

Untersuchung elektromagnetisch induzierter Transparenz für das kontinuierliche Vier-Wellen-Mischen

Dissertation
der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von
Birgit Henrich
aus Pforzheim

München, im April 2005

- | | | |
|--------------|---|-----------------------------|
| 1. Gutachter | : | Prof. Dr. Theodor W. Hänsch |
| 2. Gutachter | : | Prof. Dr. Jochen Walz |

Tag der mündl. Prüfung : 27. April 2005

Unwissenheit
ist die Wurzel
aller Leiden.
(Budha)

Zusammenfassung

Kontinuierliche, kohärente Strahlung bei der $1S - 2P$ -Übergangsfrequenz des Wasserstoffatoms, kurz Lyman- α , wird eine Schlüsselrolle bei Experimenten mit Antiwasserstoffatomen spielen: Sie ist zum Laserkühlen und zur Spektroskopie unumgänglich. Für die Lyman- α -Strahlung gibt es seit einigen Jahren eine Reihe gepulster Quellen, deren Effizienz beim Kühlen gefangener Atome allerdings durch die Repetitionsrate und Bandbreite limitiert ist. Daher wurde vor wenigen Jahren in der Arbeitsgruppe von Prof. Hänsch eine kontinuierlich kohärente Lyman- α -Quelle durch Vier-Wellen-Mischen in Quecksilberdampf realisiert.

Die vorliegende Arbeit geht der Frage nach, wie durch elektromagnetisch induzierte Transparenz die Konversionseffizienz des Vier-Wellen-Mischens erhöht werden kann. Erstmals wurden in Quecksilberdampf gemischte Zustände induziert und eine Aufspaltung des Ein-Photonenübergangs $6^1S \rightarrow 6^3P$ und des Zwei-Photonenübergangs $6^1S \rightarrow 7^1S$ beobachtet. Dazu wurden kontinuierliche Laserlichtquellen für 254 nm und 408 nm aufgebaut, die jeweils in der Frequenz soweit durchgestimmt werden können, daß Spektroskopie an allen natürlichen Quecksilberisotopen vorgenommen werden konnte.

Die im Experiment beobachteten Effekte werden durch Rechnungen im Dichtematrixformalismus unter Berücksichtigung von Dopplerverbreiterung und endlicher Wechselwirkungszeit wiedergegeben. Dabei wurden auch Besonderheiten der Zwei-Photonenabsorption im von zwei starken kohärenten Lichtquellen getriebenen Drei-Niveausystem untersucht und im Modell der bekleideten Zustände erklärt.

Aus den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit lassen sich Anforderungen an eine künftige Apparatur ableiten, welche die Erzeugung von kontinuierlich kohärenter Lyman- α -Strahlung mit hoher Konversionseffizienz ermöglichen wird.

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|---|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Vier-Wellen-Mischen mit kontinuierlichen Fundamentalstrahlen | 7 |
| 2.1 | Herleitung der Fundamentalgleichung der Nichtlinearen Optik | 7 |
| 2.2 | Vier-Wellen-Mischen mit fokussierten Fundamentalstrahlen | 9 |
| 2.3 | Aufbau der Lyman- α -Quelle | 12 |
| 3 | Elektromagnetisch induzierte Transparenz | 16 |
| 3.1 | Dichtematrixformalismus | 17 |
| 3.2 | Rechnungen zum Zwei-Niveausystem mit Dopplereffekt | 19 |
| 3.3 | Induzierte Transparenz im Quecksilber-Isotopengemisch | 24 |
| 3.4 | Zwei-Photonenabsorption mit zwei starken kontinuierlich kohärenten Lichtfeldern | 35 |
| 3.4.1 | Konsistenz-Test der Rechnung | 37 |
| 3.4.2 | Asymmetrie der Populationsverteilung | 39 |
| 3.4.3 | Abhängigkeit der Zwei-Photonenabsorption von Probelaser- und Kopplungslaser-Verstimmung | 41 |
| 3.4.4 | Sättigung des Ein-Photonenübergangs bei verstimmtem Kopp- lungslaser | 43 |
| 3.4.5 | Isotopengemisch | 45 |
| 4 | Experiment | 51 |
| 4.1 | Erzeugung von kontinuierlich kohärenter Strahlung bei 254 nm und 408 nm | 51 |
| 4.2 | Herstellung der Glaszellen | 55 |
| 4.3 | Absorptionsmessungen | 55 |
| 4.4 | Quantitativer Vergleich von Messung und Rechnung im Drei-Niveau- System mit Dopplerverbreiterung | 58 |
| 4.5 | Induzierte Transmission | 62 |
| 4.5.1 | Aufbau und technische Details | 62 |
| 4.5.2 | Einfluß des Dopplereffekts | 62 |
| 4.5.3 | Interpretation des Photodiodensignals | 64 |
| 4.5.4 | Auswertung | 65 |
| 4.6 | Fluoreszenzmessungen | 71 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 4.6.1 | Gemischte Zustände durch Kopplung der Niveaus 6^3P und 7^1S . | 71 |
| 4.6.2 | EIT-ähnliche Fluoreszenz durch Dopplereffekt | 73 |
| 5 | Verbesserung der Konversionseffizienz des Vier-Wellen-Mischens | 78 |
| 5.1 | Atomdichte und Dopplereffekt | 78 |
| 5.2 | Laserleistung und Anregungsschema | 80 |
| 5.3 | Nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ | 83 |
| 5.4 | Phasenanpassung | 84 |
| 5.4.1 | Maximierung der Kohärenzlänge | 84 |
| 5.4.2 | Vektorielle Phasenanpassung | 85 |
| 5.4.3 | Fokussierte Gauß-Strahlen | 85 |
| 6 | Ausblick | 86 |
| A | Zusammenstellung der wichtigsten Quecksilberdaten | 88 |
| B | Mathematica Programme | 91 |
| | Literaturverzeichnis | 97 |

Kapitel 1

Einleitung

Nur wenige Themen der modernen Physik schaffen es, die Phantasie so vieler wissenschaftlich interessierter Menschen anzuregen, wie Antimaterie. Eine schöne Übersicht darüber, wie nahe sich Science-Fiction und Naturwissenschaft dabei kommen, ist in dem Buch [Forward and Joel, 1988] zu finden: Wurde beispielsweise der Antimaterieantrieb zunächst nur in Fernsehserien „verwendet“, so stellte sich heraus daß er aufgrund der hohen Kosten für den Transport von Masse ins All in der Raumfahrt wirtschaftlich verwendet werden kann: Der Preis für ein Milligramm Antimaterie müsste dafür auf unter 10^9 US-Dollar sinken. Zahlreiche Antriebskonzepte für den Treibstoff Antimaterie wurden bislang entwickelt, die Raumfahrt jenseits der mit konventionellem Treibstoff oder Solarenergie zugänglichen Ziele ermöglichen könnten [Marks, 2000].

Der erste Schritt zur experimentellen Entdeckung von Antiteilchen wurde bereits 1910 vom Jesuitenpriester Theodor Wulf unternommen. Er stellte fest, daß die Luft in großer Höhe (in seinem Fall die höchste Plattform des Eiffelturms) leitfähiger ist als am Boden. Der Österreicher Victor Hess führte weitere Messungen der Leitfähigkeit auf Ballonflüge durch. In einer Höhe von 5300 Metern war die Leitfähigkeit doppelt so groß wie am Boden. Man schloss daraus, daß etwas aus dem All die Leitfähigkeit der oberen Atmosphäre erhöht und dabei zu großen Teilen absorbiert wird. Robert Milikan schlug für diese Strahlung die Bezeichnung *cosmic rays* vor. Zur Untersuchung kosmischer Strahlung fehlte allerdings zunächst noch eine Nachweismethode. Sie wurde in Form der Nebelkammer ungefähr zehn Jahren später in Cambridge entwickelt. Damit bestand nun die Möglichkeit, einzelne Teilchen nachzuweisen.

Carl Anderson plante 1930 als Abschlußarbeit seines Studiums am Caltech die Untersuchung radioaktiver Strahlung mit Hilfe einer Nebelkammer in einem Magnetfeld in der Gruppe von Milikan. Bereits erste Aufnahmen seiner neuen Nebelkammer enthielten viele Spuren, die aussahen, als kämen sie von Elektronen, aber in die falsche Richtung gebogen waren. Es folgte ein langer Streit mit Milikan – der davon überzeugt war, es handele sich um Spuren von Protonen – über die Interpretation dieser Messung. Publiziert wurde die Aufnahme schließlich mit der Erklärung, es handele sich um Elektronen, die durch Stöße mit kosmischer Strahlung in die „falsche“ Richtung

fliegen, obwohl diese Erklärung der Geometrie von Andersons Apparatur widersprach.

Die Arbeiten von Dirac Ende der 20er Jahre über Antimaterie waren Anderson nicht bekannt, wohl aber dem Editor von *Science News Letters*, worin Anderson im Dezember 1931 eine seiner Nebelkammeraufnahmen veröffentlichte. Der Editor schlug Anderson vor, seine Spuren einem neuen Teilchen, dem *Positron* zuzuschreiben. Es dauerte noch ein weiteres Jahr, bis Anderson diese Interpretation trotz heftiger Kritik Milikans im September 1932 veröffentlichte [Fraser, 2000].

Als nächstes Antiteilchen wurde 1955 das Antiproton experimentell nachgewiesen [Chamberlain et al., 1955]. Weitere „neue“ Teilchen und Antiteilchen wurden an großen Beschleunigeranlagen wie dem CERN oder FermiLab seit den 70er Jahren erzeugt und nachgewiesen.

Antiwasserstoff

Auch 75 Jahre nach der Entdeckung der Antiteilchen sind noch viele Fragen ungeklärt, beispielsweise die Materie-Antimaterie-Asymmetrie oder das Verhalten von Antimaterie im Gravitationsfeld von Materie. Ein Gravitationsexperiment mit Positronen oder Antiprotonen ist extrem schwierig, da außer der Gravitationswechselwirkung noch die elektrostatische Wechselwirkung eine Rolle spielt und die Interpretation von Meßergebnissen schwierig macht [Darling et al., 1992]. Gravitationsexperimente mit elektrisch neutraler Antimaterie wären unempfindlich auf elektrische Streufelder und daher erstrebenswert. Das einfachste neutrale Antiatom ist das Antiwasserstoffatom bestehend aus einem Antiproton und einem Positron. 1996 gelang es erstmals, Antiwasserstoff herzustellen [Baur et al., 1996], doch waren die Antiatome mit ungefähr 90 % der Lichtgeschwindigkeit zu schnell, um über den reinen Nachweis hinausgehende Experimente durchzuführen.

Im Jahr 2002 gelang es zuerst der ATHENA-Kollaboration [Amoretti et al., 2002], kurz darauf auch der ATRAP-Kollaboration [Gabrielse et al., 2002a], Antiwasserstoff durch Drei-Körper-Stöße in verschachtelten Penningfallen in kryogener Umgebung herzustellen. Es folgten erste Zustandsmessungen [Gabrielse et al., 2002b], die Bestimmung der Geschwindigkeit der erzeugten Antiwasserstoffatome [Gabrielse et al., 2004b] sowie Experimente zur Erzeugung von Antiwasserstoff durch zweifachen Ladungstransfer mit Rydberg-Cäsium-Atomen [Gabrielse et al., 2004a], wofür aufgrund der Größe der Rydberg-Atome ein wesentlich höherer Wirkungsquerschnitt ergibt als für Drei-Körper-Stöße von Positronen und Antiprotonen.

Für weitere Experimente ist es wünschenswert, den erzeugten Antiwasserstoff berührungsfrei „festhalten“ zu können. Dazu eignet sich eine Magnetfalle, wie sie bereits vor 20 Jahren vorgestellt wurde [Migdall et al., 1985]. 1987 gelang erstmals das Speichern von Wasserstoff in einer solchen Falle [Hess et al., 1987]. In der Folgezeit beschäftigten sich einige Gruppen mit dem Fangen und Spektroskopieren von Wasserstoff in einer Magnetfalle, typischerweise wurden Fallentiefen von $\lesssim 1$ K erreicht.

Antiwasserstoffatome, die durch Drei-Körper-Stöße von Positronen und Antiprotonen erzeugt wurden, sind nach [Gabrielse et al., 2004b] zu schnell, um sie mit einer derartigen Falle fangen zu können. Eine geringere Geschwindigkeit verspricht man sich von der lasergetriebenen Erzeugung von Antiwasserstoff. Bislang wurde mit dieser Methode zwar weder eine höhere Produktionsrate von Antiwasserstoff noch eine geringere Temperatur als bei der Antiwasserstoffherzeugung mit Drei-Körper-Stößen nachgewiesen, doch stand für dieses Experiment am Ende der Strahlzeit letzten Jahres nur wenig Zeit zur Verfügung, so daß noch viele Möglichkeiten zur Optimierung dieser Methode bleiben.

Experimente an gefangenen Antiatomen rücken damit in greifbare Nähe. Neben den bereits erwähnten Gravitationsexperimenten sind vergleichende Präzisionsmessungen an Antiwasserstoff und Wasserstoff von enormem Interesse: Eine eventuelle Verletzung des CPT-Theorems¹ ließe sich auf diese Weise nachweisen [Blum et al., 1999]. Zum Vergleich kann die in Wasserstoff bereits sehr genau gemessene Übergangsfrequenz $1S \rightarrow 2S$ oder auch die Hyperfeinaufspaltung der Niveaus herangezogen werden. Die $1S \rightarrow 2S$ -Übergangsfrequenz und das $2S$ -Hyperfeinintervall wurden mit hoher Genauigkeit im Nachbarlabor gemessen [Fischer et al., 2004], [Kolachevsky et al., 2004]. Möglich wurden die Absolutfrequenzmessungen durch die ebenfalls in dieser Gruppe entwickelte Frequenzkette [Holzwarth et al., 2000].

Eine der experimentellen Herausforderungen wird das Laserkühlen der magnetisch gefangenen Antiwasserstoffatome darstellen. Im Magnetfeld der Falle spalten die Niveaus auf – in Abbildung 1.1 für die (Anti-)Wasserstoffniveaus $1S$, $2S$ und $2P$ dargestellt. Nur Atome in Zuständen, deren Energie mit steigendem Magnetfeld zunimmt, werden von der Magnetfalle gehalten. Bei Experimenten an gefangenem Antiwasserstoff ist besonders darauf zu achten, daß die Antiatome nicht durch Anregung oder Zerfall in einen nicht gefangenen Zustand gelangen, denn es werden ohnehin nur in der Größenordnung von 100 Antiteilchen in der Falle erwartet. Zum Vergleich dazu: Zur Absorptionsspektroskopie von gefangenem Wasserstoff wurde in der Gruppe um Prof. Walraven eine minimale Anzahl von $5 \cdot 10^8$ Wasserstoffatomen in der Falle benötigt [Luiten et al., 1993].

Zum Laserkühlen von Antiwasserstoff kann der Dipolübergang $1S \rightarrow 2P$ für einen geschlossenen Zyklus genutzt werden, dabei wird vom Kühllaser eine spektrale Breite gefordert, bei der eine Anregung in nicht gefangene magnetische Unterzustände sehr unwahrscheinlich ist. Die Übergangswellenlänge, Lyman- α , liegt mit 121,56 nm im Vakuum-Ultra-Violett. Mit einer gepulsten Lyman- α -Quelle wurde bereits das Laserkühlen einer gefangenen Wasserstoffatomwolke von 80 auf 8 mK in 15 min demonstriert [Setija et al., 1993]. Die Kühleffizienz ist bei gepulsten Quellen inzwischen weniger durch die Ausgangsleistung oder Bandbreite als durch die die Pulswiederholrate limitiert. Aus diesem Grund kann mit einem kontinuierlich kohärenten (cw) Kühlla-

¹engl.: Charge conjugation, Parity conjugation, Time reversal, also Ladungs-, Paritäts- und Zeitumkehr.

