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel}, z, z', \omega) \right)_{ij} &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \left(\underline{G}_{\text{Streu}}(k_x, k_y, z, z', \omega) \right)_{ij} e^{(k_x, k_y)^T \cdot (\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel})} \\ \Rightarrow \left(\underline{G}_{\text{Streu}}(0, z, \omega) \right)_{ij} &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \left(\underline{G}_{\text{Streu}}(k_x, k_y, z, \omega) \right)_{ij} . \end{aligned}$$

Bei Anwendung der Gleichung (1.35) ergibt sich:

$$\left(\underline{G}_{\text{Streu}}(0, z, \omega) \right)_{ij} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \frac{\kappa}{2\epsilon_0} \left(r^p(\omega, k) \left(\underline{\Pi}_p \right)_{ij} + \frac{\omega^2}{c^2 \kappa^2} r^s(\omega, k) \left(\underline{\Pi}_s \right)_{ij} \right) e^{-2\kappa z} . \quad (2.15)$$

Interessant ist, dass fast alle Faktoren der zwei Integranden gerade Funktionen in \mathbf{k}_{\parallel} sind, da sie nur von dessen Betrag abhängen. Die einzigen Faktoren, die diese Eigenschaft brechen können, sind die Matrizenelemente von $\underline{\Pi}_p, \underline{\Pi}_s$. Bei Blick auf die Gleichung (1.36) wird erkennbar, dass für $i \neq j$ diese ungerade oder 0 sind, sodass der gesamte Integrand ungerade wird. Da über ein symmetrisches Intervall integriert wird, verschwinden die Außerdiagonalelemente, sodass nur noch die Diagonalelemente vorhanden bleiben, also

$$\begin{aligned} \left(\underline{G}_{\text{Streu}}(0, z, \omega) \right)_{xx} &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \frac{\kappa}{2\epsilon_0} \left(r^p(\omega, k) \left(\underline{\Pi}_p \right)_{xx} + \frac{\omega^2}{c^2 \kappa^2} r^s(\omega, k) \left(\underline{\Pi}_s \right)_{xx} \right) e^{-2\kappa z} \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \frac{\kappa}{2\epsilon_0} \left(r^p(\omega, k) \frac{k_x^2}{k^2} + \frac{\omega^2}{c^2 \kappa^2} r^s(\omega, k) \frac{k_y^2}{k^2} \right) e^{-2\kappa z} . \end{aligned}$$

Bei Wechsel zu Polarkoordinaten $k \in [0, \infty), \varphi \in [0, 2\pi)$ gilt

$$\begin{aligned} \left(\underline{G}_{\text{Streu}}(0, z, \omega) \right)_{xx} &= \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\infty} dk \frac{\kappa}{8\pi^2 \epsilon_0} \left(r^p(\omega, k) k \cos^2(\varphi) + \frac{\omega^2}{c^2 \kappa^2} r^s(\omega, k) k \sin^2(\varphi) \right) e^{-2\kappa z} \\ &= \int_0^{\infty} dk \frac{\kappa}{8\pi \epsilon_0} \left(r^p(\omega, k) k + \frac{\omega^2}{c^2 \kappa^2} r^s(\omega, k) k \right) e^{-2\kappa z} . \end{aligned} \quad (2.16)$$

Die yy -Komponente erhält man durch Umtauschen des Labels $x \leftrightarrow y$. Dadurch ändert sich in den Polarkoordinaten die Winkelabhängigkeit $\cos^2(\varphi) \leftrightarrow \sin^2(\varphi)$, deren Integral aber den gleichen Wert hat, sodass gilt $\left(\underline{G}_{\text{Streu}} \right)_{xx} = \left(\underline{G}_{\text{Streu}} \right)_{yy}$.

Nun zur zz Komponente:

$$\begin{aligned}
(\underline{G}_{\text{Streu}}(0, z, \omega))_{zz} &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \frac{\kappa}{2\epsilon_0} \left(r^p(\omega, k) (\underline{\Pi}_p)_{zz} + \frac{\omega^2}{c^2 \kappa^2} r^s(\omega, k) (\underline{\Pi}_s)_{zz} \right) e^{-2\kappa z} \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \frac{1}{2\epsilon_0} r^p(\omega, k) \frac{k^2}{\kappa} e^{-2\kappa z} \\
&= \int_0^{\infty} dk \frac{1}{4\pi\epsilon_0} r^p(\omega, k) \frac{k^3}{\kappa} e^{-2\kappa z} .
\end{aligned} \tag{2.17}$$

Aktuell gibt es ab diesem Punkt keine analytische Methode, die die weitere Berechnung wesentlich voranbringt. Die Zerfallsrate kann jetzt mit Verwendung von Gleichung (2.14) numerisch bestimmt werden:

$$\begin{aligned}
\gamma_{\text{Streu}} &= \frac{2}{\hbar} \mathbf{d}^R \cdot \underline{G}_I(\mathbf{x}_A, \mathbf{x}_A, \omega_{eg}) \cdot \mathbf{d}^R + \left(\mathbf{d}^R \leftrightarrow \mathbf{d}^I \right) \\
&= \frac{2}{\hbar} \left(\text{Im} [\underline{G}_{\text{Streu}xx}] \left[\left(d_x^R \right)^2 + \left(d_x^I \right)^2 + \left(d_y^R \right)^2 + \left(d_y^I \right)^2 \right] + \text{Im} [\underline{G}_{\text{Streu}zz}] \left[\left(d_z^R \right)^2 + \left(d_z^I \right)^2 \right] \right) .
\end{aligned} \tag{2.18}$$

Die Nahfeldnäherung

Im nächsten Schritt wird eine Asymptote betrachtet⁷. Das Atom wird sehr nah über der Platte positioniert. Dadurch, dass das Atom sehr nah an der Platte ist, kann die Retardierung gänzlich vernachlässigt werden, sodass $c \rightarrow \infty$ und somit $\frac{\omega}{c} \rightarrow 0$. Dadurch ergibt sich die Näherung

$$\kappa \approx \kappa_m \approx k .$$

Mit dieser vereinfachen sich die Reflektionskoeffizienten zu

$$r^p = \frac{\epsilon\kappa - \kappa_m}{\epsilon\kappa + \kappa_m} \approx \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1} \equiv \eta \quad r^s = \frac{\kappa - \kappa_m}{\kappa + \kappa_m} \approx 0 . \tag{2.19}$$

Beide Reflektionskoeffizienten sind nun unabhängig von \mathbf{k} und der für s-polarisierte Wellen ist vernachlässigbar im Vergleich zu dem für p-polarisiertes Licht⁸. Die Integranden vereinfachen sich somit stark zu

$$\begin{aligned}
(\underline{G}_{\text{Streu}}(0, z, \omega))_{zz} &= \int_0^{\infty} dk \frac{1}{4\pi\epsilon_0} r^p(\omega, k) \frac{k^3}{\kappa} e^{-2\kappa z} \\
&\approx \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \eta \int_0^{\infty} dk k^2 e^{-2kz} = \eta \frac{1}{16\epsilon_0 \pi z^3} .
\end{aligned}$$

⁷Siehe dazu auch Ref. [14].

⁸Wodurch es zu Reflexionen kommt wird im Abschnitt 3.1.2 näher diskutiert.

Für die beiden anderen Diagonalelemente ergibt sich

$$\begin{aligned}
 (\underline{G}_{\text{Streu}}(0, z, \omega))_{xx} &= \int_0^\infty dk \frac{\kappa}{8\pi\epsilon_0} \left(r^p(\omega, k)k + \frac{\omega^2}{c^2\kappa^2} r^s(\omega, k)k \right) e^{-2\kappa z} \\
 &\approx \frac{1}{8\pi\epsilon_0} \eta \int_0^\infty dk k^2 e^{-2\kappa z} \\
 &= \frac{1}{2} (\underline{G}_{\text{Streu}})_{zz} .
 \end{aligned} \tag{2.20}$$

Somit vereinfacht sich die Zerfallsrate im Nahfeld zu

$$\begin{aligned}
 \gamma_{\text{Streu}} &= \frac{2}{\hbar} \text{Im} [(\underline{G}_{\text{Streu}})_{zz}] \left(\frac{(d_x^{\text{R}})^2 + (d_y^{\text{R}})^2}{2} + (d_z^{\text{R}})^2 \right) + (d^{\text{R}} \leftrightarrow d^{\text{I}}) \\
 &= \frac{(d^{\text{R}})^2}{16\epsilon_0\pi\hbar z^3} \text{Im} [\eta] \left(1 + \frac{(d_z^{\text{R}})^2}{(d^{\text{R}})^2} \right) + (d^{\text{R}} \leftrightarrow d^{\text{I}}) .
 \end{aligned}$$

Um ein besseres Bild der Zerfallsrate zu erhalten, wird diese auf γ_{Vak} normiert, sodass

$$\frac{\gamma_{\text{Streu}}}{\gamma_{\text{Vak}}} = \frac{3\pi\epsilon_0\hbar}{(d^{\text{R}})^2} \left(\frac{c}{\omega} \right)^3 \frac{(d^{\text{R}})^2}{16\epsilon_0\pi\hbar z^3} \text{Im} [\eta] \left(1 + \frac{(d_z^{\text{R}})^2}{(d^{\text{R}})^2} \right) + (d^{\text{R}} \leftrightarrow d^{\text{I}}) .$$

Normierte Zerfallsrate in Nahfeldnäherung

$$\frac{\gamma_{\text{Streu}}}{\gamma_{\text{Vak}}} = \left(\frac{c}{\omega} \right)^3 \frac{3}{16} \frac{1}{z^3} \text{Im} [\eta] \left(2 + \frac{(d_z^{\text{R}})^2}{(d^{\text{R}})^2} + \frac{(d_z^{\text{I}})^2}{(d^{\text{I}})^2} \right) \tag{2.21}$$

Dieses Resultat stimmt mit dem in Ref. [14] überein. Die z - und \mathbf{d} -Abhängigkeit im Nahfeld wurde erschöpfend untersucht. Nun folgt die Begutachtung der Frequenzabhängigkeit im Nahfeld. Diese ist zur Gänze im Reflektionskoeffizienten r^p enthalten. Interessant ist z. B. die Möglichkeit, eine besonders hohe Zerfallsrate zu erzielen, deshalb werden jetzt die Pole des Reflektionskoeffizienten für p -polarisiertes Licht (2.19) untersucht.

- Im Drude-Modell gilt:

$$\epsilon + 1 = 2 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} = 0 \Rightarrow \omega_{\text{SPL}} = \sqrt{\frac{\omega_p^2}{2} - \frac{\gamma^2}{4}} .$$

- Im Lorentz-Modell gilt:

$$\epsilon + 1 = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - \omega_c^2 + i\omega\gamma} + 1 = 0$$
$$\Rightarrow \omega_{\text{SPH}} = \sqrt{\frac{\omega_p^2}{\epsilon_\infty + 1} + \omega_c^2 - \frac{\gamma^2}{4}}.$$

Die Indizes SPL/SPH werden im nächsten Kapitel erläutert.

2.7 Berechnung der Zerfallsrate vor einer Platte

Um von einer Zerfallsrate eines Halbraums zu der einer Platte zu wechseln, müssen lediglich die Reflektionskoeffizienten des Halbraums durch die einer Platte ersetzt werden. Es wurde bis jetzt keine analytische Nahfeldnäherung berechnet, aber nichtsdestotrotz kann im Nahfeld eine ähnliche Abhängigkeit des Reflektionskoeffizienten

$$r_{Pl} = \frac{r_P(1 - e^{-2\kappa d})}{1 - r_P^2 e^{-2\kappa d}} \approx \frac{\eta(1 - e^{-2\kappa d})}{1 - \eta^2 e^{-2\kappa d}}$$

erwartet werden, sodass es auch deren Pole zu untersuchen gilt. Eine ausführliche Rechnung ist im Anhang A.2 zu finden:

- Im Drude-Modell gilt:

$$\omega_{\text{SPL}} = \sqrt{\frac{\omega_p^2}{1 - \alpha_\pm} - \frac{\gamma^2}{4}}$$

mit

$$\alpha_\pm = \frac{1 \mp e^{\kappa d}}{(1 \pm e^{\kappa d})}.$$

- Im Lorentz-Modell gilt:

$$\omega_{\text{SPH}} = \sqrt{\frac{\omega_p^2}{\epsilon_\infty - \alpha_\pm} + \omega_c^2 - \frac{\gamma^2}{4}}$$

mit selbigem α_\pm .

Spontane Emission vor planaren Strukturen

Im Folgenden wird die Zerfallsrate für die in Abschnitt 1.3 diskutierten Materialmodelle dargestellt. Für die Parameter werden experimentell gemessene Werte benutzt. Variiert werden bei der Untersuchung der Abstand z , sowie die Übergangsfrequenz ω des Atoms und die Dicke d der Platte. Grundlage für die Berechnung ist Gleichung (2.18). In dieser wird das Dipolmoment als reell approximiert. Hierbei wird die Abhängigkeit der Zerfallsrate nicht beeinflusst, da das Dipolmoment nur ein Vorfaktor ist.

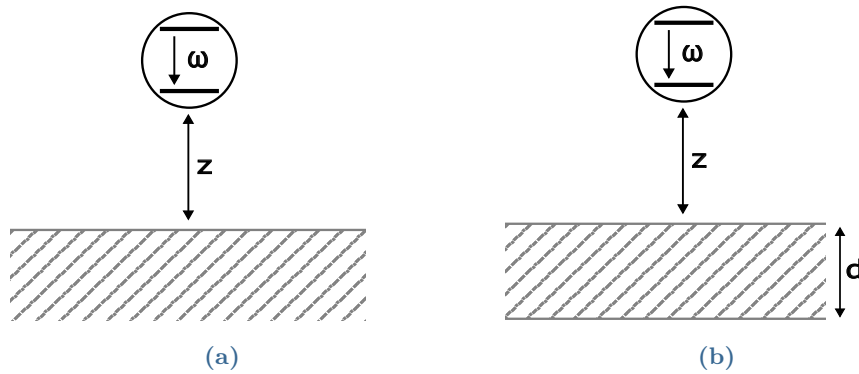


Abbildung 3.1: Versuchsaufbau bei der Berechnung der spontanen Zerfallsrate. Ein Atom wird in der Nähe eines Halbraumes (a) oder einer Platte (b) platziert und es werden die Parameter Übergangsfrequenz ω , Abstand z und Dicke d variiert.

Für das Drude-Modell, also die dielektrische Funktion aus Gleichung (1.18), wird ein Gold~Silber ähnliches Metall gewählt:

Gold~Silber	
Plasmafrequenz ω_P	9.0 eV
Dämpfung γ	30.0 meV
Oberflächen-Plasmon-Polaritonenfrequenz ω_{SPL}	6.4 eV

Tabelle 3.1: Parameter des Drude Modells. Entnommen wurden die Werte aus Ref. [15].

Für das Lorentz-Modell, also die dielektrische Funktion aus Gleichung (1.19), wird Silizium gewählt:

Silizium	
Plasmafrequenz ω_p	2.4 eV
Resonanzfrequenz ω_0	2.8 eV
Dämpfung γ	50.0 meV
ϵ_∞	12.0 eV
Oberflächen-Phononen-Polaritonfrequenz ω_{SPH}	2.8 eV

Tabelle 3.2: Parameter des Lorentz-Modells. Entnommen wurden die Werte aus Ref. [16].