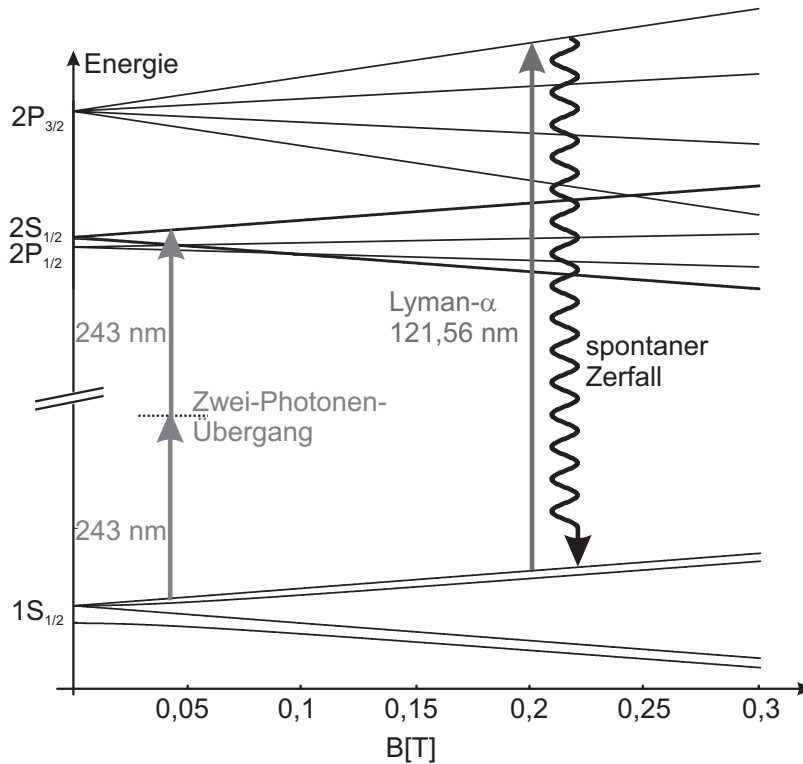


Abbildung 1.1: Aufspaltung der Niveaus $1S$, $2S$ und $2P$ des Wasserstoffatoms im Magnetfeld.

ser eine höhere Kühleffizienz als mit einem gepulsten Kühlaser bei gleicher mittlerer Leistung erreicht werden.

Eine Apparatur zur Erzeugung von kontinuierlich kohärenter Lyman- α -Strahlung wurde erstmals 1999 vorgestellt [Eikema et al., 1999]. Sie beruht auf dem nichtlinearen Prozeß des Vier-Wellen-Mischens, der in Kapitel 2 dieser Arbeit näher erläutert wird. Die Ausgangsleistung der Quelle von 20 nW [Eikema et al., 2001] entspricht der Durchschnittsleistung der gepulsten Lyman- α -Quelle, mit der bereits das Laser einer kalten Wasserstoffatomwolke demonstriert wurde [Setija et al., 1993].

Nichtlineare Optik

In den ersten Experimenten zu nichtlinearen Prozessen in der Optik konnten die Effekte nur mit leistungsstarken Lichtquellen beobachtet werden. Inzwischen sind die Parameter der nichtlinearen Prozesse so gut verstanden, daß es möglich wurde, sie mit wenigen Photonen zu treiben [Harris and Hau, 1999]. Dazwischen liegt die langwierige Entwicklung von Konzepten, die es erlauben, die Wechselwirkung zwischen Atom und Licht zu beschreiben, wobei Eigenschaften des Lichts wie beispielsweise die Kohärenz auf das Atom „übertragen“ werden können.

Der erste Schritt zum Verständnis der Atom-Licht-Wechselwirkung war bereits 1955 die Entdeckung der dynamischen AC-Stark-Aufspaltung durch Autler und Tow-

nes [Autler and Townes, 1955]. Sie beobachteten die Aufspaltung eines Niveaus unter Einfluß eines starken (nah-) resonanten Lichtfeldes, die darauf beruht, daß in dem Gesamtsystem aus Atom und starkem Lichtfeld nicht mehr die Atomniveaus, sondern die sogenannten *gemischten Zustände* Energieeigenzustände sind. 1969 veröffentlichte Mollow seine Arbeiten über den auf dem selben Effekt beruhenden Triplett in der Resonanzfluoreszenz eines Zwei-Niveau-Atoms [Mollow, 1969]. Sieben Jahre später wurde das Phänomen des CPT – die Abkürzung wird hier und im weiteren für **C**oherent **P**opulation **T**rapping, dem kohärenten Populationseinfang verwendet – erstmals im Experiment gezeigt [Alzetta et al., 1976]. 1991 prägte Prof. Harris [Boller et al., 1991] den Begriff der elektromagnetisch induzierten Transparenz (EIT) für das Verändern der Absorptions- und Dispersionseigenschaften eines Atoms durch kohärentes Mischen von Niveaus mit Hilfe eines Lichtfeldes. Dieses Phänomen wird in Kapitel 3.3 detailliert betrachtet.

Inzwischen wurde eine Fülle von Experimenten veröffentlicht, die sich Zunutze machen, daß die optischen Eigenschaften von Atomen bzw. Atomwolken durch Licht kontrollierbar sind. Ein neueres Beispiel hierfür ist das Speichern von Lichtpulsen [Hau et al., 1999]. Der selbe Effekt kann auch genutzt werden, um Selbstfokussierung und Strahldeformation durch die Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex zu verhindern; eine Übersicht findet man in [Harris, 1997].

Die Kontrolle von Brechungsindex und Absorptionskoeffizient erlaubt es, bei nichtlinearen Prozessen atomare Resonanzen zu nutzen, ohne dabei den Fundamentalstrahl durch Absorption zu verlieren und das nichtlineare Medium anzuregen. Die Resonanznähe wiederum erhöht die Effizienz nichtlinearer Prozesse und beeinflusst die Phasenanpassung, wodurch es möglich ist, auf hohe Leistungen in den Lichtfeldern zu verzichten.

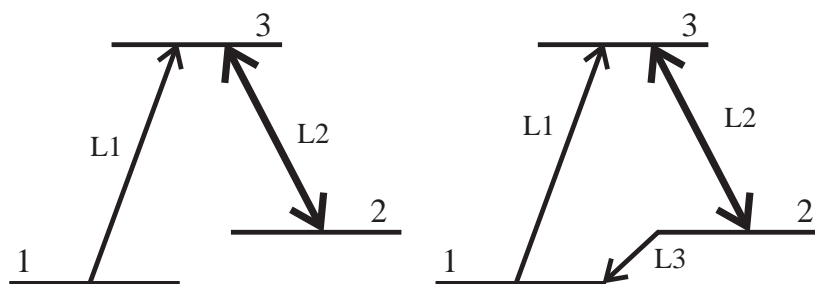


Abbildung 1.2: Links das offene, rechts das geschlossene Λ -System. Rechts wird die Phase zwischen L1, L2 und L3 (Lichtfeld oder große Zerfallskonstante) und den sich ausbildenden Kohärenzen für die optischen Eigenschaften des Atoms entscheidend sein.

In geschlossenen Systemen (siehe Abbildung 1.2, Skizze rechts) bildet sich eine sogenannte *globale Phase* aus, die großen Einfluß darauf hat, wie sich die Kopplung durch Lichtfelder in den optischen Eigenschaften des Atoms auswirkt [Huss et al., 2002], [Maichen et al., 1995], [Korsunsky et al., 1999]. Bei der Frequenzmischung beschreibt

die globale Phase auch den Energietransfer zwischen den verschiedenen Lichtstrahlen [Korsunsky and Kosachiov, 1999], [Morigi et al., 2002]. Die Kontrolle der Phase erlaubt Vier-Wellen-Mischen und parametrische Verstärkung selbst mit schwachen Lichtstrahlen [Babin et al., 2001], [Hinze et al., 2000].

Den zitierten Experimenten gemeinsam ist, daß ein für den speziellen zu untersuchenden Prozeß „geeignetes“ Atom gewählt wurde, das heißt meist ein Atom mit metastabilen Grundzuständen und Übergangsfrequenzen, für die kohärente Lichtquellen kommerziell erhältlich sind. Leider eignet sich keines dieser Elemente zur Summenfrequenzbildung von Lyman- α . Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt daher auf dem Übertragen der zitierten Arbeiten auf ein System, das sich sehr gut zur Erzeugung von Lyman- α eignet, an dem allerdings noch keine Messung atomarer Kohärenzeffekte erfolgte.

Die Ausgangssituation wird in Kapitel 2 mit der Beschreibung der bestehenden Lyman- α -Quelle vorgestellt. Dabei werden alle Parameter, die für die Effizienz des Vier-Wellen-Mischens von Bedeutung sind, erläutert. In Kapitel 3.3 werden die optischen Blochgleichungen zur Berechnung der Absorption und Dispersion mit induzierter Transparenz im Medium mit thermischer Geschwindigkeitsverteilung gelöst. Dabei wurde besonderes Augenmerk auf den Einfluß von EIT auf Zwei-Photonenabsorption gelegt, denn hier ist eine Vielzahl von Effekten möglich, die leicht zu einer Fehlinterpretation experimenteller Daten führt. Die experimentellen Ergebnisse zur kohärenten Kopplung von Quecksilberniveaus findet man in Kapitel 4, die Folgerungen aus diesen Messungen für die Effizienz des Vier-Wellen-Mischens werden in Kapitel 5 diskutiert. Eine Reihe möglicher Verbesserungen der Lyman- α -Quelle wird in Kapitel 6 vorgestellt. Ein Ausblick auf vielversprechende künftige Experimente zur Lyman- α -Erzeugung bildet den Abschluß der vorliegenden Arbeit.

Kapitel 2

Vier-Wellen-Mischen mit kontinuierlichen Fundamentalstrahlen

Die Effizienz eines mit kontinuierlicher Strahlung getriebenen nichtlinearen Prozesses hängt – mehr noch als ein vergleichbarer Prozeß mit gepulster Fundamentalstrahlung – wegen der geringeren Spitzenleistung von der optimalen Zusammenstellung der Prozeßparameter ab. In den folgenden beiden Abschnitten wird daher zunächst die Ausgangsleistung einer kontinuierlich kohärenten Lyman- α -Quelle berechnet und die einzelnen Beiträge beschrieben. Dabei wird deutlich, welche Parameter durch die Nutzung von induzierter Transparenz innerhalb des Vier-Wellen-Mischprozesses zur Erhöhung der Konversionseffizienz führen können. Mit dem Aufbau der cw Lyman- α -Quelle beschäftigt sich danach Kapitel 2.3.

2.1 Herleitung der Fundamentalgleichung der Nichtlinearen Optik

Die durch Lichtfelder verursachte Polarisierung eines Mediums kann in den meisten Fällen als linear angenommen werden. Bei ausreichend hoher Intensität der Fundamentalstrahlen ist allerdings die nichtlineare Polarisierung gegenüber der linearen nicht mehr vernachlässigbar und die gesamte Polarisierung des Mediums beträgt

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL} \quad (2.1)$$

$$\vec{P}^{NL} = \varepsilon_0(\chi^{(2)}\vec{E}\vec{E} + \chi^{(3)}\vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots). \quad (2.2)$$

Aus Symmetriegründen verschwinden in isotropen Medien die Suszeptibilitäten gerader Ordnung [Boyd, 1992]. Der erste in Gasen auftretende nichtlineare Prozeß ist demnach dritter Ordnung: Drei sogenannte *Fundamentalstrahlen* erzeugen eine vierte Welle, de-

ren Frequenz sich linear aus den Frequenzen der Fundamentalstrahlen ergibt:

$$\omega_4 = \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3; \quad \omega_4 > 0 \quad (2.3)$$

Der nichtlineare Prozeß dritter Ordnung wird daher als Vier-Wellen-Mischen bezeichnet. Die nichtlineare Suszeptibilität, die diesen Prozeß beschreibt, ist im allgemeinen Fall ein Tensor vierten Ranges mit 81 Komponenten¹:

$$P_i^{NL} = \varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_{1,j} E_{2,k} E_{3,l} \quad \text{mit } i, j, k, l \in \{x, y, z\} \quad (2.4)$$

Mit $E_{1,j}$ wird das Feld des ersten Fundamentalstrahls mit Frequenz ω_1 und Polarisation in j -Richtung bezeichnet. Die Frequenzen der drei Fundamentalstrahlen müssen nicht verschieden sein. Da die Fundamentalstrahlen in dem hier vorgestellten Experiment drei verschiedene Frequenzen haben, aber in die selbe Richtung polarisiert sind, vereinfacht sich Gleichung (2.4) zu $P_x^{NL} = \varepsilon_0 \chi_{xxxx}^{(3)} E_{1,x} E_{2,x} E_{3,x}$. Im weiteren wird auf den Index, der die Polarisation beschreibt, verzichtet.

Aus den Maxwell-Gleichungen ergibt sich die nichtlineare Wellengleichung mit nichtlinearer Polarisation als treibenden Term

$$\Delta \vec{E} - \frac{1 + \chi^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{NL}. \quad (2.5)$$

Zur Lösung dieser nichtlineare Differentialgleichung nimmt man in x-Richtung polarisierte und sich in z-Richtung ausbreitenden ebene Wellen an. Den treibenden Term bildet die nichtlineare Polarisation aus Gleichung (2.4). Die für diese Arbeit relevante spezielle Lösung für Summenfrequenzbildung erhält man mit folgendem Ansatz:

$$\vec{E}(z, t) = \vec{e}_x \frac{1}{2} (E_1 e^{-i(\omega_1 t - k_1 z)} + E_2 e^{-i(\omega_2 t - k_2 z)} + E_3 e^{-i(\omega_3 t - k_3 z)} + c.c.) \quad (2.6)$$

$$\begin{aligned} \vec{P}^{NL} &= \vec{e}_x \frac{1}{2} P_4 e^{-i\omega_4 t} \\ &= \vec{e}_x \frac{6}{8} \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 e^{-i[(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t - (k_1 + k_2 + k_3)z]} \end{aligned} \quad (2.7)$$

\vec{e}_x = Einheitsvektor in x-Richtung

k_i = Wellenvektor des Feldes i

Zur Berechnung des erzeugten Feldes der Frequenz ω_4 wird angenommen, daß die Änderung der Feldamplitude E_i der Fundamentalstrahlen während einer optischen Periode vernachlässigt werden kann².

$$\frac{\partial E_4}{\partial z} = \frac{i\omega_4}{2n_4 \varepsilon_0 c} P_4 e^{-ik_4 z} \quad (2.8)$$

$$= \frac{3i\omega_4}{4n_4 c} \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 e^{i\Delta k z} \quad (2.9)$$

$$\Delta k = k_4 - (k_1 + k_2 + k_3) \quad (2.10)$$

¹Vier Strahlen, deren Polarisation sich jeweils in drei Raumrichtungen zerlegen läßt ergibt 3^4 Möglichkeiten für Konversionsprozesse. Die meisten Komponenten sind null [Boyd, 1992].

²Diese Näherung ist unter der Bezeichnung SVAA (slowly varying amplitude approximation) bekannt.

Gleichung (2.8) wird als *Fundamentalgleichung der nichtlinearen Optik* bezeichnet, aus ihr ergibt sich Gleichung (2.9), wenn man die nichtlineare Polarisierung für Summenfrequenzbildung aus Gleichung (2.4) einsetzt. n_4 ist der komplexe Brechungsindex der erzeugten Welle im nichtlinearen Medium, P_4 die erzeugte Leistung.

Die Phasenfehlanpassung Δk aus Gleichung (2.10) ist eine vektorielle Größe, kann aber bei kollinearen Strahlen skalar betrachtet werden. Sie ist für die Effizienz des nichtlinearen Prozesses von entscheidender Bedeutung, denn sie beschreibt, ob das am Anfang des Mediums erzeugte Licht sich konstruktiv oder destruktiv mit dem später erzeugten Licht überlagern wird.

Beim Vier-Wellen-Mischen in einem Medium der Länge L mit kollinearen ebenen Wellen als Fundamentalstrahlen ergeben sich Feld und Intensität der erzeugten Welle also zu

$$\begin{aligned} E_4(L) &= \int_0^L \frac{\partial E_4}{\partial z} dz \\ &= \frac{3 i \omega_4}{4 n_4 c} \chi^{(3)} E_1 E_2 E_3 \frac{1 - e^{-i \Delta k L}}{i \Delta k} \end{aligned} \quad (2.11)$$

$$\begin{aligned} \Rightarrow I_4 &= \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n_4 |E_4(L)|^2 \\ &= \frac{9}{32} \frac{\varepsilon_0 \omega_4^2 L^2}{n_4 c} |\chi^{(3)}|^2 E_1^2 E_2^2 E_3^2 \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2}. \end{aligned} \quad (2.12)$$

Die Intensität der bei ω_4 erzeugten Welle wird für $\Delta k = 0$ maximal - für die hier angenommenen ebenen kollinearen Wellen.

2.2 Vier-Wellen-Mischen mit fokussierten Fundamentalstrahlen

Im vorhergehenden Abschnitt wurde hergeleitet, daß bei ebenen kollinearen Wellen $I_4 \propto I_1 \cdot I_2 \cdot I_3$ ist. Bei gegebener Laserleistung in den Fundamentalstrahlen läßt sich die Intensität durch Fokussieren der Strahlen erhöhen. Das aber ändert die Wellenfronten der einzelnen Strahlen: Sie sind nicht mehr parallel und die Phasen Anpassung wird in der Beschreibung aufwendiger. Zunächst werden die Fundamentalstrahlen als fokussierte Gauß-Strahlen dargestellt:

$$E_i(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} E_i(\vec{r}) e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + c.c. \quad (2.13)$$

$$\text{mit } E_i(\vec{r}) = E_{i,0} \frac{b}{b + 2iz} e^{-\frac{k_i r^2}{b + 2iz}} \quad (2.14)$$

Die Strahlparameter sind in Abbildung 2.1 erläutert.

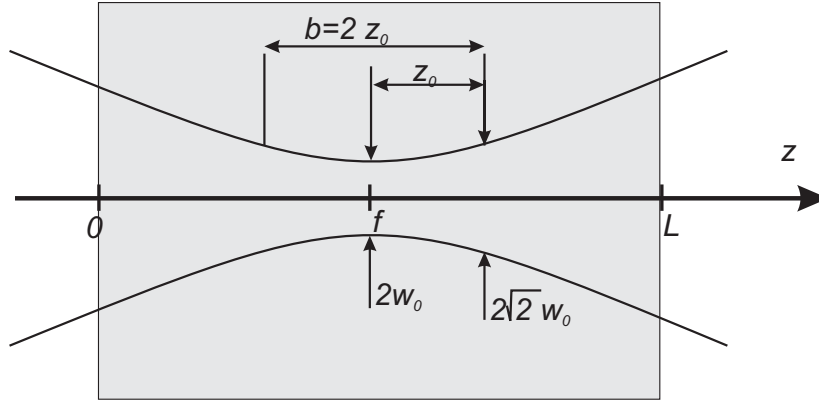


Abbildung 2.1: Strahlparameter eines fokussierten Gauß-Strahls: Strahlweite w_0 , konfokaler Parameter b und Rayleighlänge z_0 .

Die Leistung der erzeugten Strahlung in einem Dampf mit Teilchendichte N ist in diesem Fall gegeben durch [Pahl, 2003]

$$P_4 = \frac{9}{4} \cdot \frac{\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4}{\pi^2 \varepsilon_0^2 c^6 b^2} \cdot \left(\frac{N}{\Delta k} \right)^2 \cdot |\chi_a^{(3)}|^2 \cdot P_1 P_2 P_3 \cdot |G(b\Delta k)|^2, \quad (2.15)$$

mit dem sogenannten *Phasenanpassungsintegral*

$$G(b\Delta k) = b\Delta k \int_0^L \frac{2be^{-i\Delta kz}}{(b+2iz)^2} dz. \quad (2.16)$$

Das Phasenanpassungsintegral hängt über die Integrationsgrenzen nicht nur von $(b\Delta k)$, sondern zudem vom Verhältnis des konfokalen Parameters b zur Länge des Mediums L ab. Für den konfokalen Parameter des Experiments von $b = 0,16$ cm wird das globale Maximum – unter Voraussetzung eines rechteckigen Dichteprofiles – der Kurvenschar $G(b\Delta k)_{L/b}$ für $L/b = 1,5$ bei $(b\Delta k) = -4,8$ erreicht. Wird bei sonst gleichen Parametern die Dampfzone verlängert, nimmt $G(b\Delta k)_{L/b}^2$ asymptotisch für unendliche Wechselwirkungslängen um 15 % ab. Für die im Experiment realisierte Dampfzone gilt mit ihrer 1,5 cm Länge bereits $L \gg b$. Eine Verbesserung der Phasenanpassung tritt allerdings erst bei einer Länge unter 3 mm ein [Pahl, 2003].

Die nichtlineare Suszeptibilität steigt bei Annäherung der Fundamentalstrahlfrequenzen an atomare Resonanzen stark an. Allerdings können ω_1 , ω_2 und ω_3 nicht beliebig nahe an Übergangsfrequenzen gewählt werden: Da nur Atome im Grundzustand zur kohärenten Frequenzkonversion beitragen, ist Populationstransfer zu vermeiden. Bei VWM mit kontinuierlichen Fundamentalstrahlen kann $|\chi^{(3)}|$ durch eine Zwei-Photonen-Resonanz stark erhöht werden³.

³Bei VWM mit gepulsten Fundamentalstrahlen ist das nicht möglich, da aufgrund der höheren Spitzenleistungen Sättigungseffekte durch Zwei-Photonenanregung eintreten.

Die nichtlineare Suszeptibilität kann mit Störungsansatz aus der Liouville-Gleichung berechnet werden, siehe z. B. [Vidal, 1987]. Sie zerfällt im Spezialfall des VWM mit Zwei-Photonenresonanz in vier Faktoren: Der erste ist proportional zur Dichte, der zweite, $S(\omega_1 + \omega_2)$, beschreibt die Übergangslinienbreite der Zwei-Photonenresonanz, die letzten beiden, χ_{12} und χ_{34} sind formal Suszeptibilitäten zweiter Ordnung und beschreiben jeweils den Teil der gesamten Suszeptibilität für Fundamentalstrahlen 1 und 2 bzw. den Fundamentalstrahl 3 und den erzeugten Strahl 4.

$$\chi^{(3)}(\omega_4; \omega_1, \omega_2, \omega_3) = \frac{N}{\varepsilon_0 \hbar^3} S(\omega_1 + \omega_2) \chi_{12} \chi_{34} \quad (2.17)$$

$$\text{mit } \chi_{12} = \sum_m \left(\frac{p_{nm} p_{mg}}{\omega_{mg} - \omega_1} + \frac{p_{nm} p_{mg}}{\omega_{mg} - \omega_2} \right) \quad (2.18)$$

$$\chi_{34} = \sum_v \left(\frac{p_{vn} p_{gv}}{\omega_{vg} - \omega_4} + \frac{p_{vn} p_{gv}}{\omega_{vg}^* + \omega_3} \right) \quad (2.19)$$

$$S(\omega_1 + \omega_2) = \frac{1}{\omega_{ng} - (\omega_1 + \omega_2)} \quad (2.20)$$

dabei bezeichnen m und v Zwischenniveaus, die mit einem Dipolübergang erreicht werden können.

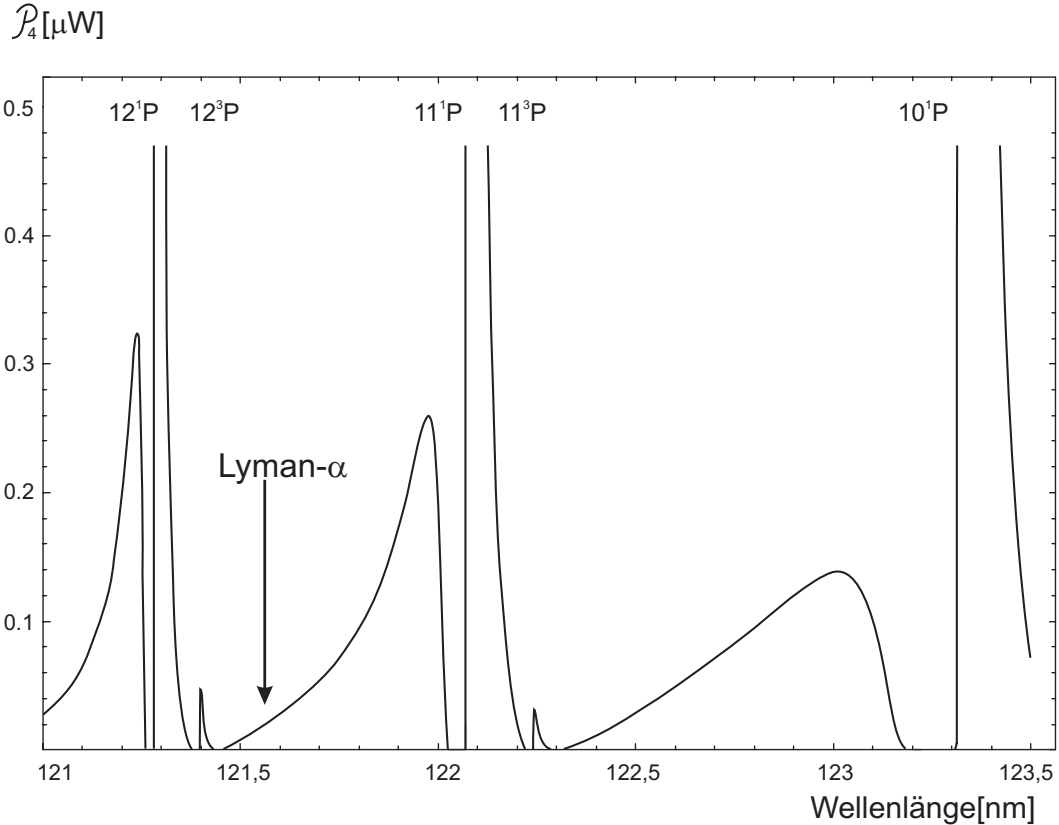


Abbildung 2.2: Erwartetes VUV-Spektrum, berechnet ohne Dämpfung in der Suszeptibilität [Pahl, 2003]. Wie man im Graphen sieht, liegt Lyman- α weit entfernt von einer Polstelle, was das Vernachlässigen der Dämpfung in $|\chi^{(3)}|$ rechtfertigt.

Linienbreiten werden durch Ersetzen der Frequenzen ω durch Frequenzen mit Dämpfung $\omega \rightarrow \omega + i\Gamma$ sowie Integration über die Geschwindigkeitsverteilung der Atome (wie in Kapitel 3.2 noch genauer beschrieben wird) berücksichtigt⁴. Die Frequenzabhängigkeit der VUV-Leistung ist in Abbildung 2.2 zu sehen.

Die Rechnungen ergeben eine Leistung von 20 nW bei Lyman- α . Das entspricht der durchschnittlichen Leistung gepulster Quellen und auch der Leistung, die im Experiment erreicht wird.

2.3 Aufbau der Lyman- α -Quelle

Bei der Wahl des nichtlinearen Mediums für Vier-Wellen sind zwei Dinge zu berücksichtigen: Erstens darf die Energie eines Photon der erzeugten Strahlung nicht ausreichen, um das nichtlineare Medium zu ionisieren. Die Ionisation stellt nicht nur Absorption des erzeugten Strahls dar, sondern verringert auch die Anzahl der zum Vier-Wellen-Mischen nutzbaren Atome. Zweitens soll das nichtlineare Medium geeignete Resonanzen besitzen, die man sich zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität zu Nutzen machen kann. Dazu müssen – möglichst leistungsstarke – kontinuierliche Laserlichtquellen mit den jeweiligen Übergangsfrequenzen realisiert werden.

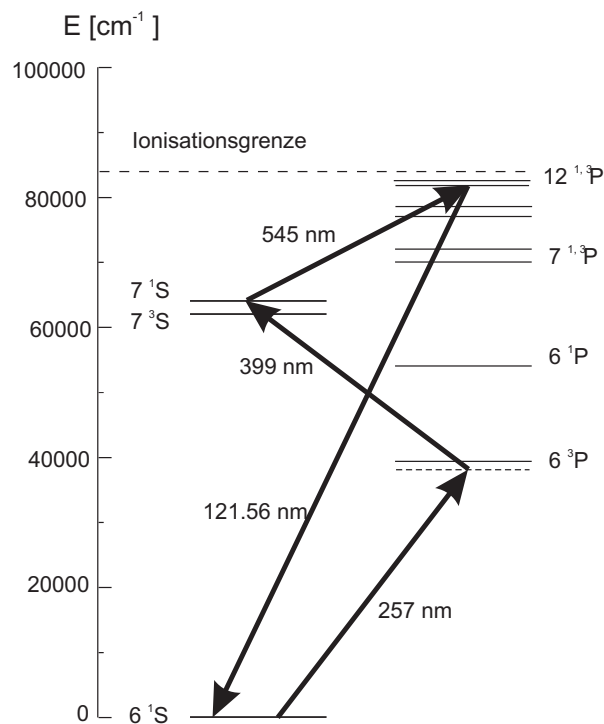


Abbildung 2.3: Vereinfachtes Niveausystem von Quecksilber mit den drei Fundamentalstrahlen und dem erzeugten Lyman- α -Strahl.

⁴Aus diesem Grund findet man in Gleichung (2.19) komplex konjugierte Frequenzen.

Als nichtlineares Medium zur Erzeugung von Lyman- α wurde Quecksilber gewählt. Wie man anhand des vereinfachten Niveauschemas in Abbildung 2.3 sehen kann, erfüllt es beide Anforderungen.

Die Zwei-Photonen-Resonanz $6^1S \rightarrow 7^1S$ erhöht die nichtlineare Suszeptibilität [Pahl, 2003]. Die Verstimmung zum Ein-Photonenübergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ beträgt 4 nm, damit ist die Frequenz des Fundamentalstrahls zu weit von der Resonanzfrequenz entfernt, als daß diese zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität beitragen könnte. In Kapitel 5 wird die Problematik ausführlicher diskutiert.

Das Lasersystem zur Erzeugung von kontinuierlich kohärenter Strahlung bei Lyman- α in Quecksilberdampf besteht aus folgenden Komponenten:

257 nm Argon-Ionenlaser bei 514 nm, Frequenzverdopplung in BBO

399 nm Titan-Saphir-Laser bei 798 nm, Frequenzverdopplung in LBO

545 nm Farbstofflaser mit Rhodamin 110

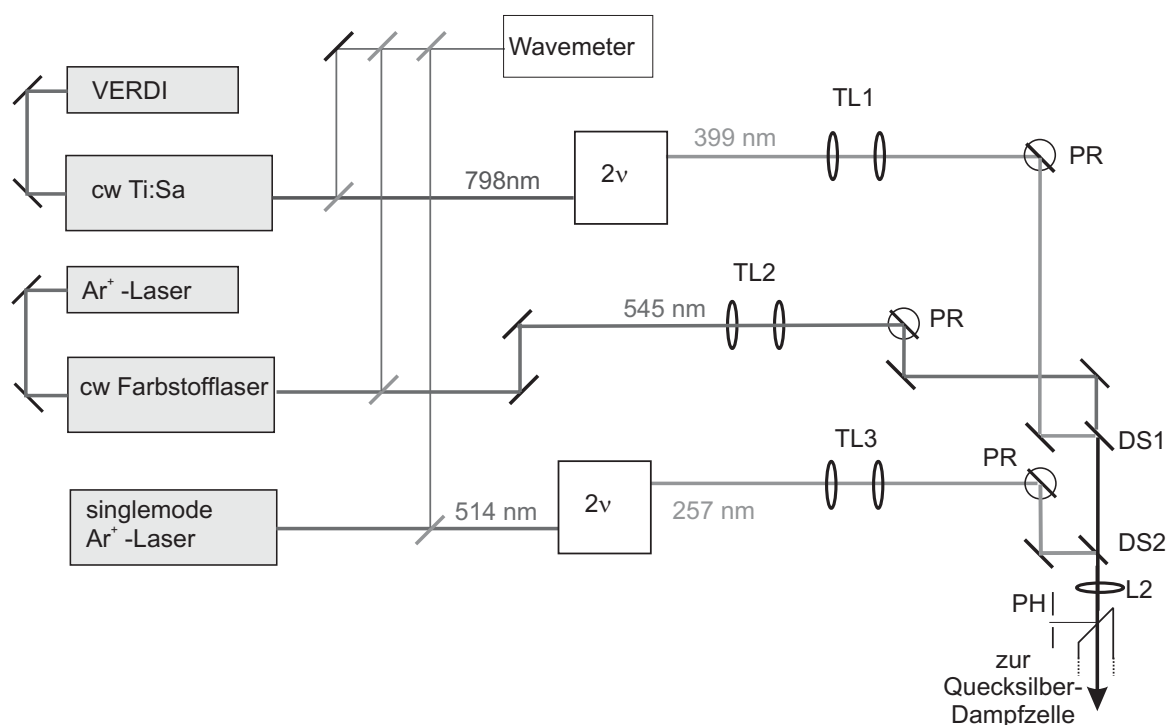


Abbildung 2.4: Aufbau des Lasersystems. 2ν : Frequenzverdopplung, TL: Teleskop, PR: Rotation der Polarisation, DS: Dichroitischer Spiegel, PH: Lochblende, L: Linse

Das Schema des optischen Aufbaus ist in Abbildung 2.4 zu sehen, weitere Details sind in [Pahl, 2003] beschrieben. Die Fundamentalstrahlen werden mit Hilfe von je zwei Spiegeln mit piezoelektrisch angetriebenen Justierschrauben überlagert und in eine 1,5 cm lange Quecksilberdampfzone fokussiert. Die Dampfzelle mit Vakuumapparatur

ist in Abbildung 2.5 dargestellt. Die Dichte des Dampfs beträgt $8,8 \cdot 10^{23}$ Atome/m³ bei 220 °C. Das die Dampfzone umgebende Helium dient als Stoßpartner für Hg-Atome, die durch die kleinen Ein- und Austrittsblenden für die Fundamentalstrahlen aus der Dampfzone herausdiffundieren. Dadurch wird ein Beschlagen des Eintrittsfensters und – zusammen mit Kühlfallen – der Linse L3 mit Quecksilber verhindert. Die Phasenanpassung wird allein durch das Zusammenpassen des konfokalen Parameters mit der Atomdichte, also dem Brechungsindex, bei gegebenen Wellenlängen erreicht. Edelgase und Kühlfallen mit flüssigem Stickstoff sorgen dafür, daß die optischen Elemente in der Vakuumapparatur rein gehalten werden.