Als Referenz-Atom wird das Rubidium-Atom ausgewählt. Von diesem werden folgende Parameter übernommen:

Rubidium	
Dipolmoment \mathbf{d}	$2.5 \times 10^{-29} \text{ Cm}$
Dipolmomentkomponente $\langle \mathbf{d}_i \rangle = \frac{\mathbf{d}}{\sqrt{3}}$	$1.5 \times 10^{-29} \text{ Cm}$
Übergangsfrequenz ω_R	1.6 eV

Tabelle 3.3: Parameter des Rubidium-Atoms. Entnommen wurden die Werte aus Ref. [17]

3.1 Untersuchung der Zerfallsrate vor einem Halbraum

3.1.1 Zerfallsrate vor einem Halbraum im Drude-Modell

Es wird nun sowohl ein Rubidium Atom als auch ein Atom mit gleichem Dipolmoment, aber verschiedener Übergangsfrequenz ω_{SPL} , in der Nähe eines Halbraumes platziert. Der Halbraum ist ein Gold~Silber Material, welches durch das Drude-Modell beschrieben wird. In Abbildungen 3.2a und 3.2b ist die Zerfallsrate eines Atoms in der Nähe eines Gold~Silber Halbraumes in Abhängigkeit des Abstandes z dargestellt. Die vertikale Linie, bezeichnet mit z_0 bei einem Abstand von $5nm$, ist für weitere Berechnungen relevant, bei denen der Abstand fixiert und andere Parameter verändert werden. Die x-Achse ist auf eine charakteristische Länge des Systems $\frac{c}{\omega_R}$ normiert. Da so eine unterschiedliche Normierung für verschiedene Übergangsfrequenzen entsteht, ist der Normierungsfaktor der jeweils anderen Normierung in blau bzw orange mit einer vertikalen Linie dargestellt. Die entweder orangene oder blau gestrichelte Linie ist die Nahfeldnäherung aus Gleichung (??) für ein reelles Dipolmoment

$$\frac{\gamma}{\gamma_{\text{Vak}}} = \left(\frac{c}{\omega}\right)^3 \frac{3}{16} \frac{1}{z^3} \text{Im}[\eta] \left(1 + \frac{\left(d_z^{\text{R}}\right)^2}{\left(\mathbf{d}^{\text{R}}\right)^2}\right) + 1. \quad (3.1)$$

In beiden Abbildungen ist eine Divergenz für $z \rightarrow 0$ zu erkennen. Diese kann eine Schwäche der Approximation des Materials als Kontinuum sein. In beiden Plots liegt der kleinste Abstand bei 1nm. Bei einer Nähe von weniger als $\approx 1nm$ stellt sich die Frage, ob die Beschreibung

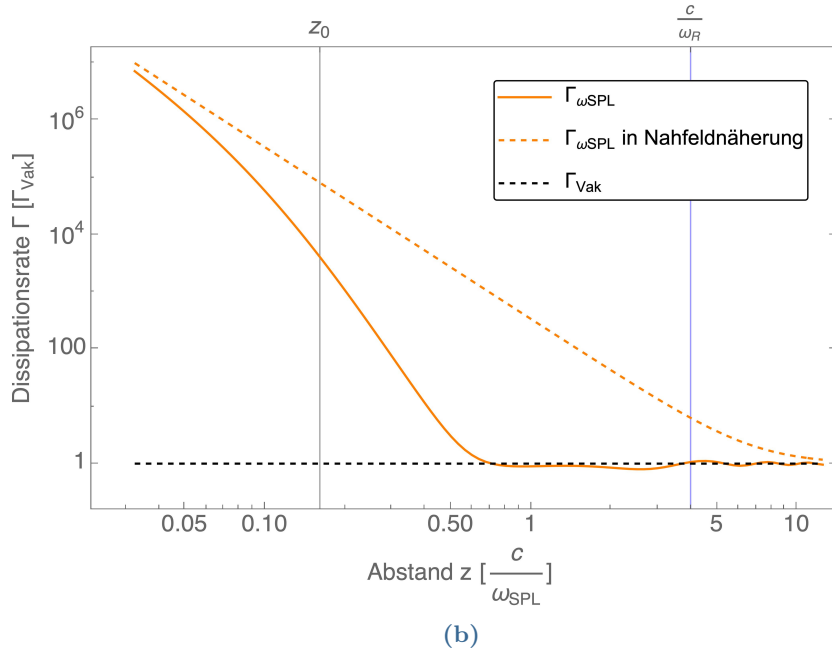
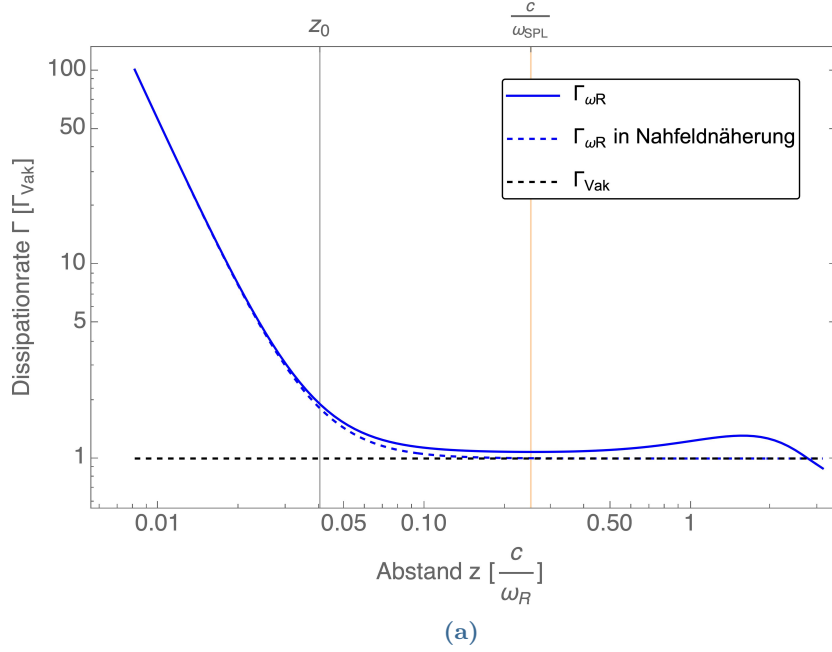


Abbildung 3.2: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems vor einem Halbraum in Abhängigkeit des Abstandes z , dessen materielle Eigenschaft durch das Drude-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Übergangsfrequenzen ω_R (a) und ω_{SPL} (b) im Nahfeld. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

des Materials als Kontinuum noch gültig ist. Mit zunehmenden Abstand findet ein monotoner Abfall der Zerfallsrate statt, welcher dann ab ca. $0.1\omega_{\text{Rub}}$ bei Abb. 3.2a oder $0.6\omega_{\text{SPL}}$ bei Abb. 3.2b nahe bei der Zerfallsrate im Vakuum liegt. Bei noch weiter zunehmendem Abstand fängt die Zerfallsrate an zu oszillieren. In Abbildung 3.3 ist diese Oszillation genauer dargestellt. Es

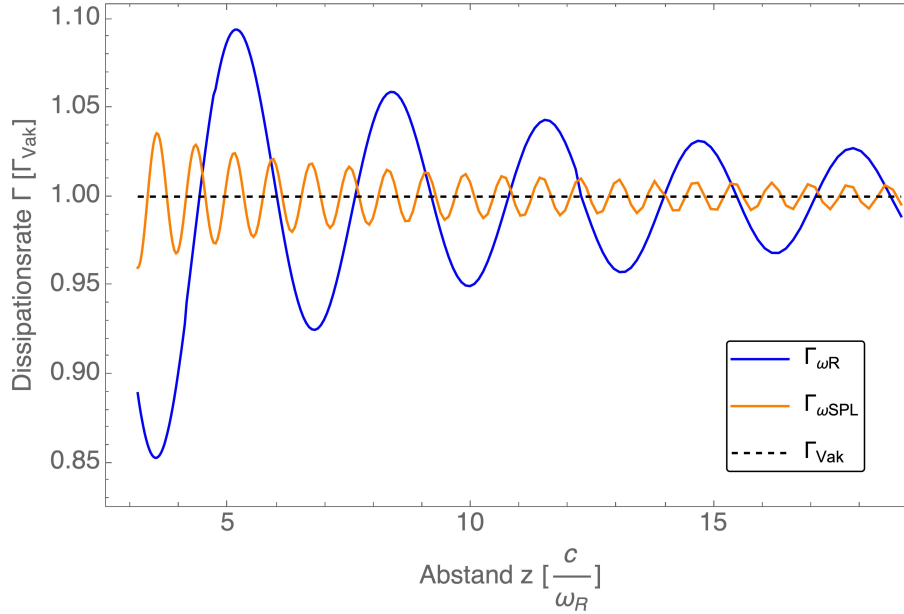
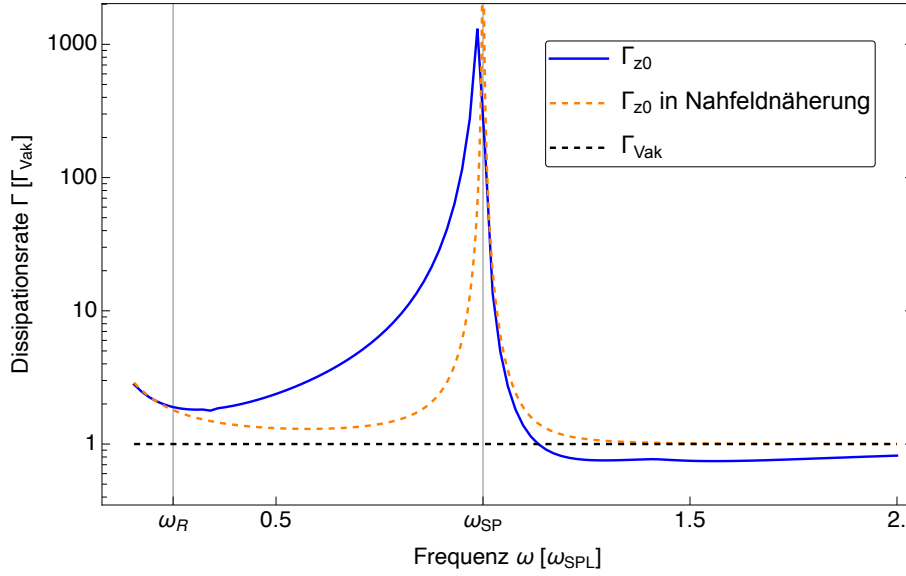


Abbildung 3.3:

Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems in Abhängigkeit des Abstandes z vor einem Halbraum, dessen Materielle Eigenschaft durch das Drude-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Frequenzen ω_R und ω_{SPL} im Fernfeld. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

ist zu erkennen, dass eine gedämpfte Oszillation stattfindet, deren Frequenz und Dämpfung von der Übergangsfrequenz abhängt. Hierbei Oszilliert die Rate stärker für die größere Übergangsfrequenzen ω_{SPL} als ω_R . Der Halbraum führt also auch zu einer Abschwächung der Zerfallsrate, sodass sie schwächer als die Zerfallsrate im Vakuum werden kann. Durch die Dämpfung wird der Effekt der Platte immer schwächer, sodass asymptotisch bei immer weiter zunehmenden Abstand die Zerfallsrate des Vakuums erreicht wird.

Es wurden signifikante Unterschiede in Abhängigkeit der Frequenz beobachtet. Aus diesem Grund wird für einen fixierten Abstand z_0 die Frequenzabhängigkeit der Zerfallsrate untersucht. In Abbildung 3.4 ist die Zerfallsrate in Abhängigkeit der Frequenz dargestellt. Die zwei vertikalen Linien sind jeweils die Übergangsfrequenz des Rubidium Atoms ω_R oder ω_{SPL} . Die gestrichelte orangefarbene Linie ist die Nahfeldnäherung aus Gleichung (3.1). Es ist ein Peak bei ω_{SPL} zu erkennen. Um ein besseres physikalisches Verständnis zu erhalten, wird der Reflektionskoeffizient untersucht. In der Berechnung der Rate steht dieser Reflektionskoeffizient im Integral [(2.17) und (2.16)]. Es wird über \mathbf{k}_{\parallel} integriert und ω_{eg} konstant gehalten. Die zwei gestrichelten Linien in Abbildung 3.5 sind also Integrationswege. Der Wellenvektor mit Betrag $\frac{1}{z_0}$ ($z_0 = 5\text{nm}$) ist bei der Stelle des Maximums der mit integrierten Funktion in Nahfeldnäherung (2.20). Der Wert am Punkt, bei welchem sich die Gerade des Maximums der mit integrierten Funktion und die des Reflektionskoeffizienten bei konstanter Frequenz schneiden, ist ausschlaggebend für die Zerfallsrate im Nahfeld. Zu erkennen ist, dass dieser für ω_R um Größenordnungen kleiner ist als für ω_{SPL} . Warum ist der Imaginärteil des Reflektionskoeffizienten dort besonders groß? Zur Erinnerung, der Imaginärteil des Reflektionskoeffizienten kann deutlich größer als 1 werden, da es


Abbildung 3.4:

Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems gegenüber eines Halbraumes, dessen materielle Eigenschaft durch das Drude-Modell beschrieben wird in Abhängigkeit der Frequenz für einen festen Abstand $z_0 = 5\text{nm}$. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

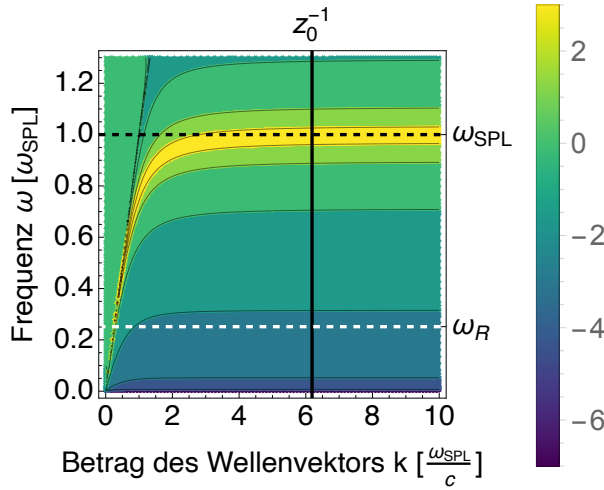


Abbildung 3.5: Logarithmus des Imaginärteils des Reflektionskoeffizienten an einer Grenzschicht eines Halbraumes im Drude-Modell für p-polarisiertes Licht in Abhängigkeit des Wellenvektors und der Frequenz ($z_0 = 5\text{nm}$).

sich hier um evaneszentes Licht handelt. Dieses Evaneszente Feld sind Oberflächenplasmonen, die also durch das evaneszente Dipolfeld des Atoms angeregt werden!

3.1.2 Oberflächen-Plasmonen-Polaritonen

Oberflächen-Plasmonen-Polaritonen¹ (Surface-Plasmon-Polaritons hier „SPL“) sind elektromagnetische Anregungen an einer Grenzschicht zwischen einem Dielektrikum und einem Metall. Mit Hilfe der Maxwellgleichungen in Materie (1.12)-(1.13) ohne freie Polarisation erzeugt durch ρ_{frei} oder freie Ströme \mathbf{j}_{frei} wird nun ein Ansatz für ein in x-Richtung (siehe Abb. 3.7) propa-

¹Die Herleitung folgt im Wesentlichen Ref. [1].

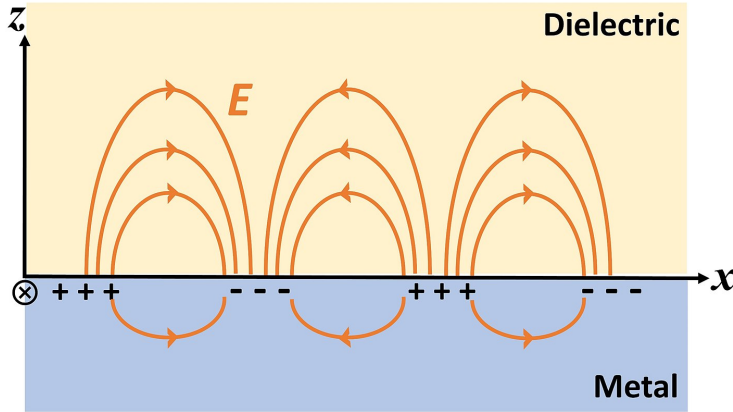


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung eines Oberflächen-Plasmon-Polaritons, welches sich zwischen einem Dielektrikum und einem Metall ausbildet. Entnommen wurde das Bild aus Ref. [18].

gierendes E-Feld eingesetzt $\mathbf{E}(z)e^{i\beta x}$, wobei $\beta \in \mathbb{C}$ zunächst ein komplexer Wellenvektor ist. Von Oberflächenplasmonen (SPL) spricht man dann, wenn dieser Wellenvektor reell ist, da dann ein in senkrechter Richtung zur Ebene lokalisiertes E-Feld entsteht. Besitzt das Material zusätzlich noch dissipative Eigenschaften, so sind die SPLs dann in alle Raumrichtungen lokalisiert. Es ergeben sich 6 Differentialgleichungen, die zu zwei selbstkonsistenten Lösungen führen: Eine Transversal-Magnetische Polarisation (TM) und eine Transversal-Elektrische Polarisation (TE), analog zu der s- und p-Polarisation beim Reflektionskoeffizienten. Es stellt sich heraus, dass die TE Lösung unter der Voraussetzung, dass ein auf die Oberfläche beschränktes E-Feld gesucht wird, mit den geforderten Grenzbedingungen nicht existiert. SPLs existieren also nur in der TM Polarisation. Für die TE Polarisation haben die Felder die Form

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{\pm} &= (\mp E_x, 0, E_z)^T e^{i\beta x} e^{\mp k_{\pm} z}, \\ \mathbf{H}_{\pm} &= (0, H_y, 0)^T e^{i\beta x} e^{\mp k_{\pm} z}.\end{aligned}$$

Hierbei stehen die Indizes \pm jeweils für die zwei verschiedenen Materialien, also $z < 0$ und $z > 0$. ϵ_{\pm} sind die jeweilige dielektrische Funktion. Aus den Randbedingungen diskutiert in Abschnitt 1.4 ergibt sich eine weitere Beziehung

$$\frac{k_+}{k_-} = \frac{\epsilon_+}{\epsilon_-}. \quad (3.2)$$

Auch muss bei einer TM Polarisation die Magnetische Feldstärke Komponente $H_{y,\pm}$ eine Wellengleichung erfüllen, sodass sich zwei Dispersionsrelationen

$$k_+^2 = \beta^2 - k_0^2 \epsilon_+ \quad \text{und} \quad k_-^2 = \beta^2 - k_0^2 \epsilon_- \quad (3.3)$$

ergeben, mit $k_0 = \frac{\omega}{c}$. Mit den Gleichungen (3.2) und (3.3) ergibt sich die Dispersionsrelation

$$\beta = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_+ \epsilon_-}{\epsilon_+ + \epsilon_-}}. \quad (3.4)$$

Um eine ungedämpfte propagierende Welle zu erhalten, muss der Radikant in Gleichung (3.4) positiv sein. Die Dispersionsrelation ist auch für komplexe dielektrische Funktionen korrekt. Dies führt dann zu einer Lokalisierung der SPLs entlang der Grenzschicht, die wie bereits erwähnt durch dissipative Eigenschaften des Materials zustande kommt. Es ist erkenntlich,

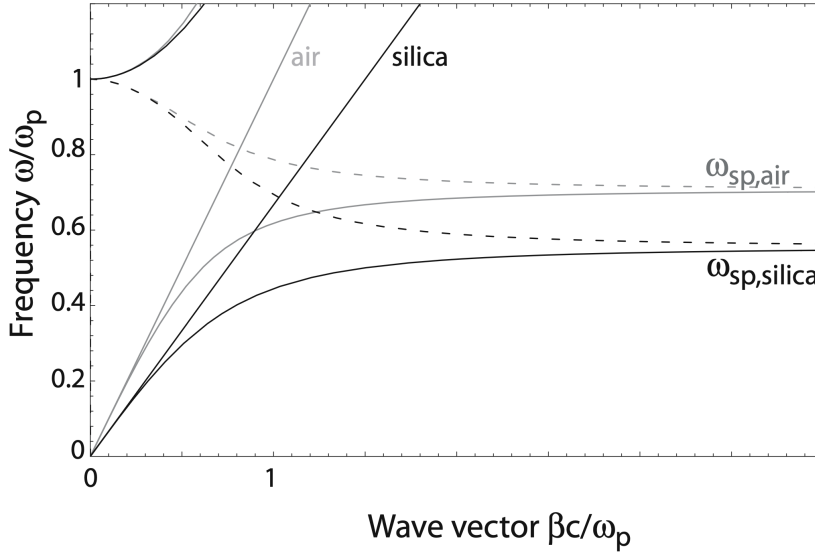
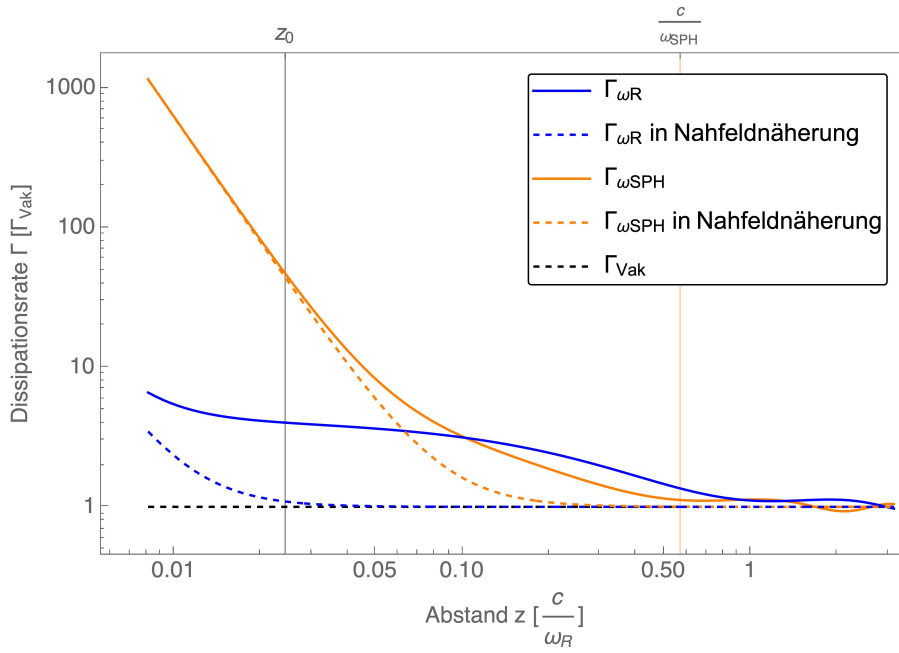


Abbildung 3.7: Dispersionsrelation von SPLs bei einer Grenzschicht zwischen einem Metall beschrieben durch das Drude-Modell mit vernachlässigbarer Dämpfung und Luft (graue Kurven) und Silizium (schwarze Kurven). Die Geraden sind die Lichtlinien im jeweiligen Material. Entnommen wurde das Bild aus Ref. [1].

das sich Oberflächenplasmonen für kleine Wellenvektoren β mit einer Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{Gruppe}} = \frac{\partial \omega}{\partial k}$ kleiner als die jeweilige Lichtgeschwindigkeit ausbreiten. Für große Wellenvektoren β sind die SPL stationär! In der Tat findet man selbige E-Feld Strukturen bei Lösen der Poissonsgleichung $\Delta \phi = 0$ an einer Grenzschicht, wobei ϕ das Potential in der Elektrostatik ist. Es ist erkennbar, dass der Peak des Imaginärteils des Reflektionskoeffizient im Drude-Modell (siehe Abbildung 3.5) genau einer solchen Dispersionsrelation folgt. Sobald also ein Oberflächenplasmon angeregt werden kann, ist der Imaginärteil des Reflektionskoeffizienten sehr groß! Wichtig hierbei ist, dass die SPL in senkrechter Richtung zur Grenzschicht evaneszent sind, sodass sie nur durch ein evaneszentes Feld angeregt werden können. Zusammenfassend ist die Zerfallsrate besonders groß, sobald das evaneszente E-Feld des elektrischen Dipols, die Näherung des Atoms, an ein SPL koppelt.

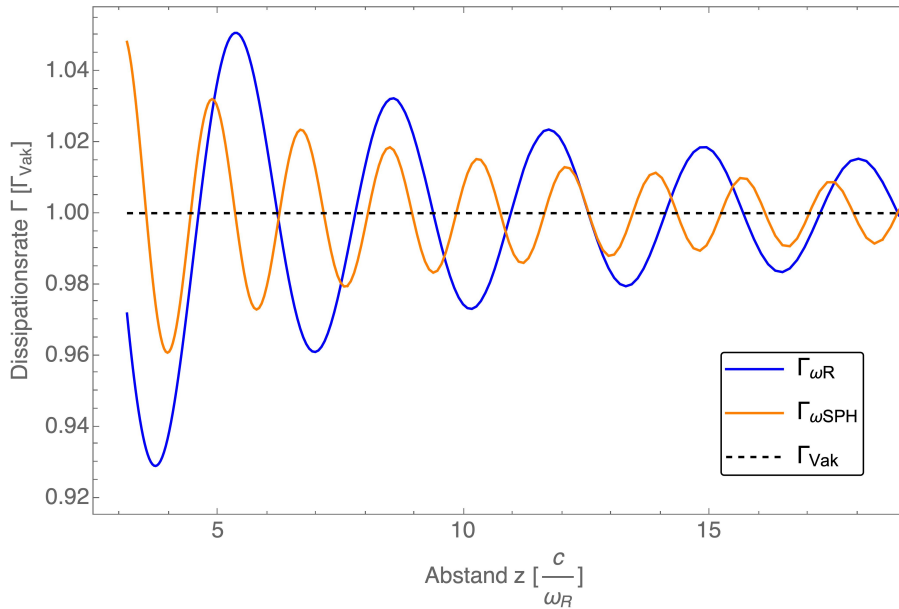
3.1.3 Zerfallsrate vor einem Halbraum im Lorentz-Modell

Die gleiche Analyse wird nun für ein Dielektrikum durchgeführt. Es wird wieder ein Atom mit zwei verschiedenen Übergangsfrequenzen in der Nähe eines Halbraumes platziert. Der Halbraum ist hier Silizium und wird durch das Lorentz-Modell beschrieben. In Abbildung 3.8 ist die Zerfallsrate in Abhängigkeit des Abstands zum Halbraum dargestellt. Es ist wieder ein fester Abstand ($z_0 = 5$ nm) zum Vergleich bei Variation von anderen Parametern eingetragen und die x-Achse ist auf eine charakteristische Länge des Systems $\frac{c}{\omega_R}$ normiert. Diese charakteristische Länge für die andere Übergangsfrequenz ist mit einer orangenen vertikalen Linie markiert. Es ist ähnlich wie in Abschnitt 3.1.1 eine Divergenz für kleine Abstände zu erkennen. Jedoch ist der Absolutwert der Zerfallsrate viel kleiner als die beim Metall. Dies liegt daran, dass ein

**Abbildung 3.8:**

Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems vor einem Halbraum in Abhängigkeit des Abstandes z , dessen materielle Eigenschaft durch das Lorentz-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Übergangsfrequenzen ω_R und ω_{SPH} im Nahfeld. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

Dielektrikum viel schwächer mit einem umliegenden E-Feld interagiert. Auch versagt die Nahfeldnäherung für die Frequenz ω_R . Im Fernfeld in Abbildung 3.9 ist ein analoges oszillierendes Verhalten wie beim Metall zu erkennen, wobei die Amplitude deutlich geringer ist.

**Abbildung 3.9:**

Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems in Abhängigkeit des Abstands z vor einem Halbraum, dessen materielle Eigenschaft durch das Lorentz-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Frequenzen ω_R und ω_{SPH} im Fernfeld. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

Es wird nun wieder ein Abstand fixiert und die Zerfallsrate in Abhängigkeit der Frequenz

untersucht. In Abbildung 3.10 ist erkennbar, dass bei der Frequenz ω_{SPH} wieder Resonan-

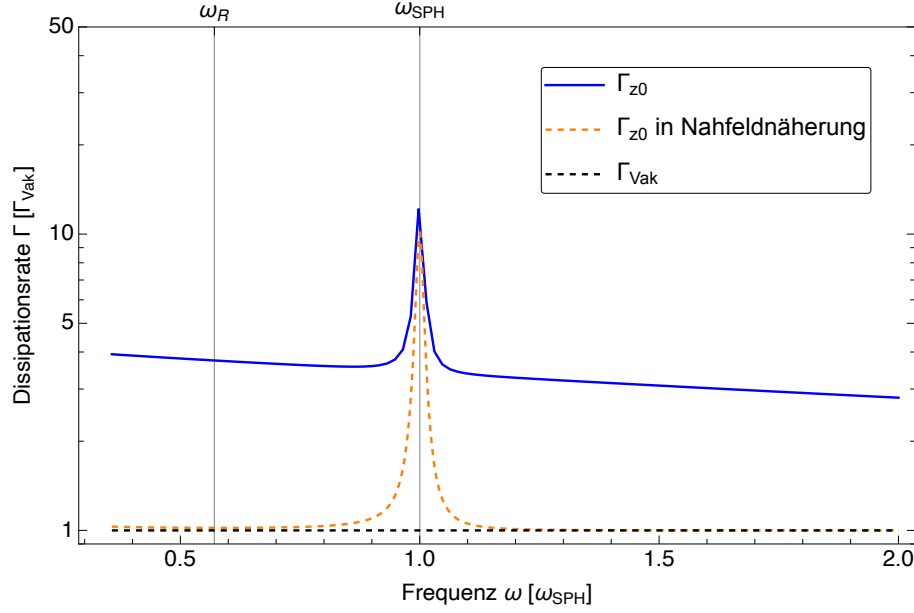


Abbildung 3.10: Spontane Zerfallsrate einer Zwei-Zustand-Systems vor einem Halbraum, dessen materielle Eigenschaft durch das Lorentz-Modell beschrieben wird in Abhängigkeit der Frequenz für einen festen Abstand $z_0 = 5\text{nm}$. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

zen entstehen. In dem Fall eines Dielektrikums könnten dies Oberflächen-Phononen-Polaritonen („Surface-Phonon-Polaritons“ hier SPH) sein. In einem Dielektrikum, modelliert durch das Lorentz-Modell sind keine freien Elektronen vorhanden, sodass sich keine SPLs bilden können. SPHs sind eine Resonanz, welche durch Kopplung von Photonen und Phononen entstehen. Die Größe und Feldstärke ist um Größenordnungen kleiner als die der SPLs, sodass auch der Peak in der Zerfallsrate schwächer ist. Auch versagt die Nahfeldnäherung für alle Frequenzen außer ω_{SPH} . Es stellt sich raus, dass die stark gebundenen Zustände, die mit dem ϵ_∞ Anteil in das Modell gebracht werden zu der Unstimmigkeit der Nahfeldnäherung führen².