Linse L3 in Abbildung 2.5 trennt die Fundamentalstrahlen, deren Fokus auf einem kleinen Spiegel liegt, vom Lyman- α -Strahl, dessen Fokus einige Zentimeter vor dem Spiegel liegt. Das Linsenpaar L4 und L5 kollimiert den Lyman- α -Strahl für die Spektroskopie an einem Wasserstoffatomstrahl. Von den 20 nW Lyman- α , die in der Quecksilberdampfzone erzeugt werden, stehen 2 nW zur Spektroskopie zur Verfügung. Hinter zwei Lyman- α -Filtern mit einer Transmission von je 17 % mißt der Photomultiplier, in Abbildung 2.5 rechts zu sehen, 0,03 % der erzeugten Lyman- α -Photonen [Pahl, 2003].

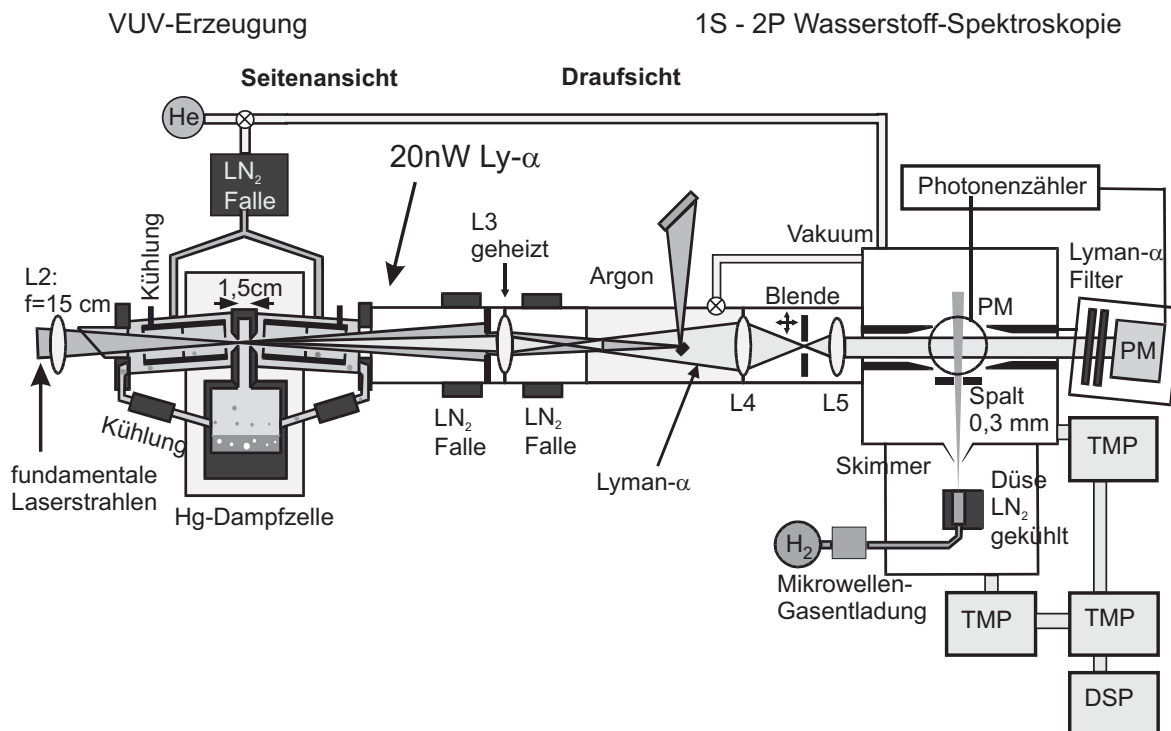


Abbildung 2.5: Vakuumapparatur mit nichtlinearem Medium links und Spektroskopiekammer rechts. L: Linse, LN₂: flüssiger Stickstoff, TMP: Turbopumpe, DSP: Drehschieberpumpe, PM: Photomultiplier

Mit diesem Aufbau wurde der $1S$ - $2P$ -Übergang in Wasserstoff erstmals mit fast natürlicher Linienbreite gemessen [Eikema et al., 2001]. Dies läßt auf eine Linienbreite der VUV-Strahlung von wenigen MHz zurückschließen.

Im Experiment wurde bereits die für dieses Anregungsschema berechnete mögliche Ausgangsleistung erreicht. Zur weiteren Verbesserung der Ausgangsleistung der Lyman- α -Quelle wurde im Rahmen dieser Arbeit die Maximierung der nichtlinearen Suszeptibilität durch die Ein-Photonen-Resonanz $6^1S \rightarrow 6^3P$ (siehe Abbildung 2.3) untersucht.

Das Induzieren von Transparenz mit dem Fundamentalstrahl, der den Übergang $6^3P \leftrightarrow 7^1S$ treibt, soll dabei den unerwünschten Populationstransfer vermeiden. Das nachfolgende Kapitel beschäftigt sich mit der Berechnung der optischen Eigenschaften eines solchen Systems.

Kapitel 3

Elektromagnetisch induzierte Transparenz

3.1 Dichtematrixformalismus

Die einfachste Möglichkeit, einen Zustand quantenmechanisch zu beschreiben, stellt die Wellenfunktion $|\psi\rangle$ dar [Fließbach, 1995]

$$\Psi = \sum_{i=1}^n c_i \Phi_i \quad (3.1)$$

mit Basisvektoren Φ_i und Koeffizienten c_i . Möchte man nicht nur den Zustand eines Teilchens betrachten, sondern beispielsweise ein ganzes Ensemble von Atomen, erweist sich die Wellenfunktion mit ihrer Bewegungsgleichung, der Schrödingergleichung, als unhandlich. Übersichtlicher ist die Darstellung mit Hilfe der *Dichtematrix*, die folgendermaßen mit der Wellenfunktion zusammenhängt:

$$\varrho = |\Psi\rangle\langle\Psi| \quad (3.2)$$

$$\varrho_{ij} = \langle\Phi_i|\varrho|\Phi_j\rangle = \langle\Phi_i|\Psi\rangle\langle\Psi|\Phi_j\rangle = c_i\bar{c}_j \quad (3.3)$$

Ein Querstrich über der Variablen bedeutet, daß der komplex konjugierte Wert dieser Variablen verwendet wird.

Die Dichtematrix ϱ hat für ein Atom – oder ein Ensemble von Atomen – mit n Niveaus die Dimension $n \times n$. Da sie ein hermitescher Operator ist, sind nur $(n^2+n)/2$ der Einträge unabhängig. Aus der Normierungsbedingung für die Koeffizienten der Wellenfunktion $\sum_{i=1}^n c_i\bar{c}_i = 1$ wird für die Dichtematrix die Bedingung $\text{Spur}(\varrho) = 1$, was die Anzahl der freien Dichtematrixeinträge noch mal um eins auf $1/2(n^2+n) - 1$ verringert.

Das Nebendiagonalelement ϱ_{ij} der Matrix ϱ bezeichnet man als *Kohärenz*. Es ist proportional zur Polarisation des Mediums auf dem Übergang $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$. Der komplex konjugierte Wert dieser Kohärenz ergibt die Kohärenz des Übergangs $|j\rangle \rightarrow |i\rangle$, es gilt also $\varrho_{ej} = \overline{\varrho_{je}}$. Die Diagonalelemente der Dichtematrix geben die Besetzung des entsprechenden Zustandes an. Man spricht daher von den Diagonalelementen auch als *Populationen* und es gilt $\sum_{i=1}^n \varrho_{ii} = 1$.

Sei V der Operator für ein elektromagnetisches Wechselfeld mit Frequenz ω_L , in dem sich ein Atom, gegeben durch Operator H_0 , befindet. Das Verhalten dieses Systems wird beschrieben durch

$$H = H_0 + V. \quad (3.4)$$

Die Eigenvektoren von H bezeichnet man als *gemischte Zustände*. Woher die Bezeichnung rührt, wird in Kapitel 3.3 deutlich. Ist die Wechselwirkung von Atom und Feld $V = 0$, sind die Eigenvektoren von H identisch mit denen von H_0 und man spricht von *reinen Zuständen* [Cohen-Tannoudji et al., 1992]¹.

¹Strenggenommen beziehen sich die Bezeichnungen „reiner bzw. gemischter Zustand“ darauf, ob

Die Rolle der Schrödinger-Gleichung als Bewegungsgleichung für die Wellenfunktion spielt im Dichtematrixformalismus die *von-Neumann-Gleichung*

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho]. \quad (3.5)$$

In Rechnungen dieser Arbeit wird das System aus Atom und Licht durchweg semiklassisch betrachtet: Das Atom wird mit seinen diskreten Zuständen quantenmechanisch und das Licht klassisch als monochromatische elektromagnetische Welle beschrieben. Schreibt man Gleichung (3.5) komponentenweise aus, erhält man ein System linearer Differentialgleichungen erster Ordnung, die als *Blochgleichungen* bezeichnet werden. Handelt es sich bei dem durch die Blochgleichungen beschriebenen System um ein Ensemble von Atomen mit Übergangsfrequenzen im optischen Bereich, so spricht man von *optischen Blochgleichungen* (im folgenden OBE).

Dämpfungen werden dem Dichtematrixformalismus phänomenologisch als weiterer Operator in der von-Neumann-Gleichung zugefügt:

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [H, \rho] - i\hbar \{\Gamma, \rho\} \quad (3.6)$$

Statt der Dämpfungsmatrix Γ mit Einträgen Γ_{ij} können die einzelnen Zerfallskonstanten für jedes ρ_{ij} in der entsprechenden Bewegungsgleichung eingesetzt werden. Dabei sind

$$\Gamma_{ii} = \text{Zerfallsrate der Population des Zustandes } |i\rangle \quad (3.7)$$

$$\Gamma_{ij} = \frac{1}{2}(\Gamma_{ii} + \Gamma_{jj}) \quad (3.8)$$

die Dämpfungen für Populationen und Kohärenzen [Alam, 1999].

Die optischen Blochgleichungen können zeitabhängig oder zeitunabhängig gelöst werden. Die zeitabhängige Lösung beschreibt Phänomene wie beispielsweise Rabi-Oszillationen in einem getriebenen Zwei-Niveau-System [Metcalf and van der Straten, 1999]. Für diese Arbeit sind im Hinblick auf durchgeführte Messungen die zeitunabhängige Lösung, die das System beschreibt, nachdem es sich in einen Gleichgewichtszustand begeben hat, von Interesse.

der Zustand durch eine Wellenfunktion beschrieben werden kann oder ob ein statistisches Gemisch verschiedener Wellenfunktionen vorliegt – was eine Behandlung im Dichtematrixformalismus erfordert. In dieser Arbeit wird dagegen die in weiterführenden Lehrbüchern wie [Cohen-Tannoudji et al., 1992] übliche Bezeichnung verwendet

3.2 Rechnungen zum Zwei-Niveausystem mit Dopp- lereffekt

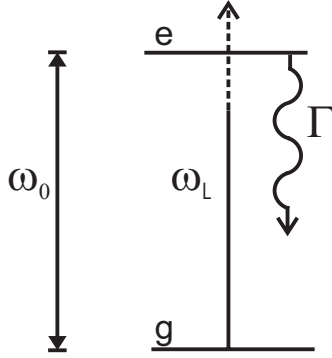


Abbildung 3.1: g: Grundzustand, e: angeregter Zustand mit Zerfallsrate Γ , Übergangsfrequenz ω_0 , Laserfrequenz ω_L mit Rabi-Frequenz Ω und Verstimmung $\delta = \omega_L - \omega_0$.

Ein Atom mit zwei Niveaus, die von einem kohärenten Lichtfeld der Frequenz ω_L gekoppelt werden, wie in Abbildung 3.1 dargestellt, wird durch folgende Operatoren beschrieben:

$$H_A = \hbar\delta |g\rangle \langle g| \quad (3.9)$$

$$V_{AL} = -\frac{\hbar\Omega}{2}(|e\rangle \langle g| + |g\rangle \langle e|) \quad (3.10)$$

Man erhält mit $H = H_A + V_{AL}$ die Bewegungsgleichungen aus Gleichung (3.6):

$$\dot{\rho}_{ee} = +\frac{i}{2}\Omega(\rho_{ge} - \rho_{eg}) - \Gamma\rho_{ee} \quad (3.11)$$

$$\dot{\rho}_{gg} = -\frac{i}{2}\Omega(\rho_{ge} - \rho_{eg}) + \Gamma\rho_{ee} \quad (3.12)$$

$$\dot{\rho}_{eg} = +i\delta\rho_{eg} - \frac{i}{2}\Omega(\rho_{ee} - \rho_{gg}) - \frac{\Gamma}{2}\rho_{eg} \quad (3.13)$$

$$\dot{\rho}_{ge} = -i\delta\rho_{ge} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{ee} - \rho_{gg}) - \frac{\Gamma}{2}\rho_{ge} \quad (3.14)$$

Für die Darstellung der Bewegungsgleichung in dieser Form wurde bereits die Basis in das sogenannte *Wechselwirkungsbild* [Shore, 1990] transformiert.

Gleichungssystem (3.11-3.14) gibt die zeitabhängige Antwort eines Ensembles von Atomen auf eine Wechselwirkung beschrieben durch den Operator V_{AL} an. Hat das Ensemble in einen Gleichgewichtszustand „gefunden“, so verschwindet die Zeitabhängigkeit und es gilt $\dot{\rho}_{ij} = 0$ für $t > t_0$.

Löst man die OBE zeitunabhängig mit $\dot{\rho}_{ij} = 0$, so wird das System (3.11-3.14) auf zwei Gleichungen reduziert:

$$\rho_{ee} = \frac{\Omega^2}{4\delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2} \quad (3.15)$$

$$\rho_{ge} = \frac{2\Omega(-\delta + i\Gamma/2)}{4\delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2} \quad (3.16)$$

Die Suszeptibilität dieses Übergangs ist proportional zur Kohärenz [Boyd, 1992]²

$$\chi = N \frac{\mu_{eg}}{\varepsilon_0 E} \cdot \rho_{ge} \quad (3.17)$$

$$= N \frac{\mu_{eg}\mu_{ge}}{\varepsilon_0 \hbar} \cdot \frac{-2\delta + i\Gamma}{4\delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2}, \quad (3.18)$$

wobei für die Umformung genutzt wurde, daß die Rabi-Frequenz

$$\Omega = \frac{\mu_{ge} \cdot E}{\hbar} \quad (3.19)$$

| | |
|---------------|---|
| N bei 300 K | $4,8 \cdot 10^{19} \text{ m}^{-3}$ |
| N bei 493 K | $8,79 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$ |
| $\mu_{eg,ge}$ | $(3 \cdot) 8,7 \cdot 10^{-31} \text{ Cm (s. Anhang A)}$ |
| τ | 120 ns |

Tabelle 3.1: Parameter zur Berechnung der Suszeptibilität des Übergangs $6^1S \rightarrow 6^3P$ in Quecksilber.

beträgt. E bezeichnet den Effektivwert des elektrischen Felds des Lichtstrahls. Die Parameter zur Berechnung der Suszeptibilität von Quecksilber sind in Tabelle 3.1 zusammengefaßt: N ist die Dichte der Atome, μ das Dipolmatrixelement des betrachteten Übergangs $6^1S \rightarrow 6^3P$ und τ die Lebensdauer des angeregten Zustandes.

Zur Berechnung der *linearen* Absorption und Dispersion wird Gleichung (3.18) nach Ω entwickelt und Beiträge höherer Ordnung vernachlässigt:

$$\text{Im}(\chi^{(1)}) = N \frac{\mu_{eg}\mu_{ge}}{\varepsilon_0 \hbar} \cdot \frac{\Gamma}{4\delta^2 + \Gamma^2} \quad (3.20)$$

$$\text{Re}(\chi^{(1)}) = -N \frac{\mu_{eg}\mu_{ge}}{\varepsilon_0 \hbar} \cdot \frac{2\delta}{4\delta^2 + \Gamma^2} \quad (3.21)$$

Homogene Verbreiterungen – verursacht durch die natürliche Lebensdauer oder Stöße – können wie in Kapitel 2 in Gleichungen (3.18) bzw. (3.20) und (3.21) zur Dämpfungsconstanten Γ zusammengefaßt werden. Als inhomogene Verbreiterung muß die Dopplerverbreiterung berücksichtigt werden:

Ein Atom mit Geschwindigkeit v „sieht“ Licht der Frequenz ω_L dopplerverschoben, also $\omega_L \rightarrow \omega_L \cdot (1 + \frac{v}{c})$ für $v \ll c$. Die Anzahl der Atome im Geschwindigkeitsintervall dv in Richtung des Wellenvektors des Lichts ergibt sich aus der Maxwell-Boltzmann-Verteilung:

$$N(dv) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_0} \int N \cdot e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2} dv \quad (3.22)$$

$$\text{mit } v_0 = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad (3.23)$$

Für eine Raumtemperatur von 300 K liegt die mittlere Geschwindigkeit der Quecksilber-Atome bei 157 m/s, für die Temperatur des Hg-Dampfs bei bisherigen VWM-Experimente von 220 °C sind es bereits 200 m/s.

Die dopplerverbreiterte Suszeptibilität erster Ordnung erhält man durch Integration über alle Geschwindigkeitsklassen

$$\chi = \frac{\mu_{eg}\mu_{ge}}{\varepsilon_0 \hbar} \int N(v) \frac{-2\delta(v) + i\Gamma}{4\delta(v)^2 + \Gamma^2} dv \quad (3.24)$$

²Gleichung (3.18) ist dort für störungstheoretisch ermittelte Kohärenzen zu finden.

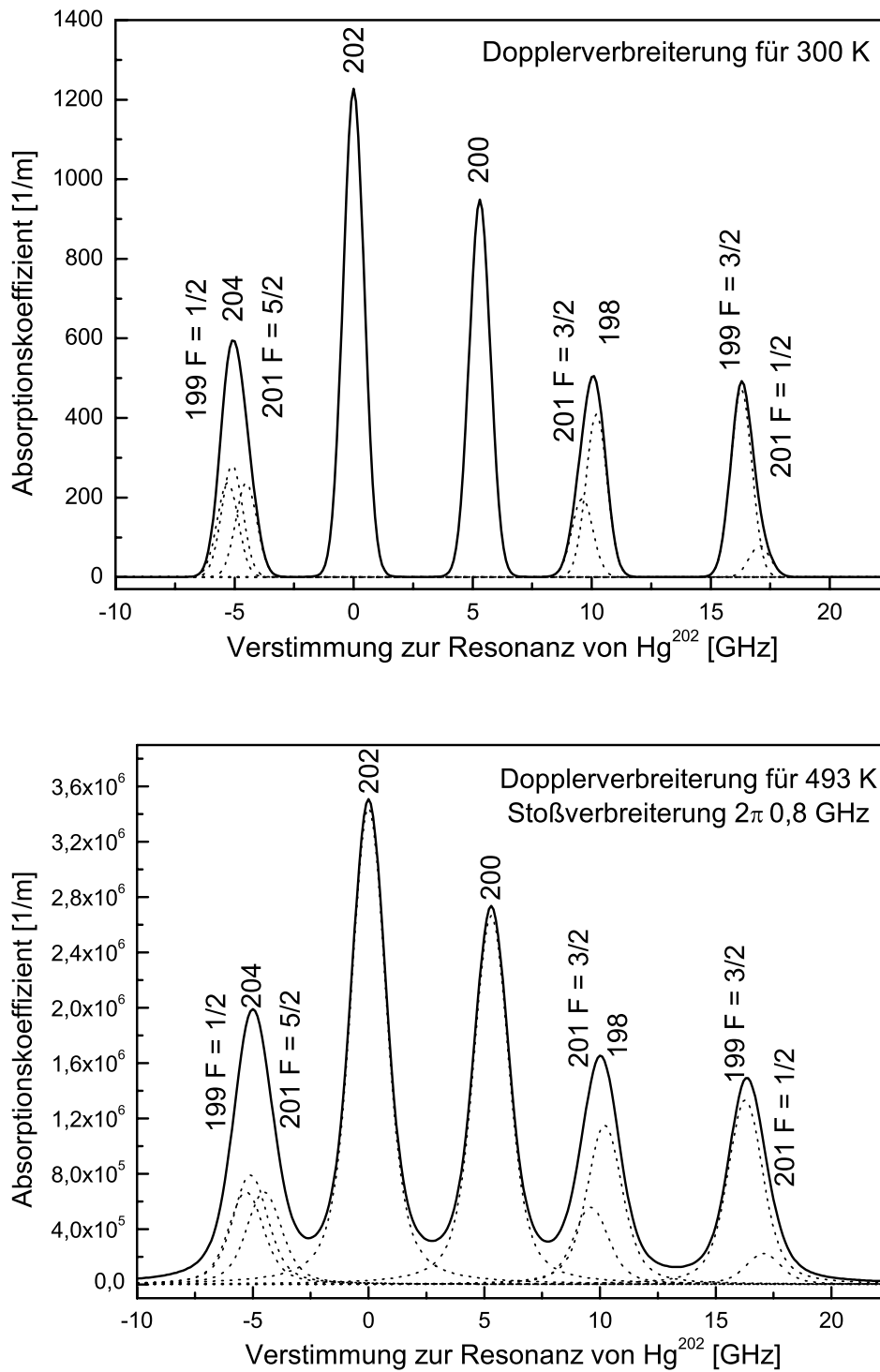


Abbildung 3.2: Berechnete Absorption für den Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ bei 300 K und 493 K. Die gestrichelten Linien geben die Absorption der einzelnen Isotope, die durchgezogene Linie die Absorption des Isotopengemischs an. Werte der Stoßverbreiterung für 220 °C aus [Pahl, 2003].

und kann den komplexen Brechungsindex n_c daraus berechnen [Boyd, 1992]:

$$n_c(\omega) = \sqrt{\epsilon(\omega)} = \sqrt{1 + 4\pi\chi^{(1)}(\omega)} \approx 1 + 2\pi\chi^{(1)} \quad (3.25)$$

$$n_c(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega) \quad (3.26)$$

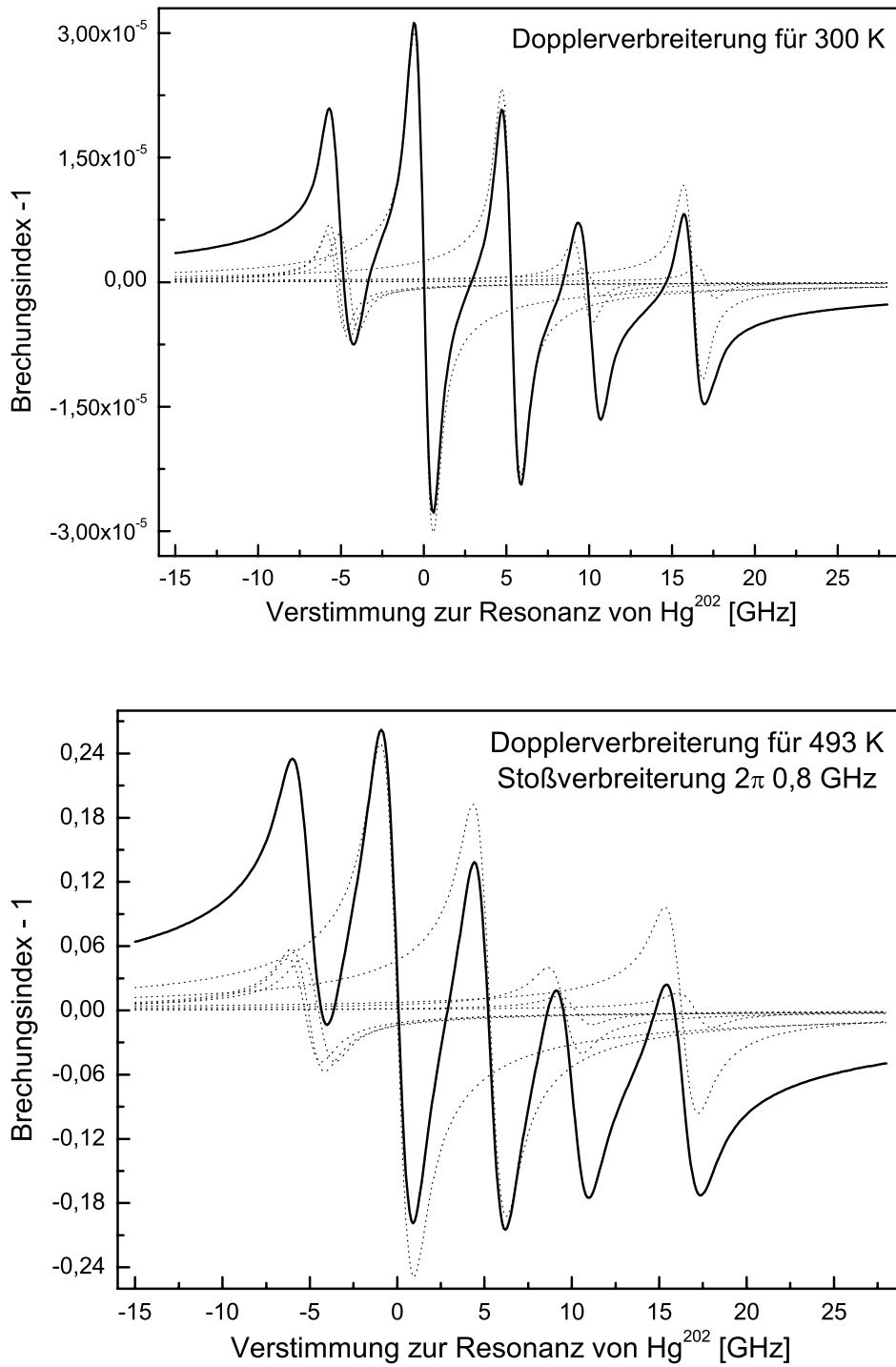


Abbildung 3.3: Berechnete Dispersion für den Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ bei 300 K und 493 K. Die gestrichelten Linien geben die Dispersion der einzelnen Isotope, die durchgezogene Linie die Dispersion des Isotopengemischs an. Werte der Stoßverbreiterung für 220 °C aus [Pahl, 2003].

Die Näherung in Gleichung (3.25) ist gültig für $4\pi\chi^{(1)}(\omega) \ll 1$. Der Absorptionskoeffizient, der angibt, nach welcher Weglänge im Medium die Intensität der Welle auf $1/e$ gesunken ist, erhält man aus dem Extinktionskoeffizienten κ :

$$\alpha = \frac{2\omega\kappa}{c} \quad (3.27)$$

Die Werte des Absorptionskoeffizienten und der Dispersion $n - 1$ für den Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ in einem natürlichen Isotopengemisch von Quecksilber bei 300 K und 493 K sind in Abbildungen 3.2 und 3.3 dargestellt. Die Zusammensetzung des Isotopengemischs ist in Tabelle A.1 im Anhang aufgeführt. Es gibt sieben stabile Quecksilberisotope; die Isotope 199 und 201 erhöhen mit ihrer Hyperfeinaufspaltung die Zahl der einzelnen Absorptionslinien auf insgesamt 10. Die Absorptionslinie des Isotops 196 ist wegen seiner geringen Häufigkeit von 0,15 % in den Abbildungen nicht sichtbar.

3.3 Induzierte Transparenz im Quecksilber-Isotopengemisch

In diesem Kapitel wird die Änderung der atomaren Eigenzustände im Feld eines starken Lasers betrachtet. Beschrieben werden sie in der Dichtematrix durch Terme, die Rabi-Frequenzen in höherer Ordnung beinhalten. Hier sind also genau diejenigen Beiträge von Interesse, die im vorhergehenden Kapitel durch Reihenentwicklung der Gleichungen (3.20) und (3.21) nach Ω eliminiert wurden. Solche nichtlinearen Effekte sind nicht allein der Optik vorbehalten: Beispiele aus der Elektrodynamik sind in [Litvak and Tokman, 2002] aufgeführt.

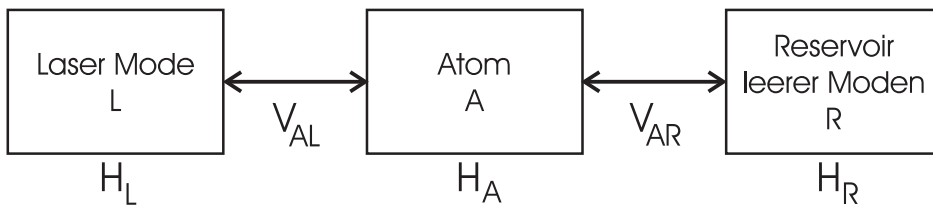


Abbildung 3.4: Verschiedene Komponenten des Atom-Laser-Systems mit ihren Hamiltonoperatoren. V_{AL} beschreibt die Wechselwirkung von Atom und Lasermode, V_{AR} die spontane Emission eines Photons vom Atom in eine beliebige, leere Mode.

Zur anschaulichen Erklärung der nichtlinearen Effekte mit dem Modell der *bekleideten Zustände* dient zunächst nochmals das Zwei-Niveau-Atom:

Das Atom (oder das Ensemble von Atomen), beschrieben durch H_A mit den Eigenzuständen $|1\rangle$, $|2\rangle$ und Energieeigenwerten E_1 und E_2 , ist durch Absorption, stimulierte Emission sowie spontane Emission an seine Umgebung gekoppelt. Die Umgebung ist in diesem Fall ein Lichtfeld L und ein Reservoir leerer Moden R . Die Kopplung des Atoms wird durch die Operatoren V_{AL} an das cw Lichtfeld H_L und durch V_{AR} an alle übrigen Moden H_R beschrieben (siehe Abbildung 3.4)

$$H = H_0 + H_L + H_R + V_{AL} + V_{AR}. \quad (3.28)$$

Befindet sich das Atom in einem Lichtfeld L mit N Photonen, absorbiert es in einer gegebenen Zeit N_A Photonen aus L . Ein Teil davon gelangt durch stimulierte Emission zurück in L , die restlichen Photonen werden über V_{AR} in das Reservoir gestreut. Die Kopplung des Atoms an das Reservoir und das Reservoir selbst können unter zwei Voraussetzungen vernachlässigt werden [Cohen-Tannoudji et al., 1992]:

- Das Reservoir ist „groß genug“, um vom Atom nicht nennenswert angefüllt zu werden.
- Die Photonenzahl N des Lichtfeldes ist groß genug, um $N_A \ll \sqrt{N}$ zu erfüllen, was bedeutet, daß die aus L herausgestreuten Photonen gegen die intrinsische Schwankung der Photonenzahl in L vernachlässigbar sind.