Analog zum vorherigen Abschnitt wird auch hier bei der Berechnung der Zerfallsrate über den Reflektionskoeffizienten integriert. In Abbildung 3.11 ist zu erkennen, dass die Werte des Imaginärteils des Reflektionskoeffizienten deutlich kleiner als die beim Metall sind. Bei der Frequenz ω_{SPH} ist der Peak der oben genannten SPHs zu erkennen.

²Siehe dazu A.4.

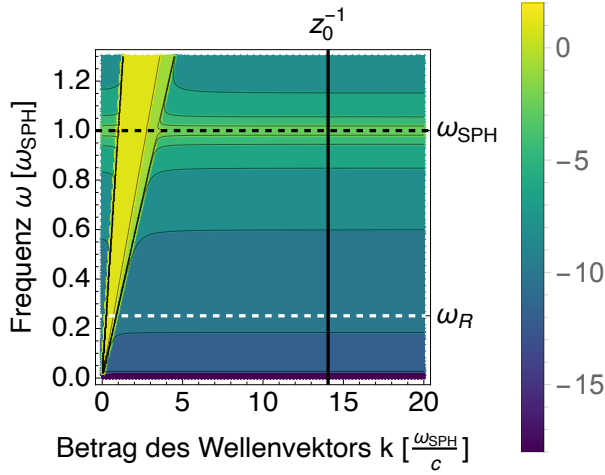


Abbildung 3.11: Logarithmus des Imaginärteils des Reflektionskoeffizienten an einer Grenzschicht eines Halbraumes im Lorentz-Modell für p-polarisiertes Licht in Abhängigkeit des Wellenvektors und der Frequenz.

3.2 Untersuchung der Zerfallsrate vor einer Platte

Nun wird das Atom vor einer planaren Nanostruktur, einer unendlich ausgedehnten Platte, platziert. Der Greentensor, der zur Berechnung der Zerfallsrate benutzt wird, enthält nun deutlich komplexere Reflektionskoeffizienten aus Gleichung (1.22).

3.2.1 Zerfallsrate vor einer Platte im Drude-Modell

Die Platte ist nun aus einem Gold~Silber ähnlichem Material und zuerst wird wieder der Abstand des Atoms zur Grenzfläche variiert. Die Dicke der Platte beträgt 2nm, die an der Grenze der Modellierung des Materials als kontinuierlich liegt. Für Dicken unter 2nm sind die Auswirkungen lokaler Felder aufgrund ungeschirmter OberflächenElektronen relevant³. In Abbildung 3.12 ist die Zerfallsrate dargestellt. Die vertikalen Linien und Normierungen sind analog zu den vorherigen Plots mit $z_0 = 5\text{nm}$. Es ist zu erkennen, dass ähnlich wie auch beim Halbraum die Zerfallsrate stark frequenzabhängig ist. Bei der Frequenz ω_{SPL} ist die Zerfallsrate bis zu einem Abstand von ca. $0.02 \frac{c}{\omega_R}$ deutlich größer als die bei der Übergangsfrequenz von Rubidium ω_R . Ein Unterschied zum Halbraum ist, dass ab diesem Abstand bis zu $0.8 \frac{c}{\omega_R}$ die Zerfallsrate bei der Übergangsfrequenz von Rubidium deutlich höher ist als die bei der Frequenz ω_{SPL} . Auch sind im Fernfeld ab $0.05 \frac{c}{\omega_R}$ bzw. $\frac{c}{\omega_R}$ keine oder nur sehr schwache Oszillationen zu erkennen. Anhand Abbildungen 3.14a und 3.14b wird deutlich, dass für dickere Platten der Verlauf der Zerfallsrate zu der eines Halbraumes konvergiert. In Abbildung 3.13 wurde das Atom bei einem Abstand z_0 fixiert und die Dicke der Platte variiert.

Es ist zu erkennen, dass für Frequenzen von ω_{Rub} die Stärke der Zerfallsrate vergrößert und bis zur Zerfallsrate des Halbraumes vermindert werden kann. Bei der Frequenz ω_{SPL} ist sogar sowohl ein Vermindern der Rate bis auf den Vakuum Zerfall als auch ein Maximieren bei einer Dicke von ca. $3z_0$ möglich!

Nun wird die Höhe des Atoms über der Platte bei z_0 fixiert, die Dicke ($d = 2\text{nm}$) der Platte

³Siehe dazu Ref. [19]

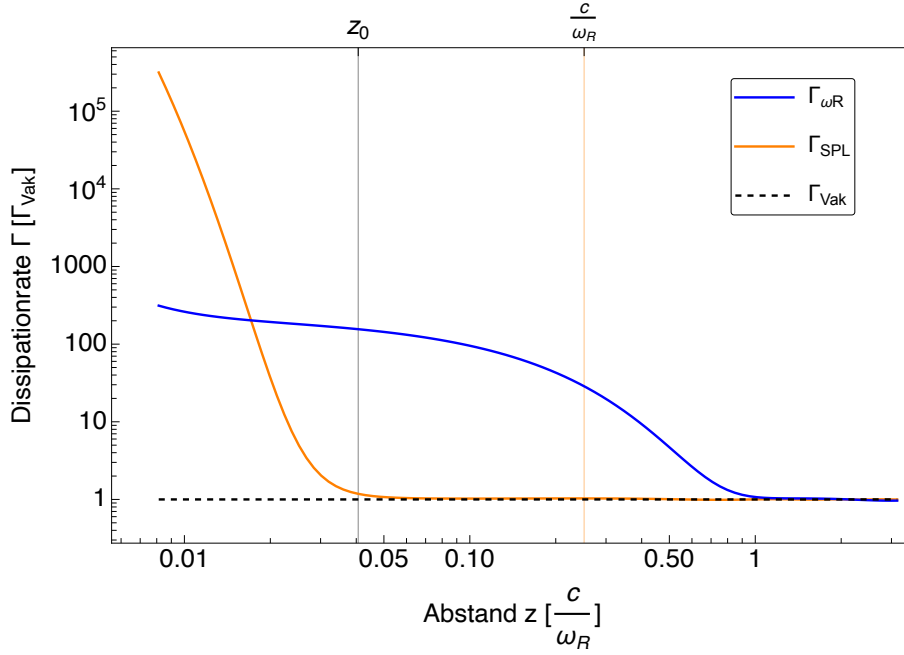


Abbildung 3.12: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Niveau-Systems vor einer Platte der Dicke 2nm in Abhängigkeit des Abstands, dessen materielle Eigenschaft durch das Drude-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Frequenzen ω_R und ω_{SPL} im Nahfeld ($z_0 = 5\text{nm}$). Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

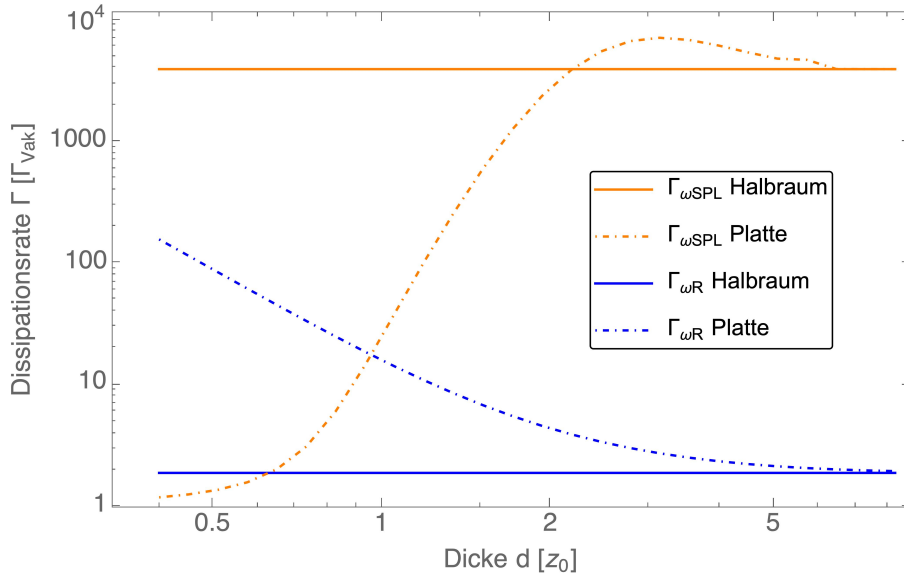
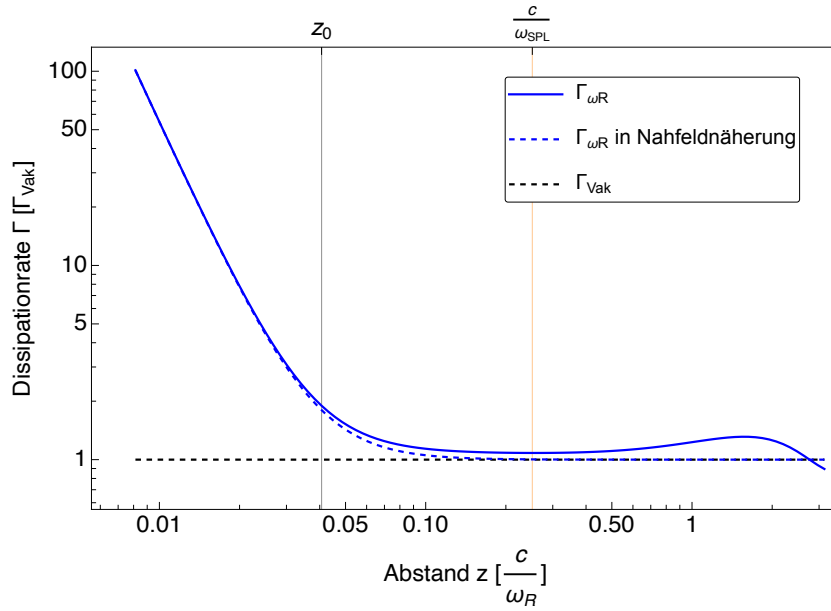
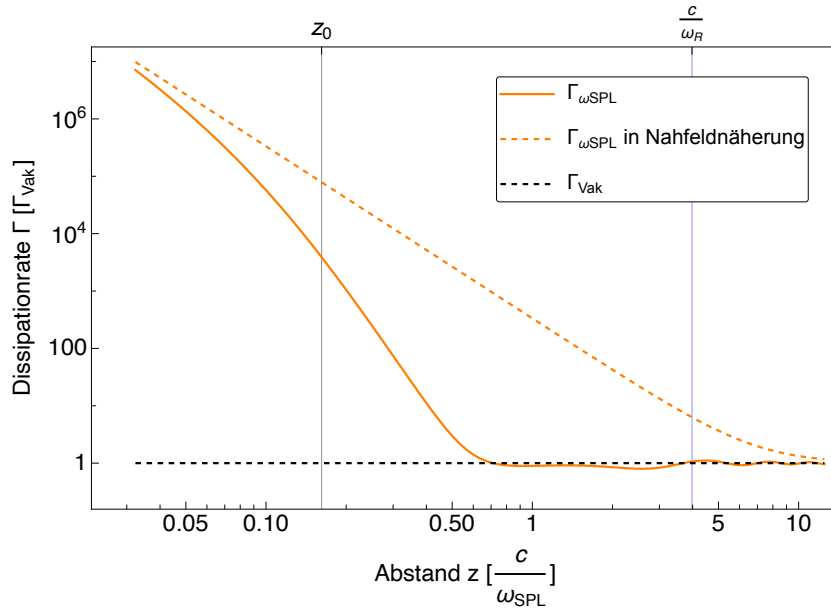


Abbildung 3.13: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems gegenüber einer Platte mit variabler Dicke, dessen materielle Eigenschaft durch das Drude-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Frequenzen ω_R und ω_{SP} im Nahfeld. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

konstant gehalten und die Übergangsfrequenz variiert. In Abbildung 3.15 ist zu erkennen, dass die Zerfallsrate für zwei Frequenzen ein Maximum besitzt. Die vertikalen Linien sind zum einen die Übergangsfrequenzen ω_R und ω_{SPL} und zum anderen die in Abschnitt 2.7 diskutierten Pole des Reflektionskoeffizienten in Nahfeldnäherung. Das erste Maximum liegt ziemlich genau bei $\omega_{\text{SPL}-}$ und das zweite ca. $0.08\omega_{\text{SP}}$ unter $\omega_{\text{SPL}+}$. Dies sind wieder Indizien, dass das abgestrahlte E-Feld des Atoms SPLs anregt. In dem Verlauf des Reflektionskoeffizienten spiegelt sich also



(a)



(b)

Abbildung 3.14: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems vor einer Platte der Dicke 200nm, dessen materielle Eigenschaft durch das Drude-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Frequenzen ω_R und ω_{SPL} im Nahfeld und Abhängigkeit des Abstandes d . Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

Teilweise das Verhalten der Zerfallsrate wieder.