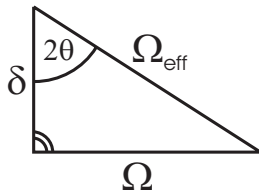
Beides ist in den Experimenten zur vorliegenden Arbeit gegeben und daher werden im folgenden V_{AR} und R nicht mehr berücksichtigt. Die verbleibende Wechselwirkung V_{AL} bewirkt, daß die Eigenzustände des Atoms nicht Eigenzustände des gesamten Systems H sind.

Der Anschauung ist es dienlich, in die Basis der neuen Eigenvektoren, den gemischten Zuständen, zu wechseln:

$$|1(N)\rangle = \sin(\theta) |a, N+1\rangle + \cos(\theta) |b, N\rangle \quad (3.29)$$

$$|2(N)\rangle = \cos(\theta) |a, N+1\rangle - \sin(\theta) |b, N\rangle \quad (3.30)$$

Der *Mischungswinkel* θ ergibt sich durch die Verstimmung δ des Koppellasers und dessen Rabi-Frequenz Ω bzw. effektiver Rabi-Frequenz Ω_{eff} :



$$\Omega_{\text{eff}}^2 = \Omega^2 + \delta^2 \quad (3.31)$$

$$\text{mit } \Omega = \frac{\mu E}{\hbar} \quad (3.32)$$

$$\Rightarrow \tan(2\theta) = -\frac{\Omega}{\delta} \quad (3.33)$$

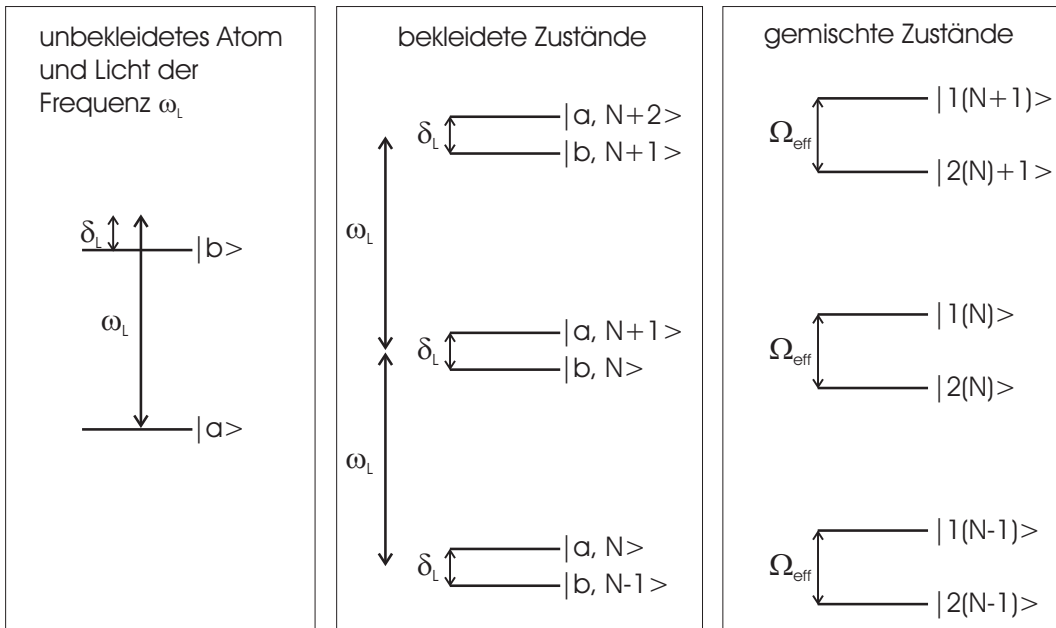


Abbildung 3.5: Aus einem Atom und einem Lichtfeld erhält man für verschiedene Photonzahlen N eine Leiter von Zuständen mit den Leitersprossen $|b, n\rangle$ und $|a, n+1\rangle$, $n \in \mathbb{N}$, berücksichtigt man zudem die Kopplung des Atoms an das Licht durch V_{AL} , entsteht die Leiter der gemischten Zustände.

Abbildung 3.5 zeigt die Basistransformation aus Gleichungen (3.29) und (3.30): Das Gesamtsystem $H_A + H_L$ aus Lichtfeld und Atom besitzt eine ganze „Leiter“ von Eigenzuständen, die jeweils mit zwei Komponenten spezifiziert sind: Dem Zustand des

Atoms, $|a\rangle$ oder $|b\rangle$, und N , der Anzahl der Photonen in der Lasermode. Die „Leitersprossen“ wiederholen sich also mit dem Energieabstand $\hbar\omega_L$ eines einzelnen Photons. Man spricht in diesem Fall von *bekleideten Zuständen*. Nimmt man die Kopplung V_{AL} zwischen Lichtfeld und Atom mit hinzu, so verschiebt sich die Energie der bekleideten Zustände und der Abstand der Niveaus eines Sprossenpaares beträgt Ω_{eff} , die effektive Rabi-Frequenz des Lichtfeldes. Diese Zustände werden als *gemischte Zustände* bezeichnet. Einem Experiment sind nur sie und nicht die bekleideten Zustände zugänglich. Eine schöne Übersicht darüber, für welche Aufgabenstellung die Beschreibung eines Systems in der Basis der gemischten Zustände im Vergleich zu der des unbekleideten Atoms von Vorteil ist, findet man in [Berman and Saloman, 1982].

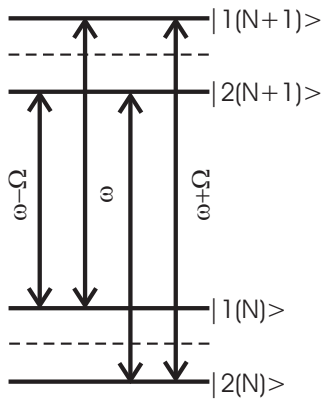


Abbildung 3.6: Im stark getriebenen 2-Niveausystem besteht die spektral aufgelöste Fluoreszenz aus drei Komponenten (Mollow-Triplett).

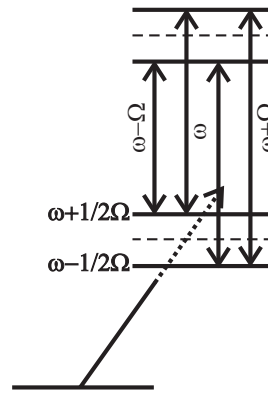


Abbildung 3.7: Betrachtet man das System aus Abb. 3.6 von einem dritten Niveau aus, erhält man das Autler-Townes-Doublett.

Das 1969 von Mollow vorhergesagte Triplett im Spektrum der Resonanzfluoreszenz [Mollow, 1969] kann mit dem Modell der bekleideten Zustände sehr einfach qualitativ erklärt werden: Zur erwarteten Fluoreszenz bei der Übergangsfrequenz beobachtet man zusätzlich zwei Seitenbänder mit den Frequenzen $\omega \pm \Omega$. Sie entstehen durch die verschiedenen Übergangsmöglichkeiten zwischen zwei benachbarten Sprossenpaaren der „Zustandsleiter“, wie in Abbildung 3.6 dargestellt. Rechts daneben zeigt Abbildung 3.7 dasselbe System um ein – nicht gekoppeltes – Atomniveau erweitert. Betrachtet man die „Zustandsleiter“ von einem dritten, durch das Lichtfeld vernachlässigbar beeinflussten Niveau aus, erhält man statt der erwarteten Absorptionslinie ein Liniendoublett, dessen Energie und Übergangsstärke von der Verstimmung und Rabi-Frequenz des koppelnden Lichtfeldes abhängt. Das Linienpaar wird nach seinen Entdeckern *Autler-Townes-Doublett* genannt, Autler und Townes selbst schreiben in [Autler and Townes, 1955] von *dynamischer AC-Stark-Aufspaltung*.

Mit dem letzten Beispiel wurde bereits das anschauliche System aus einem Zwei-Niveau-Atom und einem cw Lichtfeld verlassen. Nun folgt die Beschreibung eines Atoms mit drei Niveaus, dessen Übergänge von jeweils einem Lichtfeld getrieben werden. Hierzu werden einige Begriffe eingeführt: In Abbildung 3.8 ist auf der linken Seite ein so-

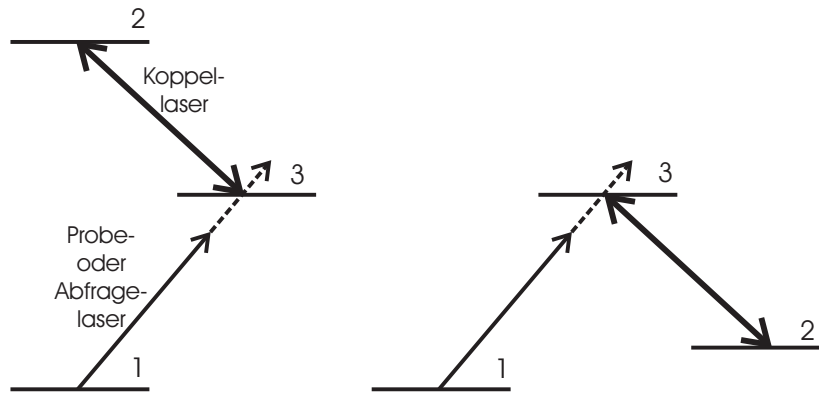


Abbildung 3.8: Links: Das Niveausystem zur Beobachtung von EIT in Quecksilber ist ein Leitersystem. Rechts: Entsprechendes Λ -System.

genanntes *Leitersystem* und auf der rechten Seite ein Λ -System skizziert. In beiden Systemen wird der Übergang vom Grundzustand $|1\rangle$ in den angeregten Zustand $|3\rangle$ durch den Probe- oder Abfragelaser getrieben. Die Bezeichnung Probe- bzw. Abfragelaser impliziert, daß die Rabi-Frequenz dieses Lasers so gering ist, daß sein Einfluß auf die Zustände des Atoms vernachlässigt werden kann. Der Kopplungslaser zeichnet sich durch ausreichend große Rabi-Frequenz aus, um Niveaus $|3\rangle$ und $|2\rangle$ zu mischen. In dieser Konfiguration kann auf dem Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ die Kopplung von $|3\rangle$ an $|2\rangle$ abgefragt werden.

Autler und Townes führten ihre Experimente an einem Leitersystem durch. Erst zwei Jahrzehnte später wurde das Analogon der Autler-Townes-Aufspaltung im Λ -System gemessen [Alzetta et al., 1976]. Die Besonderheit des Λ -Systems liegt darin, daß sich durch eine im allgemeinen höhere Lebensdauer des Niveaus $|2\rangle$ bereits bei geringer Kopplungsstärke ein starker Einbruch der Absorption im Maximum der ungestörten Absorptionslinie ergibt. Man spricht in diesem Fall nicht von induzierter Transparenz, sondern von *coherent population trapping (CPT)*, wobei die Population in einen gemischten Zustand, aus $|2\rangle$ und $|3\rangle$ gepumpt wird, der nicht mehr an den Probestrahl koppelt und daher die Bezeichnung *Dunkelzustand* trägt. In Abbildung 3.9 in der rechten Spalte ist dieses Verhalten des Λ -Systems für verschiedene Rabi-Frequenzen Ω_{23} des Kopplungslasers zu sehen. Man erkennt bereits bei schwacher Kopplung einen Rückgang des Absorptionskoeffizienten auf Null. Zerfällt das Niveau $|2\rangle$ jedoch rasch, wie im Leitersystem in der linken Spalte, wird eine Kopplungsstärke Ω_{23} von der Größe der Absorptionslinienbreite benötigt, um einen sichtbaren Effekt der Kopplung auf den Absorptionskoeffizienten zu erzielen. Eine Verringerung der Absorption durch Kopplung der Niveaus mit einem Lichtfeld ist in diesem Beispiel im Leitersystem schwieriger als im Λ -System, allgemein hängt der „CPT-Anteil“ der elektromagnetisch induzierten Transparenz von der Lebensdauer des Niveaus $|2\rangle$ ab.

Im Experiment wurde ein natürliches Gemisch der sieben stabilen Quecksilberisotope verwendet. Durch Isotopieverschiebung sind die Übergangsfrequenzen auf dem

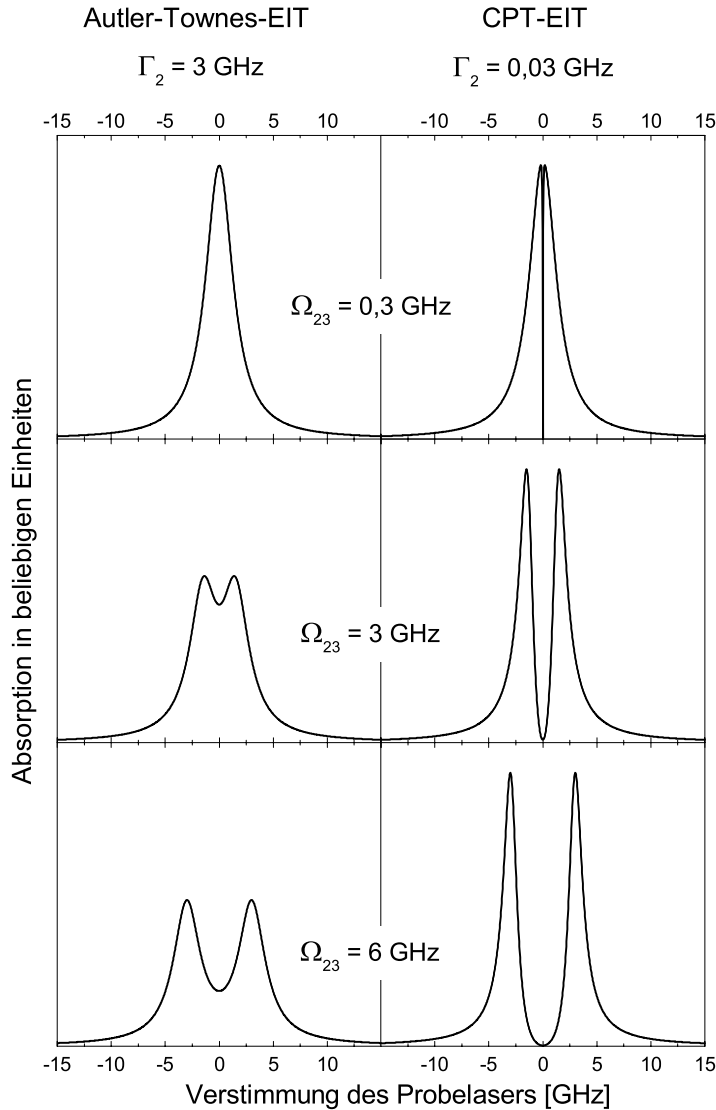


Abbildung 3.9: Links: Niveau $|2\rangle$ mit hoher Zerfallsrate (Leitersystem), rechts: $|2\rangle$ metastabil (Λ -System). Die Zerfallsrate von $|3\rangle$ ist in beiden Fällen $\Gamma_3 = 3$ GHz.

Übergang des Kopplungslasers $6^3P \rightarrow 7^1S$ verschieden (siehe Tabelle A.1) und jedes Isotop „sieht“ den Kopplungslaser mit einer anderen Verstimmung. Die Auswirkung einer nichtresonanten Kopplung zeigt Abbildung 3.10. Sie bezieht sich in der Bezeichnung der bekleideten und gemischten Zustände auf Abbildung 3.5 und zeigt die Energie bzw. Frequenz der Zustände in Abhängigkeit von δ_{23} . Der Abstand der gemischten Zustände mit gleicher Photonenzahl (gestrichelte Linien) ist die effektive Rabi-Frequenz, die in Gleichung (3.31) eingeführt wurde. Für große Verstimmung ist $\Omega_{\text{eff}} \approx \delta_{23}$ was bedeutet, daß sich die gemischten Zustände asymptotisch an die bekleideten Zustände annähern. Für große Verstimmungen des Kopplungslasers ist V_{AL} demnach vernachlässigbar.

Um berechnen zu können, welche Absorption ein Probestrahl bei gegebener Kopplung im Experiment erfährt, werden noch die Dipolmatrixelemente der beteiligten gemischten Zustände benötigt. Man erhält sie einfach über den Mischungswinkel aus

Gleichungen (3.29) und (3.30), betrachtet damit aber die gemischten Zustände als voneinander unabhängige Niveaus. Im Fall von CPT-EIT ist das allerdings nicht richtig, wie man in Abbildung 3.9 leicht sehen kann. Für Quecksilber beträgt die Lebensdauer des Niveaus $|2\rangle$ $T = 30$ ns, was zu kurz ist, um das Niveau als metastabil anzusehen (was dem CPT-EIT entspräche), aber auch zu groß, um Kohärenzen zu vernachlässigen und die gemischten Zustände als unabhängige Niveaus zu betrachten. Aus diesem Grund wird die Absorption aus der Kohärenz ρ_{13} , die man aus der Liouville-Gleichung eines gekoppelten Drei-Niveau-Systems erhält, berechnet. Der Hamilton-Operator dieses Systems ist:

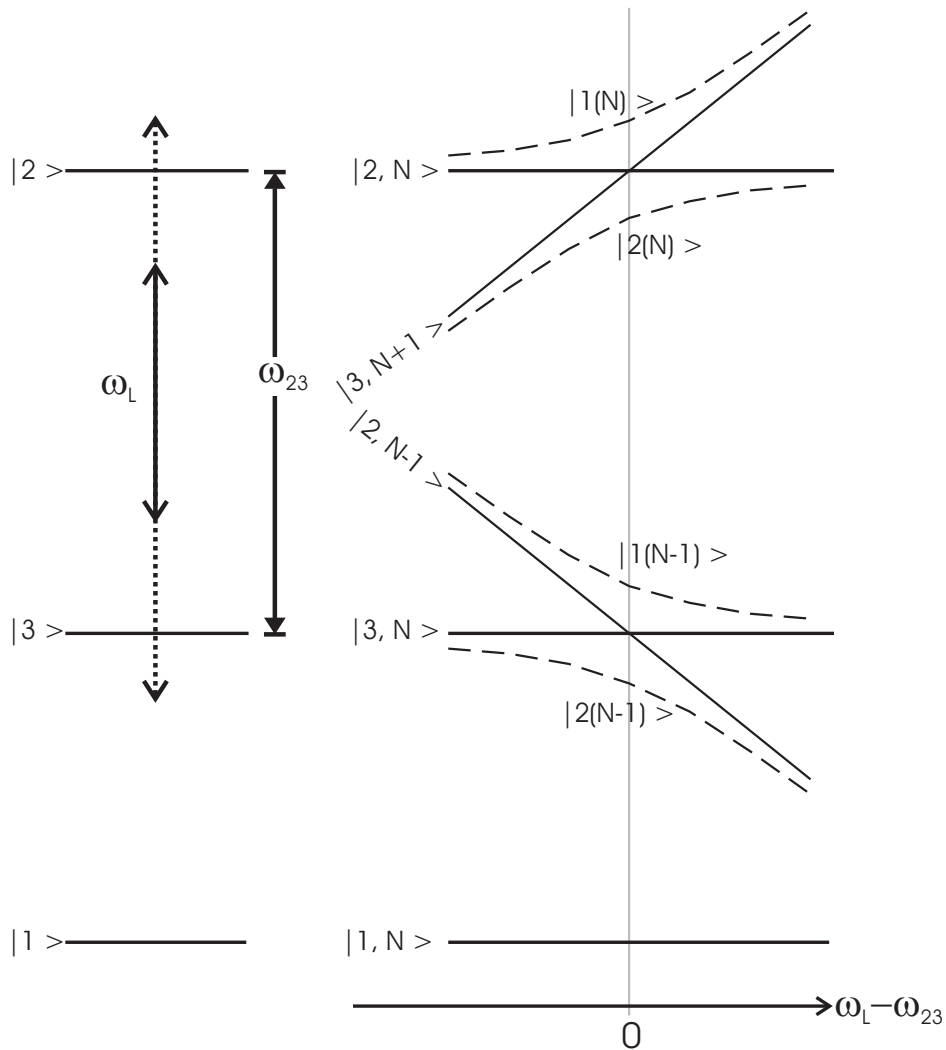


Abbildung 3.10: Links: Unbekleidetes Atom mit drei Niveaus. Die Niveaus $|3\rangle$ und $|2\rangle$ werden durch ω_L stark gekoppelt. Rechts: Dasselbe System in der Basis bekleideter Zustände für verschiedene Verstimmungen δ_{23} des Koppellasers gegen die Resonanz $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$. Die durchgezogenen Linien geben die Frequenz der bekleideten Zustände an, gestrichelten Linien die der gemischten Zustände $|i(N)\rangle$ und $|i(N-1)\rangle$, $i \in \{1, 2\}$. Die Bezeichnung der gemischten Zustände ist wie in Abb. 3.5 gewählt und bezieht sich nicht auf den Grundzustand.

$$H = \begin{pmatrix} \hbar\omega_1 & 0 & -\frac{\hbar}{2}\Omega_{13}e^{i\omega_{L1}t} \\ 0 & \hbar\omega_2 & -\frac{\hbar}{2}\Omega_{23}e^{i\omega_{L2}t} \\ -\frac{\hbar}{2}\Omega_{31}e^{-i\omega_{L1}t} & -\frac{\hbar}{2}\Omega_{32}e^{-i\omega_{L2}t} & \hbar\omega_3 \end{pmatrix}. \quad (3.34)$$

In den Nebendiagonalelementen sind die Kopplungen der atomaren Übergänge $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ an Laser L1 mit Rabi-Frequenz Ω_{13} und $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ an Laser L2 mit Rabi-Frequenz Ω_{23} zu sehen³. Der Übergang $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ wird zwar nicht getrieben, doch sind beide Niveaus über Dämpfung miteinander gekoppelt. Mit Gleichungen (3.7) und (3.8) können die Zerfallsraten der einzelnen Dichtematrixeinträge angegeben werden. In der Dämpfungsmatrix Γ entspricht das Element Γ_{ij} der Dämpfung des Dichtematrixelements ϱ_{ij}

$$\Gamma = \begin{pmatrix} +\Gamma_3\varrho_{33} & -\frac{1}{2}\Gamma_2\varrho_{12} & -\frac{1}{2}\Gamma_3\varrho_{13} \\ -\frac{1}{2}\Gamma_2\varrho_{21} & -\Gamma_3\varrho_{22} & -\frac{1}{2}(\Gamma_2 + \Gamma_3)\varrho_{23} \\ -\frac{1}{2}\Gamma_3\varrho_{31} & -\frac{1}{2}(\Gamma_2 + \Gamma_3)\varrho_{32} & -\Gamma_3\varrho_{33} + \Gamma_2\varrho_{22} \end{pmatrix}. \quad (3.35)$$

Im allgemeinen können die Kohärenzen zusätzliche Dämpfung durch Stöße der Atome, bei denen zwar kein Übergang stattfindet, aber die Phase des Zustandes gestört wird erfahren [Meystre and Sargent III, 1990]. Diese Dephasierungsstöße können im Quecksilberdampf bei Raumtemperatur jedoch vernachlässigt werden. Die Bewegungsgleichung erhält nun mit Dämpfung folgende Form:

$$\dot{\varrho} = -\frac{i}{\hbar}(H\varrho - \varrho H) + \Gamma \quad (3.36)$$

Sie zeitunabhängig zu lösen ist das nächste Ziel. Dazu kann man annehmen, daß die Population im Grundzustand bleibt:

$$\begin{aligned} \varrho_{11} &= 1 \\ \varrho_{22} = \varrho_{33} &= 0 \\ \Rightarrow \varrho_{23} &= 0 \end{aligned}$$

Um die Näherung zu erfüllen, muß Ω_{13} klein sein, die Intensität also weit unter der Sättigungsintensität liegen. Aus Gleichung (3.36) erhält man damit OBEs in denen die Kohärenzen noch zeitabhängige Komponenten mit hoher Frequenz besitzen. Durch eine Transformation der Kohärenzen können sie eliminiert werden.

$$\varrho_{31} \rightarrow \varrho_{31}e^{-i\omega_{L1}t} \quad (3.37)$$

$$\varrho_{21} \rightarrow \varrho_{31}e^{i(-\omega_{L1}+\omega_{L2})t} \quad (3.38)$$

Diese Transformation entspricht gerade der Betrachtung der Wellenfunktion im Dirac-Bild [Shore, 1990]. Bekannt ist sie unter der Bezeichnung *Drehwellennäherung*⁴, in

³Laser L1 (254 nm) und L2 (408 nm) wirken streng genommen auf alle dipolerlaubten Übergänge des Atoms. Da L2 ca. 150 nm zu langwellig für den Übergang ϱ_{13} bzw. ϱ_{32} , L1 dagegen nur wenige GHz verstimmt ist, kann die Wirkung von L2 auf ϱ_{13} gegenüber der von L1 vernachlässigt werden. Dieselbe Argumentation gilt auch für die Wirkung von L1 auf ϱ_{23} .

⁴engl.: rotating wave approximation (RWA)

der nichtresonante Terme gegen resonante im Nenner der Kohärenzen vernachlässigt werden. Durch die beiden Näherungen erhält man einen übersichtlichen Ausdruck für die von Null verschiedenen Kohärenzen:

$$\varrho_{31} = \frac{-\Omega_{13}(\Gamma_2 - 2i(\omega_1 - \omega_2 + \omega_{L1} - \omega_{L2}))}{i\Omega_{23}^2 + (i\Gamma_3 + 2(\omega_1 - \omega_3 + \omega_{L1}))(\Gamma_2 - 2i(\omega_1 - \omega_2 + \omega_{L1} - \omega_{L2}))} \quad (3.39)$$

$$\varrho_{21} = \frac{-i\Omega_{13}\Omega_{23}}{i\Omega_{23}^2 + (i\Gamma_3 + 2(\omega_1 - \omega_3 + \omega_{L1}))(\Gamma_2 - 2i(\omega_1 - \omega_2 + \omega_{L1} - \omega_{L2}))} \quad (3.40)$$

Wie in Gleichung (3.17) können aus ϱ_{31} und ϱ_{21} die Suszeptibilitäten beider Übergänge berechnet werden. Auch die Berücksichtigung der Dopplerverbreiterung im Quecksilberdampf erfolgt hier analog zu Kapitel 3.2. Die numerische Umsetzung der Berechnung findet man im Anhang B.

Abbildung 3.11 zeigt anhand eines Isotops mit einer Dopplerverbreiterung für $T = 300$ K, wie sich die Verstimmung δ_{23} des Koppellasers auf die Dipolmatrixelemente der gemischten Zustände auswirkt: Für große Verstimmungen ist die zweite Absorptionslinie sehr schwach. Kann man sie vernachlässigen, bleibt noch eine leichte Verschiebung der Absorptionslinie des ungestörten Niveaus. Dieser Fall ist unter dem Begriff *light shift* bekannt. Je kleiner die Verstimmung, desto stärker die zweite Linie, bis für $\delta_{23} = 0$ beide Niveaus gleich stark absorbieren.

Die Effizienz des VWM-Prozesses zur Erzeugung kohärenter VUV-Strahlung wird wesentlich durch die Verstimmung der Fundamentalstrahlen gegen die atomaren Resonanzen beeinflusst, deshalb trägt im wesentlichen eines der Quecksilberisotope zur Frequenzkonversion bei. Es ist daher sinnvoll, die Resonanzen des häufigsten Isotops ^{202}Hg zu nutzen. Will man VWM mit EIT kombinieren, muß demnach Transparenz auf dem Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ von ^{202}Hg induziert werden. Der Koppellaser ist also für dieses Isotop resonant zu wählen⁵ und man muß die Frage stellen: Bei welcher Frequenz absorbieren für diese Parameter die gemischten Zustände der anderen Isotope? Ist die Kopplung für eines dieser Isotope derart, daß ein gemischter Zustand in dem erzeugten Transparenzfenster von ^{202}Hg liegt, wird es nicht möglich sein, den VWM-Prozess effizient zu treiben.

Die Absorption eines natürlichen Gemischs von Quecksilberisotopen bei 300 K auf dem Übergang $|1\rangle = 6^1S \rightarrow |3\rangle = 6^3P$ ist in Abbildung 3.12 dargestellt. In der linken Spalte ist der Imaginärteil der Suszeptibilität in Form des Absorptionskoeffizienten, in der rechten Spalte die Dispersion (Brechungsindex $n - 1$) für verschiedene Kopplungsstärken Ω_{23} und $\delta_{23} = 0$ bezogen auf ^{202}Hg zu sehen. Bis zu einer Rabi-Frequenz von $\Omega_{23} = 5$ GHz des Koppellasers erreicht noch kein gemischter Zustand eines anderen Isotops den Bereich der reduzierten Absorption von ^{202}Hg .

⁵Es kann auch mit nichtresonanter Kopplung Transparenz erzeugt werden, dazu müßte Ω_{23} allerdings weit größer sein als im Experiment möglich.

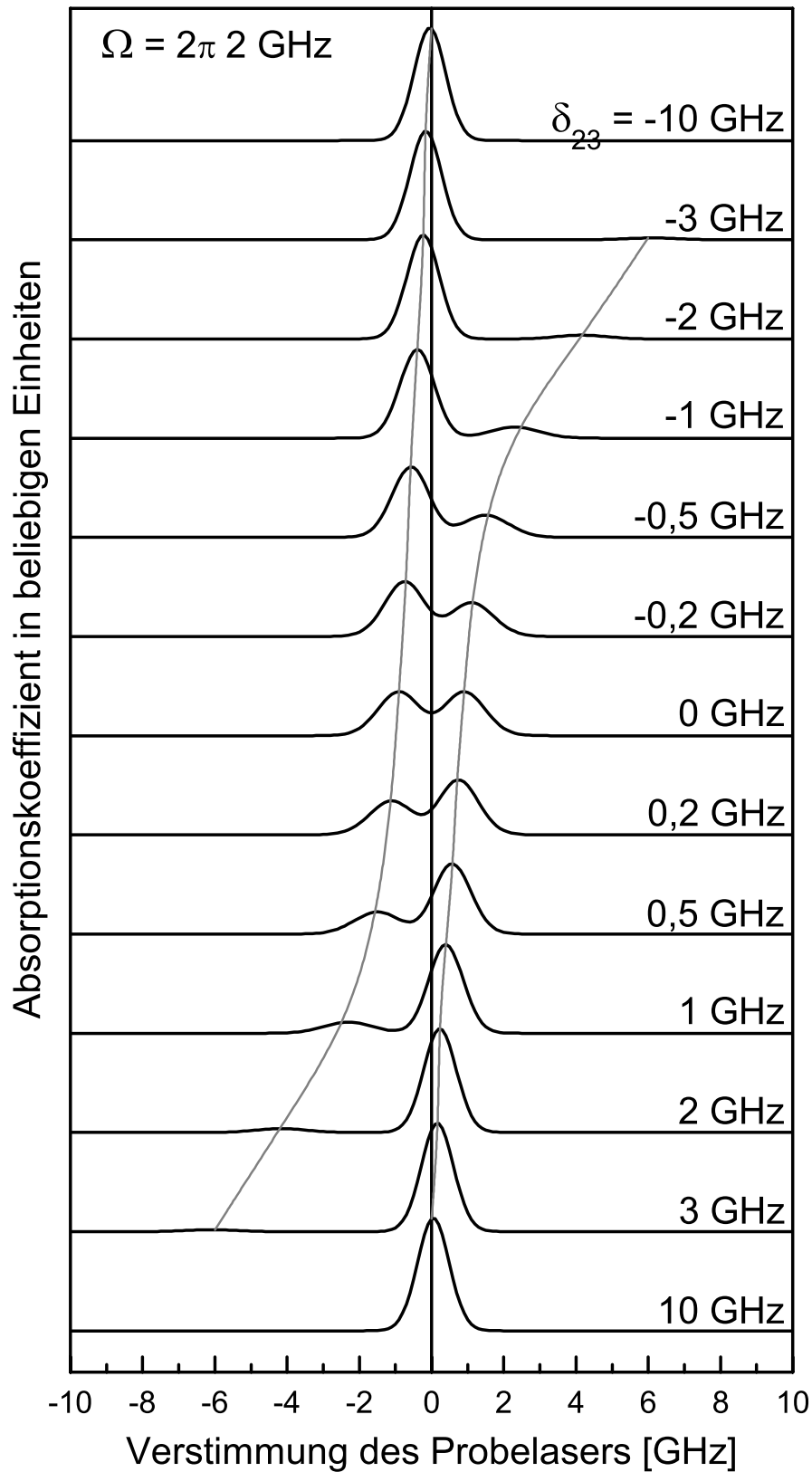


Abbildung 3.11: Aufspaltung durch einen verstimmtten Koppellaser: Rabi-Frequenz $\Omega = 2\pi \cdot 2 \text{ GHz}$ für alle Absorptionsprofile, die Verstimmung $\delta = \omega_{6^2P \rightarrow 7^1S} - \omega_L$ des Koppellasers ist am rechten Rand angegeben. Die schwarze Linie gibt die Frequenz des ungestörten Übergangs an, die grauen die Frequenzen der gekoppelten Zustände.