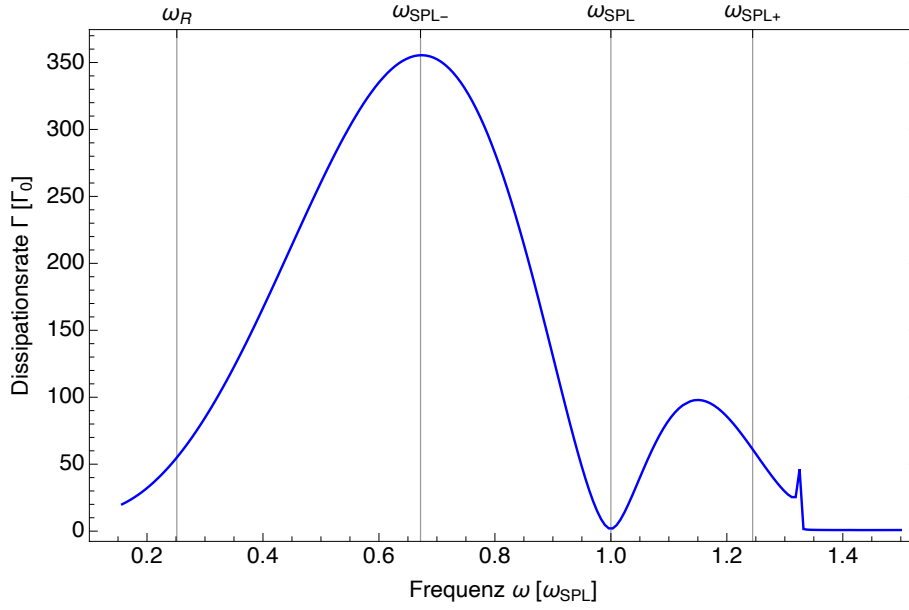


Abbildung 3.15: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems vor einer Platte der Dicke 2nm, dessen materielle Eigenschaft durch das Drude-Modell beschrieben wird in Abhängigkeit der Frequenz für einen festen Abstand $z_0 = 5\text{nm}$. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

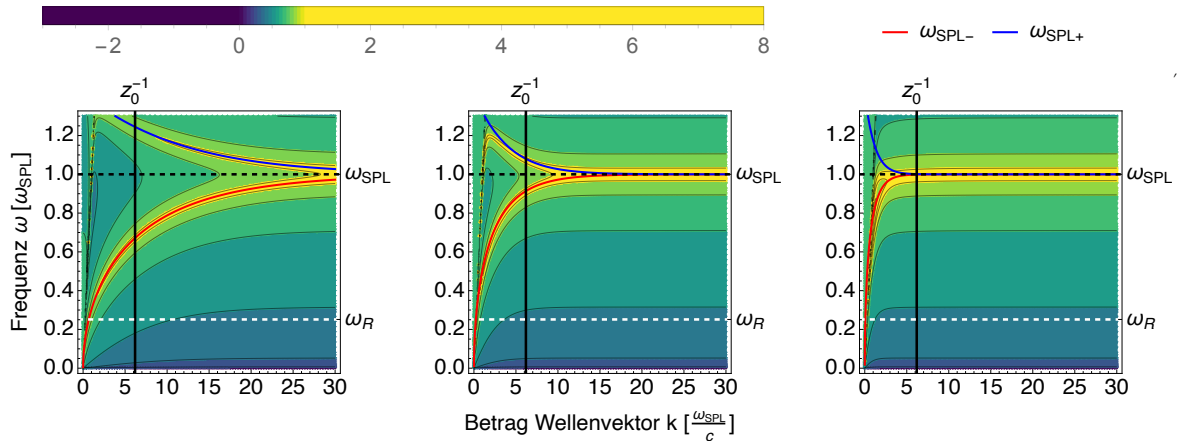


Abbildung 3.16: Logarithmus des Imaginärteils des Reflektionskoeffizienten an einer Platte im Drude-Modell für p-polarisiertes Licht in Abhängigkeit des Wellenvektors und der Frequenz für verschiedene Dicken der Platte (Links nach Rechts: 2nm, 6nm, 10nm). Zur besseren Darstellung ist hier $\gamma = 10\gamma_{\text{Gold}\sim\text{Silber}}$ gewählt, wodurch die Peaks breiter werden.

In Abbildung 3.16 ist der Imaginärteil des Reflektionskoeffizient für verschiedene Dicken d der Platte aufgetragen. Analog zu Abschnitt 3.1.1 sind die horizontalen Linien Integrationswege und die vertikale Linie das Maximum der mit integrierten Funktion. Durch Variieren der Dicke ändert sich der Wert an der Stelle, wo sich der Integrationsweg und das Maximum der mit integrierten Funktion schneiden. Die Dispersionsrelation der SPLs kann also in gewisser Weise günstig gewählt werden.

3.2.2 Zerfallsrate vor einer Platte im Lorentz-Modell

Das Material der Platte ist in der weiteren Betrachtung Silizium und wird durch das Lorentz-Modell beschrieben. Zunächst wird wieder für zwei verschiedene Übergangsfrequenzen und eine feste Dicke von 2nm der Abstand zur Platte variiert. Die vertikalen Linien ($z_0 = 5\text{nm}$) und Normierungen in Abbildung 3.17 sind analog zu den bisherigen Plots.

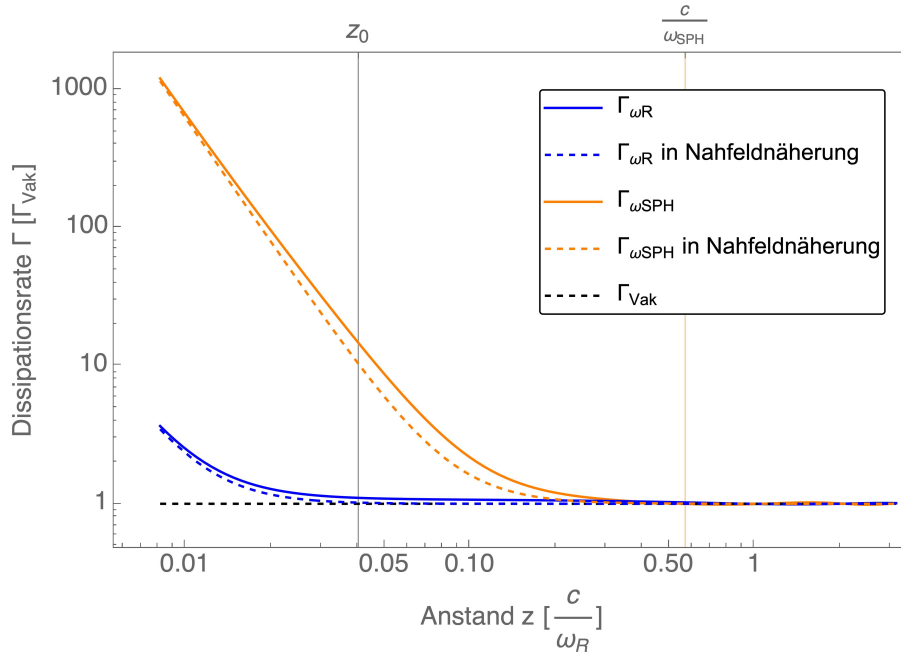


Abbildung 3.17: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Zustand-Systems gegenüber einer Platte der Dicke 2nm in Abhängigkeit des Abstands z , dessen materielle Eigenschaft durch das Lorentz-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Frequenzen ω_R und ω_{SP} im Nahfeld.

Es ist ablesbar, dass für die Frequenz ω_R für Abstände kleiner z_0 die Zerfallsrate schwächer im Vergleich zu der eines Halbraumes ist. Bei der Frequenz ω_{SPH} ist fast kein Unterschied zu erkennen. Im Fernfeld, ab ca. $\frac{c}{\omega_{\text{SPH}}}$, sind die Oszillationen auch deutlich schwächer.

Es werden der Abstand bei z_0 und die Dicke bei 2nm konstant gehalten und die Übergangsfrequenz variiert. In Abbildung 3.18 ist die erste vertikale Linie die Übergangsfrequenz des

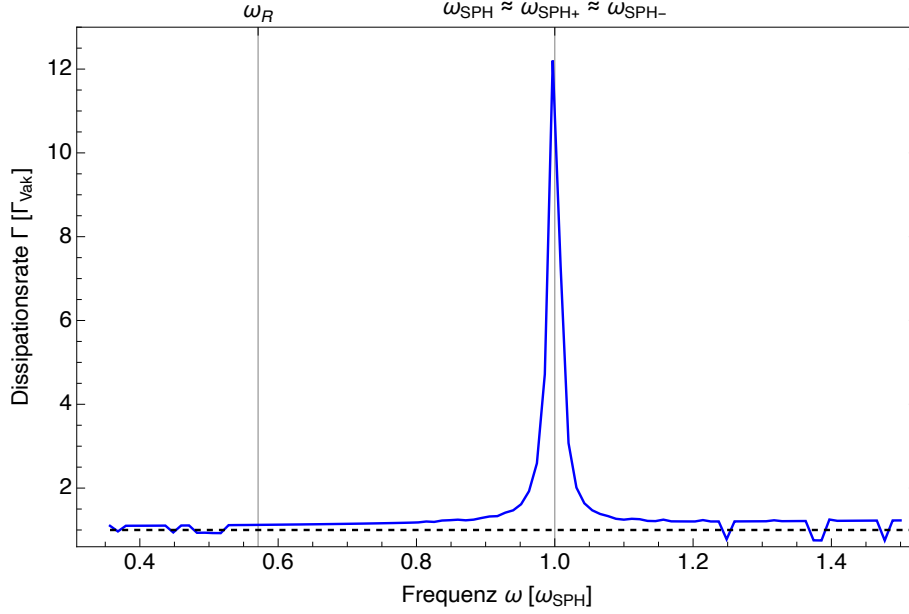


Abbildung 3.18: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Niveau-Systems gegenüber einer Platte der Dicke 2nm, deren materielle Eigenschaft durch das Lorentz-Modell beschrieben wird in Abhängigkeit der Frequenz für einen festen Abstand $z_0 = 5\text{nm}$. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

Rubidium Atoms ω_R . Die weiteren interessanten Übergangsfrequenzen aus Abschnitt 2.7 liegen sehr nahe beieinander und sind deshalb bei einer vertikale Linie eingetragen. Ein Unterschied der Frequenzabhängigkeit ist, dass bei allen Frequenzen außer nahe ω_{SPH} die Zerfallsrate nahe bei der des Vakuums liegt. Der Peak bei $\omega_{\text{SPH}\pm}$ ist in derselben Größenordnung.

Nun wird die Dicke der Platte variiert und der Abstand des Atoms bei z_0 fixiert. In Abbil-

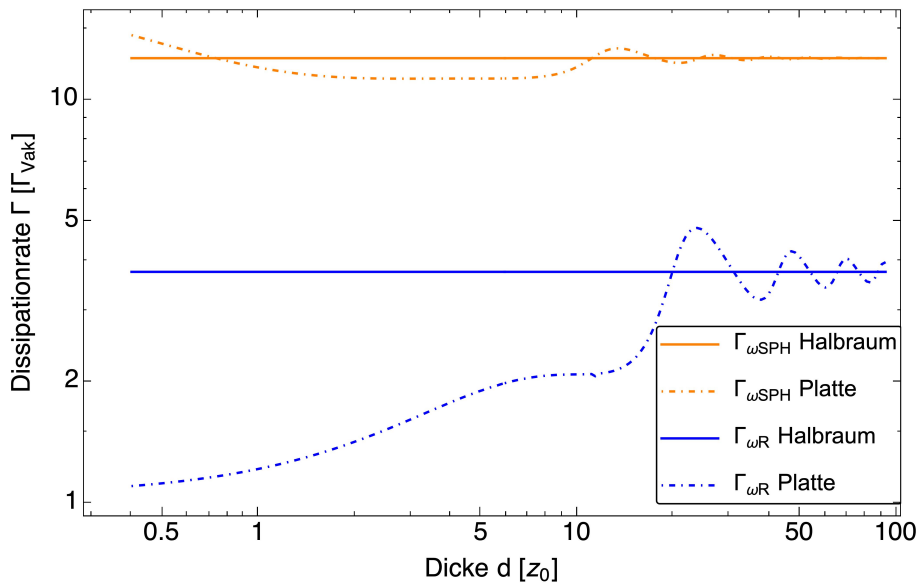


Abbildung 3.19: Spontane Zerfallsrate eines Zwei-Niveau-Systems vor einer Platte mit variabler Dicke d , deren materielle Eigenschaft durch das Lorentz-Modell beschrieben wird, für zwei verschiedene Frequenzen ω_R und ω_{SP} im Nahfeld. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

Fig. 3.19 ist zu sehen, dass für die Resonanzfrequenz ω_{SPL} keine große Abweichungen zu der eines Halbraumes in Abhängigkeit der Dicke der Platte zu erkennen sind. Für einen Abstand von ca. $10 z_0$ ist bei dieser Frequenz eine schwache gedämpfte Oszillation erkennbar. Diese ist frequenzabhängig, da für die Übergangsfrequenz des Rubidium Atoms ω_R eine größere Amplitude zu erkennen ist. Bei dieser Übergangsfrequenz kann die Zerfallsrate durch dünne Platten auf die des Vakuums, und für dickere Platten in der Größenordnung der eines Halbraumes verstärkt werden. Im Gegensatz zum Drude-Modell kann die Zerfallsrate nicht in derselben Größenordnung mit der Dicke d der Platte manipuliert werden.

Richtungsabhängigkeit der spontanen Emission

Bei der Berechnung der Zerfallsrate für eine planare Struktur tauchte ein Term auf, der proportional zum Drehimpuls des Atoms war (2.11). Dieser verschwand nach Spurbildung über die Green-Dyade des Feldes aufgrund seiner Antisymmetrie. Das bedeutet jedoch nicht, dass diese Größe irrelevant bei der Betrachtung der Abstrahlung des Lichtes ist. Deswegen wird hier eine richtungsabhängige Zerfallsrate eingeführt¹. Als eine Richtung wird die Richtung des Wellenvektors einer ebenen Welle verstanden. Denn bei einer ebenen Welle zeigt der Poynting-Vektor parallel zum \mathbf{k} -Vektor, sodass die Richtung mit dem Energiefluss einhergeht. Das Koordinatensystem wird so gewählt, dass die x,y-Achse parallel zur Grenzfläche verläuft und die z-Achse senkrecht dazu. Um den Anteil in z.B. die positive/negative x-Richtung herauszuprojizieren, wird das E-Feld in der Basis von ebenen Wellen aufgeschrieben:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{x})_{\text{part}} &= i\omega\mu\mu_0 \int_V d^3\mathbf{x}' \underline{G}(\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel}, z, z') \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}') \\ &= \int_V d^3\mathbf{x}' \left(\int_0^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z') e^{i\mathbf{k}_{\parallel}(\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel})} \right. \\ &\quad \left. + \int_{-\infty}^0 \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z') e^{i\mathbf{k}_{\parallel}(\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel})} \right) \mathbf{j}(\mathbf{x}') \\ &= \mathbf{E}_{\text{rechts}}(\mathbf{x}) + \mathbf{E}_{\text{links}}(\mathbf{x}) .\end{aligned}$$

Also ist die Greensche Funktion, die den Anteil von rechtsgehenden elektromagnetischen Wellen herausfiltert, gerade die Fouriertransformierte integriert über die Wellenvektoren, die in die rechte Richtung zeigen. Für die Berechnung im QFDT kann nicht der Imaginärteil der Fouriertransformation genutzt werden, da $\mathcal{F}(\text{Im}[\dots]) \neq \text{Im}[\mathcal{F}(\dots)]$. Nun gilt bei weiterer Untersuchung von Gleichung (1.35)

$$\begin{aligned}\underline{G}^T(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) &= \underline{G}(-\mathbf{k}_{\parallel}, z', z, \omega) \quad \text{und} \quad \underline{G}^*(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) = \underline{G}(-\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) \\ \Rightarrow \underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', -\omega) &= \underline{G}^{\dagger}(\mathbf{k}_{\parallel}, z', z, \omega) ,\end{aligned}$$

¹Die folgende Herleitung basiert auf Ref. [8].

sodass die neue Größe $\underline{G}_{\mathcal{J}}$ eingeführt werden kann

$$\begin{aligned} \text{Im} \left[\underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) \right] &= \frac{\underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) - \underline{G}^*(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega)}{2i} = \frac{\underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', \omega) - \underline{G}(\mathbf{x}, \mathbf{x}', -\omega)}{2i} \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\mathbf{k}_{\parallel}}{(2\pi)^2} \frac{\underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) - \underline{G}^{\dagger}(\mathbf{k}_{\parallel}, z', z, \omega)}{2i} e^{i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot (\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel})} \\ &\equiv \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\mathbf{k}_{\parallel}}{(2\pi)^2} \underline{G}_{\mathcal{J}}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega) e^{i\mathbf{k}_{\parallel} \cdot (\mathbf{x}_{\parallel} - \mathbf{x}'_{\parallel})} \end{aligned} \quad (4.1)$$

$\underline{G}_{\mathcal{J}}$ ist der Teil der Greenschen Funktion, der für das QFDT relevant ist. Jetzt wird die richtungsabhängige Zerfallsrate berechnet, indem dieser Greentensor in Gleichung (2.6) eingesetzt wird

$$\gamma_{\pm} = \pm \frac{2}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \int_0^{\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \left(n(\omega) + 1 \right) \text{Tr} \left[\underline{S}_A^T(-\omega) \underline{G}_{\mathcal{J}}(\pm k_x, k_y, z, \omega) \right] .$$

Der Term $\text{Im} \left[\underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) \right]$ wird weiter untersucht. Wird der Ausdruck in Gleichung (1.35) näher betrachtet, werden folgende Symmetrie-Eigenschaften ersichtlich:

$$\underline{G}_{\mathcal{J}}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, z', \omega)^T = \underline{G}_{\mathcal{J}}(-\mathbf{k}_{\parallel}, z', z, \omega) . \quad (4.2)$$

Auch diese Dyade kann wie in Gleichung 2.10 in einen symmetrischen und einen antisymmetrischen Teil aufgespalten werden, also

$$\underline{G}_{\mathcal{J}}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) = \underline{\Sigma}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) + \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) \cdot \underline{\mathbf{L}} . \quad (4.3)$$

Wird nun Gleichung (4.2) benutzt, ist erkenntlich, dass der symmetrische Anteil $\underline{\Sigma}$ gerade in \mathbf{k}_{\parallel} und der asymmetrische Anteil ungerade ist. Man bemerkt, dass wenn sowohl über das links, als auch rechtspropagierende E-Feld integriert wird, also über k_x von $-\infty$ bis ∞ , wieder die Zerfallsrate erhalten wird und der antisymmetrische Term wegfällt, sodass die Funktion, wie im vorangegangenen Kapitel benutzt, symmetrisch ist. Hier ist das nun nicht der Fall, da über k_x von 0 bis ∞ integriert wird. Um diesen Effekt hervorzuheben, wird die Differenz der

richtungsabhängigen Zerfallsrate begutachtet

$$\begin{aligned}
\gamma_+ - \gamma_- &= \Delta\gamma \\
&= \frac{1}{\pi^2\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \ (n(\omega) + 1) \operatorname{Tr} \left[\underline{S}_A^T(-\omega) \underline{\mathbf{L}} \right] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) \quad \left| \quad \underline{\mathbf{L}}_k^T = -\underline{\mathbf{L}}_k \right. \\
&= -\frac{1}{\pi^2\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \ (n(\omega) + 1) \operatorname{Tr} \left[\underline{S}_A(-\omega) \underline{\mathbf{L}} \right] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) \quad \left| \quad \begin{array}{l} n(\omega)_{T=0} = 0 \\ n(-\omega)_{T=0} = -1 \end{array} \right. \\
&\stackrel{T \rightarrow 0}{=} -\frac{1}{\pi^2\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \ \theta(\omega) \operatorname{Tr} \left[\underline{S}_A(-\omega) \underline{\mathbf{L}} \right] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) \\
&= -\frac{1}{\pi^2\hbar} \int_0^{\infty} d\omega \operatorname{Tr} \left[\underline{S}_A(-\omega) \underline{\mathbf{L}} \right] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) .
\end{aligned}$$

Wird nun die Gleichung 2.12 eingesetzt, gilt

$$\Delta\gamma = -\frac{1}{2\pi^2\hbar} \operatorname{Tr} \left[\left(\left\langle \hat{\mathbf{d}}\hat{\mathbf{d}} \right\rangle^{as} + \frac{\left\langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \right\rangle \cdot \underline{\mathbf{L}}}{2\omega_{eg}} \right) \underline{\mathbf{L}} \right] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) .$$

Den Term $\left\langle \hat{\mathbf{d}}\hat{\mathbf{d}} \right\rangle^{as}$ kann man genauso zerlegen wie den Term $\left\langle \hat{\mathbf{d}}\dot{\hat{\mathbf{d}}} \right\rangle^{as}$, sodass

$$\begin{aligned}
\Delta\gamma &= -\frac{1}{2\pi^2\hbar} \operatorname{Tr} \left[\left(\frac{i\omega_{eg} \left\langle \hat{\mathbf{d}} \times \hat{\mathbf{d}} \right\rangle + \left\langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \right\rangle}{2\omega_{eg}} \right) \cdot \underline{\mathbf{L}}\underline{\mathbf{L}} \right] \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) \\
&= -\frac{1}{2\pi^2\hbar} \left(\frac{i\omega_{eg} \left\langle \hat{\mathbf{d}} \times \hat{\mathbf{d}} \right\rangle + \left\langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \right\rangle}{\omega_{eg}} \right) \frac{\operatorname{Tr} [\underline{\mathbf{L}}\underline{\mathbf{L}}]}{2} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) \quad \left| \quad \frac{\operatorname{Tr} [\underline{\mathbf{L}}\underline{\mathbf{L}}]}{2} = 1 \right. \\
&= -\frac{1}{2\pi^2\hbar} \left(\frac{i\omega_{eg} \left\langle \hat{\mathbf{d}} \times \hat{\mathbf{d}} \right\rangle + \left\langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \right\rangle}{\omega_{eg}} \right) \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega) .
\end{aligned}$$

Jetzt werden noch die Erwartungswerte der Kreuzprodukte der Dipoloperatoren ausgerechnet. Dafür wird wieder die explizite Form des Dipoloperators aus Gleichung 2.13 eingesetzt:

$$\left[\hat{d}_i, \hat{d}_j \right] = d_i^R d_j^I [\hat{\sigma}_1, \hat{\sigma}_2] + d_i^I d_j^R [\hat{\sigma}_2, \hat{\sigma}_1] = 2i \left(d_i^R d_j^I - d_i^I d_j^R \right) \hat{\sigma}_3 , \quad (4.4)$$

somit ergibt sich

$$\frac{i}{2} \left(\hat{\mathbf{d}} \times \hat{\mathbf{d}} \right)_k = \frac{i}{2} \epsilon_{kij} \hat{d}_i \hat{d}_j = \frac{i}{4} \epsilon_{kij} \left[\hat{d}_i, \hat{d}_j \right] = - \left(\mathbf{d}^R \times \mathbf{d}^I \right)_k \hat{\sigma}_3 .$$

Und für das Kreuzprodukt mit der Ableitung des Dipolmoments geht es etwas direkter

$$\hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} = \omega_{eg} \left(\mathbf{d}^R \times \mathbf{d}^I \hat{\sigma}_1^2 - \mathbf{d}^I \times \mathbf{d}^R \hat{\sigma}_2^2 \right) = 2\omega_{eg} \left(\mathbf{d}^R \times \mathbf{d}^I \right) \mathbb{1},$$

somit ergibt sich

$$i\omega_{eg} \langle \hat{\mathbf{d}} \times \hat{\mathbf{d}} \rangle + \langle \hat{\mathbf{d}} \times \dot{\hat{\mathbf{d}}} \rangle = 2\omega_{eg} \left(\mathbf{d}^R \times \mathbf{d}^I \right) \left[1 + \langle \hat{\sigma}_3 \rangle \right].$$

Da sich das Atom anfänglich in einem angeregtem Zustand befindet, gilt $\langle \hat{\sigma}_3 \rangle = 1$. Für die Zerfallsrate gilt also nun:

Richtungsabhängige Zerfallsrate

$$\Delta\gamma = \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x \frac{(\mathbf{d}^{(R)} \times \mathbf{d}^{(I)})}{\hbar\pi^2} \cdot \mathbf{s}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega_A) \quad (4.5)$$

Es ist ersichtlich, dass ein komplexes und ein reelles Dipolmoment vorhanden sein müssen, damit es zu einer präferierten Ausbreitungsrichtung des E-Feldes kommt. Wie ist das aber nun zu verstehen? Hierfür wird wieder die Zerlegung eines Atoms in einen Winkelanteil und einen Radialanteil betrachtet. Der Radialanteil ist für den Fall des Wasserstoffatoms reell, sodass eine Komplexifizierung nur durch den Winkelanteil der Wellenfunktion stattfinden kann. Nun wird sich auf die ersten zwei Energieniveaus des Wasserstoffatoms beschränkt. Hier handelt es sich nun um ein degeneriertes Zwei-Niveau-System mit 4 Zuständen. In Abbildung 4.1 ist ein

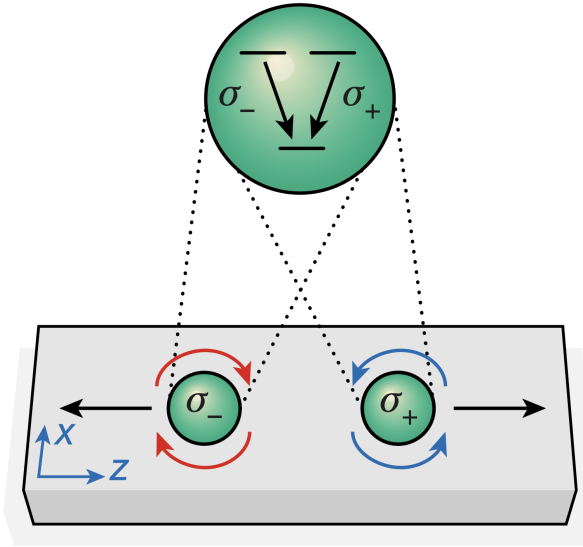


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des Zusammenhangs der Präparation des Atoms und der Richtungsabhängigkeit der Strahlung. Das Atom kann in grundlegend zwei verschiedenen Energie-Zuständen (σ_+ , σ_-) präpariert werden, die zu einer unterschiedlichen Richtung der Strahlung führen. Der entscheidende Unterschied ist der Drehimpuls des Atoms, welcher durch blaue und rote kreisende Pfeile gekennzeichnet ist. Die zu der Symmetrieebene parallelen Achsen sind die x , z -Achsen. Entnommen wurde die Abbildung aus Ref. [20].

solches System mit den relevanten Zuständen skizziert ($m = 0$ führt zu keiner Richtungsabhängigkeit, sodass dieser Zustand nicht dargestellt ist). Wie bereits erwähnt, kann ein komplexes Dipolmoment nur über eine komplexe Kugelflächenfunktion erreicht werden. Dies ist aber nur für $m \neq 0$ der Fall. Intuitiv ist es im Ortsraum ersichtlich, da das Orbital zugehörig zu $m = 0$

rotationssymmetrisch um die z-Achse ist, es also im betrachteten System keine Möglichkeit gibt irgendeine Symmetrie zu brechen. Je nachdem, ob man links und rechts über die x-Achse oder y-Achse definiert, bricht entweder das Orbital $m = -1$ oder $m = +1$ die Symmetrie, sodass es zu einer Richtungsabhängigkeit kommt. Ist also ein Atom in einem entsprechenden Zustand präpariert, besitzt es ein Drehmoment, welches an das abgestrahlte Licht abgegeben wird und führt so zu einer Richtungsabhängigkeit. In Ref. [21] ist ein Beispiel für einen spezifischen Übergang des Caesium Atoms gegeben mit:

$$\mathbf{d}^{(R)} = d\mathbf{e}_x, \quad \mathbf{d}^{(I)} = d\mathbf{e}_z \quad \text{und} \quad d = 1.9 \times 10^{-20} \text{Cm},$$

sodass

$$\Delta\gamma = -\frac{d^2}{\hbar\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x s_y(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega_A) \quad (4.6)$$

Nun bleibt also nur s_y zu berechnen. Eine ausführliche Rechnung ist im Anhang A.3 zu finden. Es ergibt sich:

$$s_y = -\frac{k_x}{2\epsilon_0} \text{Im} \left[r_p e^{-2\kappa z} \right]$$

Einsetzen in Gleichung (4.6) und umformen zu Polarkoordinaten ergibt nach Integration über den Winkelanteil:

Richtungsabhängige Zerfallsrate eines Atoms mit Drehimpuls

$$\Delta\gamma = \frac{d^2}{\hbar\pi^2\epsilon_0} \text{Im} \left[\int_0^{\infty} dk r_p k^2 e^{-2\kappa z} \right] \quad (4.7)$$

Mit dieser Berechnung wird die Richtungsabhängigkeit für ein Rubidium Atom in Abhängigkeit des Abstands des Atoms zu der planaren Struktur numerisch evaluiert. Das Material ist hier ein Gold~Silber ähnliches Metall modelliert durch das Drude-Modell mit Parametern aus Tabelle 3.1. In Abbildung 4.2 werden drei verschiedene Bereiche ersichtlich. Im Nahfeld bis ca. $0.7 \frac{c}{\omega_R}$ ist die Richtungsabhängigkeit vor einer Platte größer als die vor einem Halbraum. In beiden Fällen ist eine Sättigung bei einer vollständigen einseitigen Abstrahlung des E-Feldes zu erkennen. Im zweiten Bereich von ca. $0.7 \frac{c}{\omega_R}$ bis ca. $1 \frac{c}{\omega_R}$ gibt es einen Wechsel der Stärke der Richtungsabhängigkeit, die vor einer Platte wird kleiner als die vor einem Halbraum. Im Fernfeld sind ähnlich wie bei der Zerfallsrate Oszillationen zu erkennen.

Wird nun das Atom genau an den Schnittpunkt positioniert (dieser liegt bei ca. 107 nm), bei welchem der Wechsel stattfindet, so ist ein interessantes Verhalten der Richtungsabhängigkeit zu begutachten.

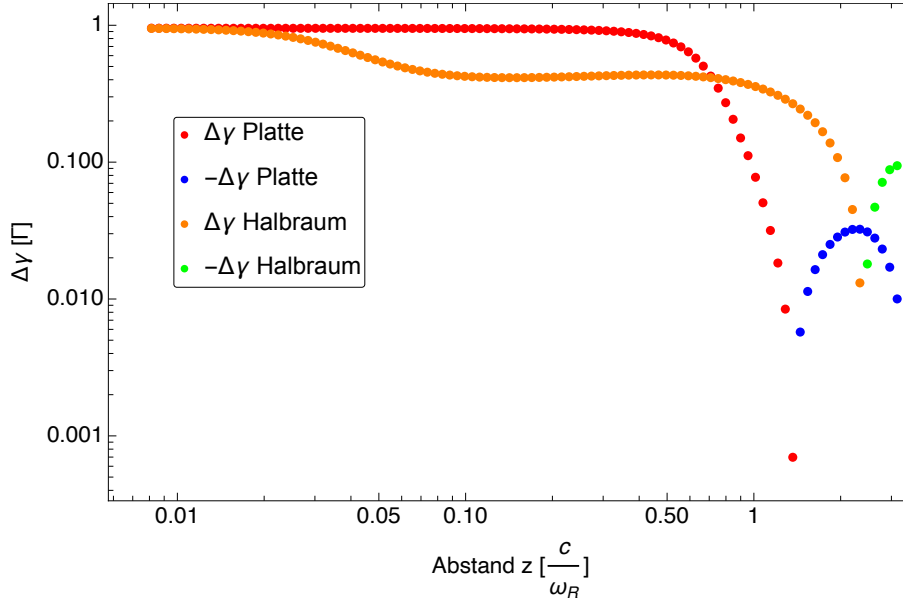


Abbildung 4.2: Richtungsabhängige Zerfallsrate in Abhängigkeit des Abstands z vor einem Halbraum und einer Platte mit Dicke 2nm bei der Frequenz ω_R im Drude-Modell. Die richtungsabhängige Zerfallsrate ist auf die Zerfallsrate normiert.

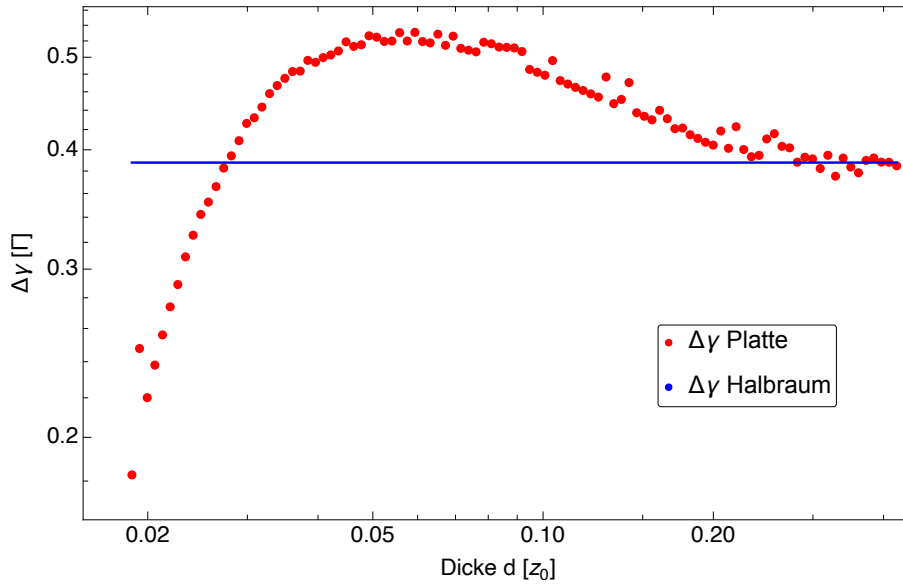


Abbildung 4.3: Richtungsabhängige Zerfallsrate vor einer Platte in Abhängigkeit der Dicke d bei einem Abstand von 107nm bei der Frequenz ω_R im Drude Modell.

Aus Abbildung 4.3 wird ersichtlich, dass durch Variation der Dicke der Platte die Richtungsabhängigkeit maximiert oder stark vermindert werden kann. Die Verminderung ist intuitiv durch das Propagieren von SPLs zu verstehen. Durch das abgestrahlte evaneszente Dipol-Feld werden SPLs im Material angeregt. Bei einem Halbraum werden also auf der Oberfläche entweder nach rechts oder nach links propagierende SPLs angeregt. Wird dieser aber durch eine Unterseite begrenzt, können auf dieser auch SPLs angeregt werden (siehe Abb. 4.4). Diese werden umso stärker je näher das Atom über der Platte positioniert ist, da dann das evaneszente Feld auch die Unterseite erreicht. Da die Platte spiegelsymmetrisch ist, propagieren sie entgegengesetzt der Richtung der auf der anderen Oberfläche, führen also zu einer Verminderung

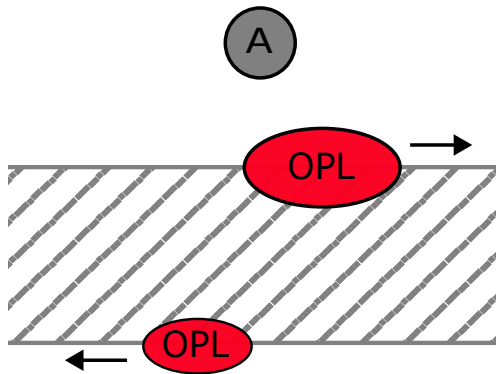


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der Propagation zweier Oberflächen-Plasmon-Polaritonen in entgegengesetzter Richtung (Rot), die durch abgestrahltes Licht eines Atoms (Grau) angeregt wurden.

der Richtungsabhängigkeit.

Fazit und Ausblick

Die spontane Zerfallsrate hat sich als eine fundamentale Größe der Quanten-Elektrodynamik herausgestellt. Die Rate im Vakuum stößt interessante Diskussionen über die Nullpunktsenergie und Vakuumfluktuationen an, denn obwohl sich das System im Grundzustand befindet, existiert eine Zerfallsrate. Also ist der Zustand mit geringster Energie nicht so trivial, wie man zu Beginn glauben könnte. Das Phänomen gibt es nur in der Quantenmechanik und nicht in der klassischen Physik. Darüber hinaus erlaubt es der Green-Tensor-Formalismus, das Atom nicht nur im Vakuum, sondern auch neben makroskopischen Objekten zu platzieren. In anderen Worten wird also versucht, die Fluktuationen im Vakuum mit einem Material zu beeinflussen. In dieser Arbeit wurde in diesem Kontext die Zerfallsrate eines Atom in der Nähe makroskopischer Strukturen untersucht. Insbesondere wurde dann die Abhängigkeit der Zerfallsrate von Größen wie Dicke des Materials oder dem Abstand zu diesem untersucht. Mit beiden in der Arbeit diskutierten planaren Strukturen, einem Halbraum und einer Platte, konnte so die Zerfallsrate signifikant beeinflusst werden.

Bei Positionierung über einem Halbraum kann durch die Variation des Abstands die Zerfallsrate bis auf $0.8 \Gamma_{\text{Vak}}$ vermindert oder auf mehr als $10^6 \Gamma_{\text{Vak}}$ verstärkt werden. Grund für die Verstärkung sind Resonanzen, die an der Grenzfläche auftreten können, die Oberflächen-Plasmon-Polaritonen oder Oberflächen-Plasmon-Phononen. Die Zerfallsrate kann dabei nicht nur durch die Variation des Abstands, sondern auch durch Variation der Übergangsfrequenz manipuliert werden. Dies liegt daran, dass durch Wahl der Frequenz eine bessere oder schlechtere Kopplung der Oberflächen-Resonanzen gewählt werden kann. Hier kann die Rate bei festen Abständen um Größenordnungen verändert werden. Bei Positionierung vor einer Platte werden selbige Effekte sichtbar. Hinzu kommt noch die Möglichkeit, die Dicke der Platte zu wählen. Und auch hier zeigt sich insbesondere bei Metallen, dass es sogar eine optimale Dicke der Platte zum Verstärken der Zerfallsrate gibt.

Zusätzliches Ziel der Arbeit ist die Untersuchung der Richtungsabhängigkeit der Strahlung. Gemeint ist damit, dass bei Berechnung der Zerfallsrate nur der Anteil des abgestrahlten Lichtes berücksichtigt wird, der in eine bestimmte Richtung propagiert. Solch eine Richtungsabhängigkeit wurde bei entsprechender Präparation des Atoms gefunden. Diese Richtungsabhängigkeit kann wieder durch Variation des Abstandes zu makroskopischen Materialien beeinflusst werden. Für kleine Abstände kann man das System zu einer vollständig einseitigen Abstrahlung zwingen, also das Licht propagiert nur nach links oder rechts parallel zu der Symmetrieebene. Bei Positionierung vor einer Platte aus Metall wurde auch hier eine optimale Dicke der Platte für eine möglichst große einseitige Strahlung gefunden. Zudem kann durch eine sehr dünne Platte wieder eine homogene Strahlung in alle Raumrichtungen erzielt werden.

Die Ergebnisse der Zerfallsrate können nun bei der Mikroskopie von Nanostrukturen wie in Ref. [22] eingesetzt werden. Für eine bessere Beschreibung des Atoms können auch andere Modelle

für den Dipoloperator, wie z. B. der des harmonischen Oszillators, oder insbesondere im Fall der richtungsabhängigen Zerfallsrate, der eines 4-Zustand-Systems, wie in Ref. [23] verwendet werden. Auch kann das Materialmodell zu einem Drude-Lorentz-Modell, also ein Material mit sowohl freien als auch gebundenen Elektronen verändert werden. Es können auch nicht-lokale Materialien in Betrachtung gezogen werden.

Die errechneten Ergebnisse für die Richtungsabhängigkeit sind auch in Hinblick auf die Untersuchung von fortschrittlichen photonischen Nanostrukturen („advanced photonic nanostructures“) relevant. Konkret kann eine richtungsabhängige Photonen-Emission, wie in Ref. [20] mit Hilfe der Präparation des Drehimpulses des Atoms erreicht werden.

A.1 Fermis Goldene Regel

Hier werden die Schritte zur Berechnung der Dissipationsrate einmal ausführlich erklärt.

A.1.1 Lemma: Identität zwischen Distributionen

Es wird das Integral

$$\int_0^\infty d\tau e^{i\omega\tau}, \quad (\text{A.1})$$

durch Wahl des konkreten Weges in der komplexen Ebene parallel zu der imaginären Achse regularisiert zu

$$\equiv \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_0^\infty d\tau e^{i(\omega+i\epsilon)\tau} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} -\frac{1}{i(\omega+i\epsilon)}.$$

Nun ist

$$\frac{1}{\omega+i\epsilon} = \frac{\omega}{\omega^2+\epsilon^2} - i\frac{\epsilon}{\omega^2+\epsilon^2}.$$

Nun gilt für eine Schwartz-Funktion φ z.B.

$$\begin{aligned} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left\langle \frac{\epsilon}{\omega^2+\epsilon^2} \middle| \varphi \right\rangle &= \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\epsilon}{\omega^2+\epsilon^2} \varphi(\omega) \\ &= \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{1}{\omega^2+1} \varphi(\epsilon\omega) \quad \left| \omega \rightarrow \epsilon\omega \text{ mit } \epsilon > 0 \right. \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{1}{\omega^2+1} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \varphi(\epsilon\omega) \quad \left| \text{Satz von der monotonen Konvergenz} \right. \\ &= \varphi(0) \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{1}{\omega^2+1} = \pi\varphi(0) = \langle \pi\delta_0 | \varphi \rangle \end{aligned}$$

Analog kann gezeigt werden, dass

$$\lim_{\epsilon \rightarrow 0} \left\langle \frac{\omega}{\omega^2+\epsilon^2} \middle| \varphi \right\rangle = \left\langle \text{P} \left[\frac{1}{\omega} \right] \middle| \varphi \right\rangle$$

gilt. Zusammenfassend ist also das Integral (A.1) durch oben erwähnte Regularisierung gegeben durch

$$\int_0^\infty d\tau e^{i\omega\tau} = i\text{P} \left[\frac{1}{\omega} \right] + \pi\delta_0. \quad (\text{A.2})$$

Zurück zu Gleichung (2.2). Die zeitliche Ableitung der Übergangswahrscheinlichkeit, unter Berücksichtigung von $|z|^2 = zz^*$, hat die Form

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} P_{i \rightarrow f}(t - t_i) &= \frac{|\langle f | \hat{H}_I | i \rangle|^2}{\hbar^2} \left(\left[\int_{t_i}^t dt' e^{-\frac{i}{\hbar}(E_i - E_f)t'} \right] \cdot e^{\frac{i}{\hbar}(E_i - E_f)t} + c.c. \right) \\ &= \frac{|\langle f | \hat{H}_I | i \rangle|^2}{\hbar^2} 2 \text{Re} \left[\int_{t_i}^t dt' e^{-\frac{i}{\hbar}(E_i - E_f)(t' - t)} \right]. \end{aligned}$$

Bei Approximation des Zeitpunkts zu welchem der Anfangszustand kreiert wurde, zu $-\infty$, und zu welchem gemessen wird, zu ∞ , folgt

$$\begin{aligned} \lim_{-t_i, t \rightarrow \infty} \frac{d}{dt} P_{i \rightarrow f} &= \lim_{-t_i, t \rightarrow \infty} \frac{|\langle f | \hat{H}_I | i \rangle|^2}{\hbar^2} 2 \text{Re} \left[\int_{t_i}^t dt' e^{-\frac{i}{\hbar}(E_i - E_f)(t' - t)} \right] \quad \left| \tau = -(t' - t) \right. \\ &= \frac{|\langle f | \hat{H}_I | i \rangle|^2}{\hbar^2} 2 \text{Re} \left[- \int_{t-t_i}^0 dt' e^{\frac{i}{\hbar}(E_i - E_f)\tau} \right] \\ &= \frac{|\langle f | \hat{H}_I | i \rangle|^2}{\hbar^2} 2 \text{Re} \left[\int_0^{t-t_i} dt' e^{\frac{i}{\hbar}(E_i - E_f)\tau} \right] \quad \left| \text{siehe Lemma A.1.1} \right. \\ &= \frac{|\langle f | \hat{H}_I | i \rangle|^2}{\hbar^2} 2 \pi \delta \left(\frac{E_i - E_f}{\hbar} \right) = \gamma_{i-f}. \end{aligned}$$

A.2 Pole des Reflektionskoeffizienten der Platte für p-Polarisiertes Licht in Nahfeldnäherung

Es werden nun die Pole des Reflektionkoeffizienten der Platte in der Nahfeldnäherung berechnet. Die Reflektionkoeffizienten lauten:

$$r_{Pl} = \frac{r_P(1 - e^{-2\kappa d})}{1 - r_P^2 e^{-2\kappa d}} \approx \frac{\eta(1 - e^{-2\kappa d})}{1 - \eta^2 e^{-2\kappa d}}.$$

Für die Pole gilt also nun:

$$0 = 1 - \eta^2 e^{-2\kappa d} = 1 - (\eta e^{-\kappa d})^2$$

Mit der dritten Binomischen folgt:

$$0 = 1 \pm \eta e^{-kd} \Rightarrow \epsilon = \frac{1 \mp e^{kd}}{(1 \pm e^{kd})} = \alpha_{\pm}$$

Im Drude-Modell gilt also

$$\begin{aligned} 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} = \alpha &\Leftrightarrow \omega^2 + i\gamma\omega - \frac{\omega_p^2}{1 - \alpha} = 0 \\ \Rightarrow \omega_{\pm} = \frac{-i\gamma}{2} \pm \sqrt{\frac{\omega_p^2}{1 - \alpha} - \frac{\gamma^2}{4}}. \end{aligned}$$

Für α_{\pm} gilt folgendes

$$\begin{aligned} \alpha_+ &= \frac{1 - e^{kd}}{(1 + e^{kd})} \xrightarrow{d \rightarrow \infty} -1 \\ \alpha_- &= \frac{1 + e^{kd}}{(1 - e^{kd})} \xrightarrow{d \rightarrow \infty} -1, \end{aligned}$$

sodass im Grenzfall für eine große Dicke ω_{SPL} des Halbraumes ergibt

$$\omega = \sqrt{\frac{\omega_p^2}{2} - \frac{\gamma^2}{4}}.$$

Analog kann dies für das Lorentz-Modell durchgeführt werden.

A.3 Berechnung der Koordinaten zur Basis von antisymmetrischen Matrizen

Um die Koordinaten zu den Basisvektoren zu finden, wird die Basisdarstellung in diesen benutzt. Analog zu Gleichung (4.3) gilt

$$\underline{G}_{\mathcal{J}} = \underline{\Sigma} + \mathbf{s} \cdot \underline{\mathbf{L}},$$

mit $(\underline{\mathbf{L}}_k)_{ij} = -i\epsilon_{kji}$:

$$\underline{\mathbf{L}}_1 = -i \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & -1 & 0 \end{pmatrix} \quad \underline{\mathbf{L}}_2 = -i \begin{pmatrix} 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad \underline{\mathbf{L}}_3 = -i \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Für die weitere Berechnung wird die Form der Green-Dyade aus Gleichung (4.1) benutzt

$$G_{\mathcal{J}} = \frac{\underline{G}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega_A) - \underline{G}^{\dagger}(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega_A)}{2i}.$$

Um \mathbf{s} zu bestimmen, werden die Koeffizienten herausprojiziert

$$s_k = \frac{\text{Tr} [G_{\mathfrak{I}} \underline{\mathbf{L}}_k]}{2} .$$

Also:

$$\begin{aligned} s_x &= \frac{-i}{2} \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} G_{\mathfrak{I},xx} & G_{\mathfrak{I},xy} & G_{\mathfrak{I},xz} \\ G_{\mathfrak{I},yx} & G_{\mathfrak{I},yy} & G_{\mathfrak{I},yz} \\ G_{\mathfrak{I},zx} & G_{\mathfrak{I},zy} & G_{\mathfrak{I},zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & -1 & 0 \end{pmatrix} \right] \\ &= \frac{-i}{2} \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} 0 & & \\ & -G_{\mathfrak{I},yz} & \\ & & G_{\mathfrak{I},zy} \end{pmatrix} \right] \\ &= \frac{-i}{2} (G_{\mathfrak{I},zy} - G_{\mathfrak{I},yz}) \end{aligned}$$

Werden nun explizit die Komponenten mit Hilfe von Gleichung (1.35) eingesetzt, so ergibt sich

$$\begin{aligned} G_{\mathfrak{I},zy} &= \frac{1}{2i} \left(\frac{\kappa}{2\epsilon_0} r_p (\mathbf{p}_+ \mathbf{p}_-)_{zy} e^{-2\kappa z} - \frac{\kappa^*}{2\epsilon_0} r_p^* (\mathbf{p}_+ \mathbf{p}_-^\dagger)_{zy} e^{-2\kappa^* z} \right) \\ &= \frac{1}{2i} \left(\frac{\kappa}{2\epsilon_0} r_p \begin{pmatrix} -i \frac{k_y}{\kappa} \end{pmatrix} e^{-2\kappa z} - \frac{\kappa^*}{2\epsilon_0} r_p^* \begin{pmatrix} -i \frac{k_y}{\kappa^*} \end{pmatrix} e^{-2\kappa^* z} \right) \\ &= -\frac{k_y}{4\epsilon_0} (r_p e^{-2\kappa z} - r_p^* e^{-2\kappa^* z}) \\ &= -\frac{ik_y}{2\epsilon_0} \text{Im} [r_p e^{-2\kappa z}] . \end{aligned}$$

Da gilt $(\mathbf{p}_+ \mathbf{p}_-^\dagger)_{zy} = -(\mathbf{p}_+ \mathbf{p}_-^\dagger)_{yz}$ und $(\mathbf{p}_+ \mathbf{p}_-)_{zy} = -(\mathbf{p}_+ \mathbf{p}_-)_{yz}$ gilt $G_{\mathfrak{I},zy} = G_{\mathfrak{I},yz}$, sodass

$$s_x = -\frac{k_y}{2\epsilon_0} \text{Im} [r_p e^{-2\kappa z}] .$$

Dieser Term ist ungerade in k_y und es wird über diese Variable symmetrisch integriert. Deswegen fällt diese Komponente weg. Nun zur y -Komponente

$$\begin{aligned}
 s_y &= \frac{-i}{2} \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} G_{\mathfrak{I},xx} & G_{\mathfrak{I},xy} & G_{\mathfrak{I},xz} \\ G_{\mathfrak{I},yx} & G_{\mathfrak{I},yy} & G_{\mathfrak{I},yz} \\ G_{\mathfrak{I},zx} & G_{\mathfrak{I},zy} & G_{\mathfrak{I},zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} \right] \\
 &= \frac{-i}{2} \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} G_{\mathfrak{I},xz} & & \\ & 0 & \\ & & -G_{\mathfrak{I},zx} \end{pmatrix} \right] \\
 &= \frac{-i}{2} (G_{\mathfrak{I},xz} - G_{\mathfrak{I},zx}) .
 \end{aligned}$$

Jetzt werden wieder die Komponenten der Dyade eingesetzt. Jedoch sind die Matrixelemente gleich bis auf Vertauschung von x und y , sodass

$$s_y = -\frac{k_x}{2\epsilon_0} \text{Im} \left[r_p e^{-2\kappa z} \right] .$$

Zu guter Letzt die z -Komponente:

$$\begin{aligned}
 s_z &= \frac{-i}{2} \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} G_{\mathfrak{I},xx} & G_{\mathfrak{I},xy} & G_{\mathfrak{I},xz} \\ G_{\mathfrak{I},yx} & G_{\mathfrak{I},yy} & G_{\mathfrak{I},yz} \\ G_{\mathfrak{I},zx} & G_{\mathfrak{I},zy} & G_{\mathfrak{I},zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \right] \\
 &= \frac{-i}{2} \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} G_{\mathfrak{I},xy} & & \\ & -G_{\mathfrak{I},yx} & \\ & & 0 \end{pmatrix} \right] \\
 &= \frac{-i}{2} (G_{\mathfrak{I},xy} - G_{\mathfrak{I},yx}) .
 \end{aligned}$$

Bei einsetzen der Dyade ist ersichtlich, dass diese Komponente ungerade in k_x und k_y ist. Da in k_y Symmetrisch integriert verschwindet der Term, sodass $s_z = 0$. Dies bedeutet, dass es egal ist, ob links-/rechtspropagierenden Licht, oder nach oben-/untenpropagierenden Licht untersucht wird, die s_z Komponente immer verschwindet. Übrig bleibt also nur die s_y Komponente, dessen

Integral mit Polarkoordinaten auf ein 1-Dimensionales Integral heruntergebrochen wird

$$\begin{aligned}
 s_y(\mathbf{k}_{\parallel}, z, \omega_A) &= -\frac{k_x}{2\epsilon_0} \operatorname{Im} \left[r_p e^{-2\kappa z} \right] \\
 \Rightarrow -\frac{1}{2\epsilon_0} \operatorname{Im} \left[\int_{-\infty}^{\infty} dk_y \int_0^{\infty} dk_x r_P k_x e^{-2\kappa z} \right] &= -\frac{1}{2\epsilon_0} \operatorname{Im} \left[\int_{-\frac{\pi}{2}}^{\frac{\pi}{2}} d\phi \int_0^{\infty} dk r_P k^2 \cos(\phi) e^{-2\kappa z} \right] \\
 &= -\frac{1}{\epsilon_0} \operatorname{Im} \left[\int_0^{\infty} dk r_P k^2 e^{-2\kappa z} \right].
 \end{aligned}$$

A.4 Nahfeldnäherung im Lorentz-Modell

Es wurde in Abbildung 3.10 gezeigt, dass die Nahfeldnäherung nicht gut mit den numerisch berechneten Werten übereinstimmt. In Abbildung A.1 ist zu erkennen, dass für den Fall, dass alle Parameter wie in Tabelle 3.2 mit dem Unterschied, dass strak gebundene Zustände vernachlässigt werden (siehe Abschnitt 1.3), also $\epsilon_{\infty} = 1$ verwendet werden, die Nahfeldnäherung sehr gut mit den numerischen Werten übereinstimmt.

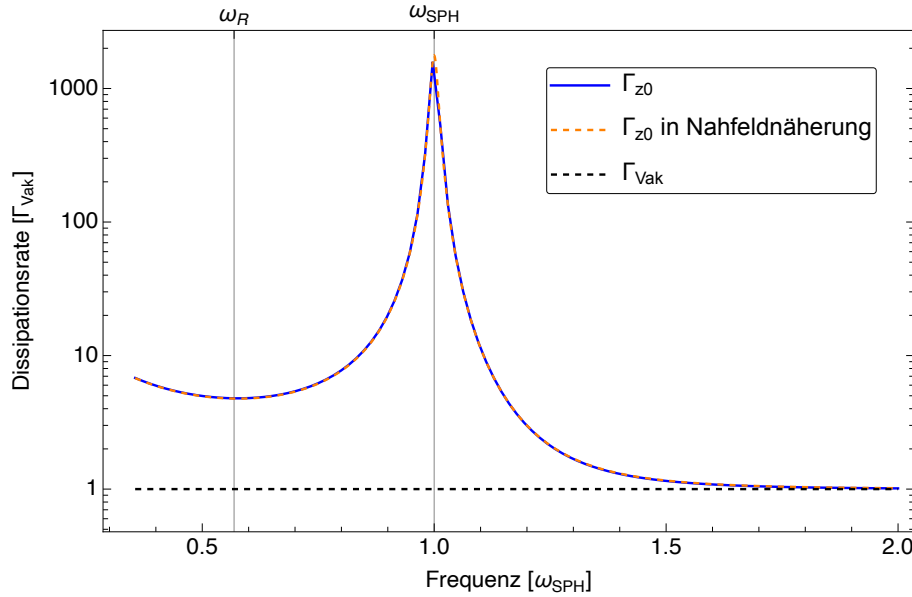


Abbildung A.1:

Spontane Dissipationsrate eines Zwei-Zustand-Systems vor einem Halbraum, dessen materielle Eigenschaft durch das Lorentz-Modell beschrieben wird (bei welchem $\epsilon_{\infty}=1$) in Abhängigkeit der Frequenz für einen festen Abstand $z_0 = 5\text{nm}$. Die Zerfallsrate ist auf die im Vakuum normiert.

Danksagung

Ich möchte mich bei Herrn Dr. Francesco Intravaia bedanken. Von Beginn der Bachelorarbeit bis zum Ende und auch darüber hinaus kann ich mich immer auf seine Hilfe und Erklärungen verlassen. Der Umfang und die Sorgfalt, mit der ich bei dieser Bachelorarbeit von ihm unterstützt wurde, ist einzigartig. Vielen Dank.

Nicht nur von Herrn Dr. Intravaia, sondern auch von vielen Anderen aus der Forschungsgruppe wurde ich sowohl fachlich als auch persönlich unterstützt. Danken möchte ich insbesondere dafür Šimon Gabaj, Viktor Bender und Bettina Beverungen.

Natürlich wäre das alles nicht ohne meine Eltern möglich. Danke dafür.

1. S. A. Maier, *Plasmonics Fundamentals and Applications* (Springer, 2007).
2. J. D. Jackson, *Klassische Elektrodynamik* (de Gruyter, 2006).
3. E. Hecht, *Optics* (Addison Wesley Longman, 1998).
4. B. Zhang u. a., "Relevance of sub-surface chip layers for the lifetime of magnetically trapped atoms", *Eur. Phys. J. D* 35, 97–104 (2005).
5. L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics* (Cambridge University Press, 2012).
6. S. Y. Buhmann, *Dispersion Forces I* (Springer Berlin, Heidelberg, 2015).
7. F. Intravaia, R. O. Behunin, C. Henkel, K. Busch and D. A. R. Dalvit, "Non-Markovianity in atom-surface dispersion forces", *Phys. Rev. A* 94, 042114 (2016).
8. F. Intravaia, "An alternative perspective on the theory of atomic decay", in Vorbereitung (2024).
9. W. Nolting, *Grundkurs Theoretische Physik 5/2* (Springer, 2002).
10. M. Eisermann, "Tensorprodukt", <https://pnp.mathematik.uni-stuttgart.de/igt/eiserm/lehre/Lineare-Algebra/LinA-S-1x1.pdf>, Stand: 14.02.2024.
11. I. R. Kenyon, *Quantum 20/20 Fundamentals, Entanglement, Gauge Fields, Condensates and Topology* (Oxford University Press, 2020).
12. R. Kubo, "The fluctuation-dissipation theorem", *Rep. Prog. Phys.* 29, 225 (1966).
13. M. OpenCourseWare, "Interaction of Light and Matter", https://ocw.mit.edu/courses/6-974-fundamentals-of-photonics-quantum-electronics-spring-2006/d5288733649df15f5903633f51ad2dbd_inter_lig_matter.pdf, 2006.
14. L. Knöll, S. Scheel and D.-G. Welsch, "QED in Dispersing and Absorbing Media", (2001).
15. F. Intravaia u. a., "Strong Casimir force reduction through metallic surface nanostructuring", *nature communications* (2013).
16. C. Tserkezis, P. E. Stamatopoulou, C. Wolff and N. A. Mortensen, "Self-hybridisation between interband transitions and Mie modes in dielectric nanoparticles", (2023).
17. D. A. Steck, "Rubidium 87 D Line Data", <http://steck.us/alkalidata>, revision 2.0.1, 2 May 2008.
18. H. Qing, "Propagating surface plasmon polaritons", https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Propagating_surface_plasmon_polaritons.jpg, 2021.
19. Larkin, "Dipolar emitters at nanoscale proximity of metal surfaces: Giant enhancement of relaxation in microscopic theory.", *Phys. Rev. B*, 69:121403(R) (2004).
20. P. Lodahl u. a., "Chiral quantum optics", *Nature* 541, 473–480 (2017).

21. R. R. Q. P. T. O. Weernik, P. Barcellona and S. Y. Buhmann, "Lateral Casimir-Polder forces by breaking time-reversal symmetry", *Phys. Rev. A* **97**, 032507 (2018).
22. A. W. Schell *u. a.*, "Scanning Single Quantum Emitter Fluorescence Lifetime Imaging: Quantitative Analysis of the Local Density of Photonic States", *Nano Letters* **14**, 2623 (2014).
23. D. F. V. James, "Frequency shifts in spontaneous emission from two interacting atoms", *Phys. Rev. A* **47**, 1336 (1993).

Selbstständigkeitserklärung

Ich erkläre hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und noch nicht für andere Prüfungen eingereicht habe. Sämtliche Quellen einschließlich Internetquellen, die unverändert oder abgewandelt wiedergegeben werden, insbesondere Quellen für Texte, Grafiken, Tabellen, Bilder sowie die Nutzung von Künstlicher Intelligenz für die Erstellung von Texten und Abbildungen, sind als solche kenntlich gemacht. Mir ist bekannt, dass bei Verstößen gegen diese Grundsätze ein Verfahren wegen Täuschungsversuchs bzw. Täuschung eingeleitet wird.

Berlin, 22.02.2024