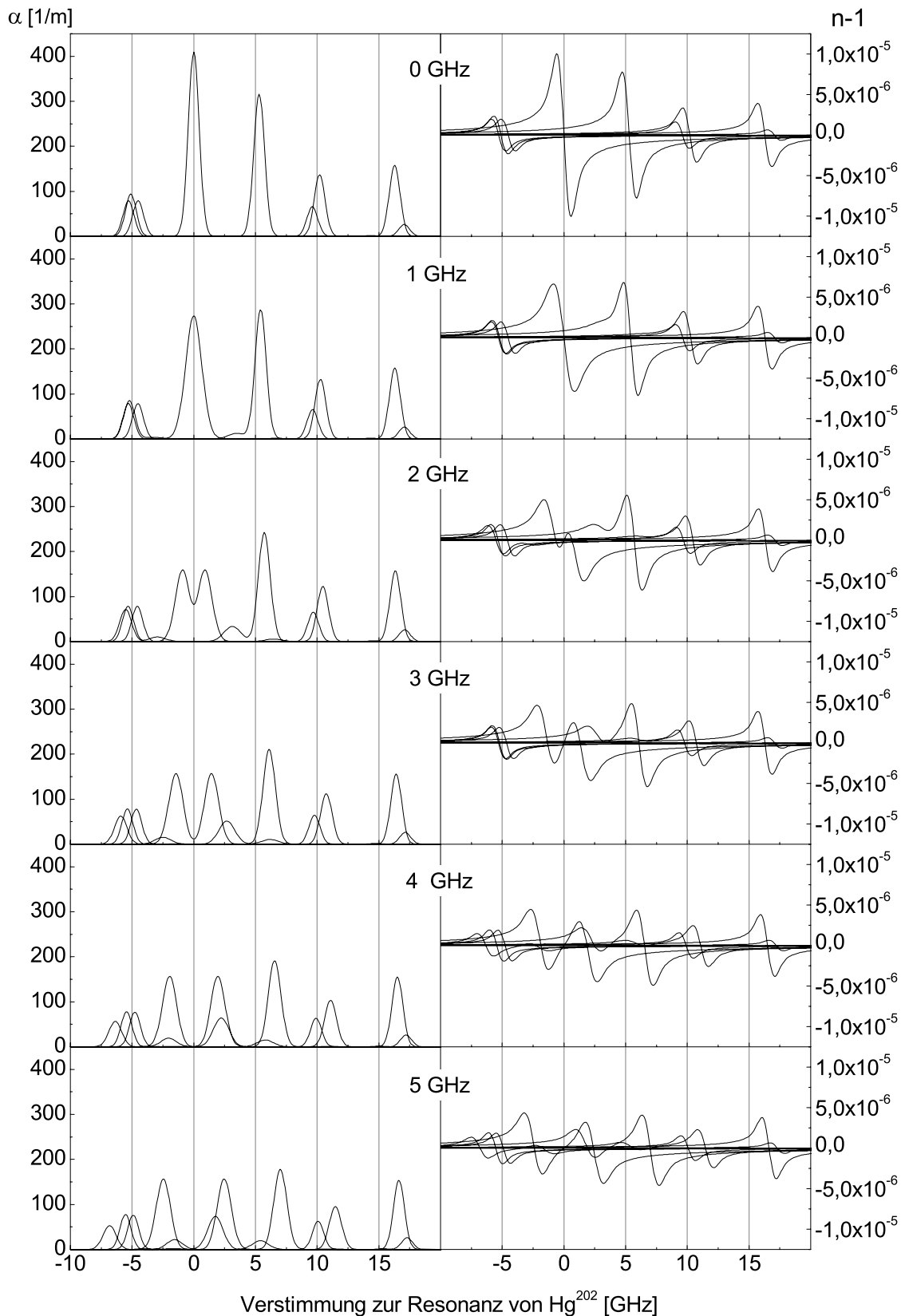


Abbildung 3.12: Spalte links: Absorptionskoeffizient für $6^1S \rightarrow 6^3P$ für verschiedene Rabi-frequenzen des Koppellasers ($\delta_{23} = 0$ für ^{202}Hg), rechts daneben die entsprechende Dispersion.

Wird Ω_{23} weiter erhöht als in Abbildung 3.12 zu sehen, wird sich ein gemischter Zustand von ^{200}Hg in das Transparenzfenster hineinschieben, allerdings liegt die dafür nötige Rabi-Frequenz $\Omega_{23} > 5 \text{ GHz}$ außerhalb des experimentell zugänglichen Parameterbereichs.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden unter anderem Messungen vorgenommen, die Fluoreszenz aus dem Niveau $|2\rangle$ heraus nutzten, um die Lage der gemischten Zustände zu bestimmen. Hierfür ist die Näherung, daß die Population des Mediums vollständig im Grundzustand bleibt, nicht mehr gültig. Eine Lösung der OBEs ohne Annahmen über die Populationsverteilung findet man in [Hänsch and Toschek, 1970]. Der analytische Ausdruck für die Kohärenzen ist in diesem Artikel ebenfalls noch „kompakt“, allerdings ist die Populationsverteilung kein Ergebnis der OBEs, sondern muß „von Hand“ eingesetzt werden. Um auch die Populationsverteilung aus den Blochgleichungen zu erhalten, müssen – wie das folgende Kapitel zeigen wird – deutliche Abstriche an die Übersichtlichkeit der Lösungen gemacht werden.

3.4 Zwei-Photonenabsorption mit zwei starken kontinuierlich kohärenten Lichtfeldern

Will man EIT zur Erhöhung der Konversionseffizienz des VWM in Quecksilberdampf nutzen, muß man sich der Frage stellen, ob die Transparenz für den Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ aus dem vorangehenden Kapitel bei höheren Rabifrequenzen des Probelasers erhalten bleibt. Schließlich möchte man die Summenfrequenzbildung mit starken Fundamentalstrahlen treiben. Für einen starken Laser für den Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ ist der Populationstransfer allerdings nicht mehr vernachlässigbar. Die Ergebnisse aus Kapitel 3.3 können hierfür nicht übernommen werden.

Ein von zwei starken Lasern getriebenes Drei-Niveau-System ist bereits in der Literatur dafür bekannt, verschiedene Linienformen für die Zwei-Photonen-Absorption zu besitzen (z. B. [Yu et al., 1997], [Wielandy and Gaeta, 1998]). Dieses Kapitel wird die wichtigsten unter ihnen zeigen und erklären.

Zur experimentellen Charakterisierung eines solchen Systems wurden sowohl die Transmission auf dem Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ als auch die Population in $|2\rangle$ durch die Fluoreszenz bei 1014 nm (siehe Abbildung 3.13) im Experiment gemessen. Im Niveau-

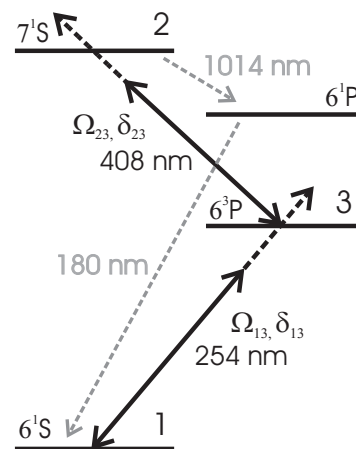


Abbildung 3.13: 3-Niveausystem mit zwei starken, durchstimmbaren Lichtfeldern und dem nicht gekoppelten Niveau 6^1P . Graue gestrichelte Pfeile: Spontaner Zerfall $7^1S = |2\rangle \rightarrow 6^1S = |1\rangle$ über 6^1P . Die Wellenlängen beziehen sich auf den jeweiligen Übergang in Quecksilber.

system von Quecksilber zerfällt $|2\rangle = 7^1S$ zu 87% in 6^1P und nur zu 13% in $|3\rangle = 6^3P$ [Benck et al., 1989]. Das Niveau 6^1P wiederum zerfällt ausschließlich in $|1\rangle = 6^1S$. Die Lebensdauer von 6^1P beträgt nur 0,3 ns [Garrett, 1932] und so zerfällt das Atom aus 6^1P quasi „sofort“ weiter in den Grundzustand. In der Rechnung wird daher die Lebensdauer des Übergangs $7^1S \rightarrow 6^1P$ für $7^1S \rightarrow 6^1S$ übernommen.

Die analytische zeitunabhängige Lösung der Liouville-Gleichung ist ohne Annahmen über die Populationsverteilung sehr aufwendig und wird nicht im selben Maß mit Anschauung für das System belohnt. Aus diesem Grund wurde sie der Literatur entnommen [Bloembergen and Levenson, 1976, Brewer and Hahn, 1975] und auf die Situation zweier kollinear Laserstrahlen verschiedener Wellenlängen angepaßt. Die verwendeten Näherungen – die meisten sind aus dem vorangegangenen Kapitel bekannt – sind im folgenden zusammengefaßt:

Resonante Kopplung Licht der Frequenz ω_1 wirkt ausschließlich auf den Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ und der Übergang $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ wird nur von Licht mit Frequenz ω_2 getrieben. Das äußert sich im Wechselwirkungsoperator V_{AL} und ist wegen $\lambda_{L1} \neq \lambda_{L2}$ gerechtfertigt.

RWA Durch Transformation der Kohärenzen $\varrho_{13} = \tilde{\varrho}_{13}e^{i(\omega_1+k_1v_x)t}$, $\varrho_{23} = \tilde{\varrho}_{23}e^{i(\omega_2+k_2v_x)t}$ und $\varrho_{12} = \tilde{\varrho}_{12}e^{i(\omega_1+\omega_2+(k_1+k_2)v_x)t} \approx \tilde{\varrho}_{12}e^{i(\omega_1+\omega_2)t}$ werden alle schnell oszillierenden und nichtresonanten Terme aus den Nebendiagonalelementen eliminiert.

Zerfallsraten und Lebensdauern Die verschiedenen Zerfallsraten aus der Dämpfungsmatrix in Gleichung (3.35) werden auf drei Lebensdauern reduziert:

$$1/T_2 = \Gamma_{31}/2 = \Gamma_{32}/2 \quad \text{Zerfall von } \varrho_{13} \text{ und } \varrho_{23}$$

$$1/\tau_2 = \Gamma_{21}/2 \quad \text{Zerfall von } \varrho_{12}$$

$$1/T_1 = \Gamma_{11} = \Gamma_{22} = \Gamma_{33} \quad \text{Zerfall von } \varrho_{33} \text{ und } \varrho_{22}, \text{ Zuwachs von } \varrho_{11}$$

Populationsverteilung Es wird angenommen, daß sich die Population vollständig im Grundzustand befindet, wenn kein Licht eingestrahlt wird.

Die Dopplerverbreiterung des Quecksilberdampfs wird, wie bereits in Kapitel 3.2, in der Verstimmung der Lichtfelder berücksichtigt, um später über die Geschwindigkeitsverteilung der Atome im Dampf zu integrieren:

$$\Delta_{13} = \omega_1 \cdot \left(1 + \frac{v}{c}\right) - \omega_{31} \quad (3.41)$$

$$\Delta_{23} = \omega_2 \cdot \left(1 + \frac{v}{c}\right) - \omega_{23} \quad (3.42)$$

Die Populationen lassen sich aus den in [Bloembergen and Levenson, 1976] gegebenen Gleichungen für die Populationsdifferenzen und der Tatsache, daß die Populationsverteilung in der Summe eins ergeben muß berechnen:

$$\varrho_{22} - \varrho_{33} = \frac{-P}{T_1(MP - DQ)} \quad (3.43)$$

$$\varrho_{11} - \varrho_{22} = \frac{Q}{T_1(MP - DQ)} \quad (3.44)$$

$$\varrho_{11} + \varrho_{22} + \varrho_{33} = 1, \quad (3.45)$$

mit den Abkürzungen⁶

$$M = \overline{abe} + ab\bar{e} - \frac{2\Omega_{13}^2/T_2}{\Delta_{13}^2 + 1/T_2^2} + \frac{2\Omega_{23}^2/T_2}{\Delta_{23}^2 + 1/T_2^2} \quad (3.46)$$

⁶ $\overline{x} = x^* = (x \text{ komplex konjugiert}).$

$$Q = \bar{a}bj + ab\bar{j} - \left(\frac{2\Omega_{13}^2/T_2}{\Delta_{13}^2 + 1/T_2^2} + \frac{4\Omega_{23}^2/T_2}{\Delta_{23}^2 + 1/T_2^2} + \frac{1}{T_1} \right) \quad (3.47)$$

$$D = - \left(\frac{2\Omega_{13}^2/T_2}{\Delta_{13}^2 + 1/T_2^2} + \frac{1}{T_1} \right) + \frac{\bar{a}e}{\Delta_{13} + i/T_2} + \frac{a\bar{e}}{\Delta_{13} - i/T_2} \quad (3.48)$$

$$P = - \frac{2\Omega_{13}^2/T_2}{\Delta_{13}^2 + 1/T_2^2} + \frac{\bar{a}j}{\Delta_{13} + i/T_2} + \frac{a\bar{j}}{\Delta_{13} - i/T_2}, \quad (3.49)$$

in denen wiederum folgende Substitutionen verwendet werden:

$$a = \frac{\Omega_{13}\Omega_{23}}{(\Delta_{13} + \Delta_{23} - i/\tau_2) - \frac{\Omega_{13}^2}{\Delta_{23} - i/T_2} - \frac{\Omega_{23}^2}{\Delta_{13} - i/T_2}} \quad (3.50)$$

$$b = \frac{1}{\Delta_{13} - i/T_2} + \frac{1}{\Delta_{23} - i/T_2} \quad (3.51)$$

$$e = i\Omega_{13}\Omega_{23} \left(\frac{-1}{\Delta_{13} + i/T_2} + \frac{1}{\Delta_{23} + i/T_2} \right) \quad (3.52)$$

$$j = -i\Omega_{13}\Omega_{23} \left(\frac{2}{\Delta_{23} + i/T_2} + \frac{1}{\Delta_{13} + i/T_2} \right) \quad (3.53)$$

Die Kohärenzen lassen sich als Funktion der Populationsdifferenzen angeben

$$\tilde{\varrho}_{12} = a \left(\frac{\varrho_{22} - \varrho_{33}}{\Delta_{23} - i/T_2} + \frac{\varrho_{11} - \varrho_{33}}{\Delta_{13} - i/T_2} \right) \quad (3.54)$$

$$\tilde{\varrho}_{13} = \frac{-\Omega_{23}\tilde{\varrho}_{12} - \Omega_{13}(\varrho_{11} - \varrho_{33})}{\Delta_{13} - i/T_2} \quad (3.55)$$

$$\tilde{\varrho}_{23} = \frac{\Omega_{13}\tilde{\varrho}_{21} + \Omega_{23}(\varrho_{22} - \varrho_{33})}{\Delta_{23} + i/T_2}, \quad (3.56)$$

die man aus Gleichungen (3.43) und (3.44) erhält. Um die algebraische Auswertung und die numerische Integration für Dopplerverbreiterung zu beschleunigen, wurden für Abbildungen, die der Anschauung dienen und nicht zum Vergleich mit dem Experiment herangezogen werden, die Zerfallszeiten T_1 , T_2 und τ_2 gleichgesetzt⁷. Die Vereinfachung der Lebensdauern führt für den Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ zu einem geringfügig größeren Kohärenzzerfall als im Experiment.

3.4.1 Konsistenz-Test der Rechnung

Aus der Kohärenz $\tilde{\varrho}_{13}$ kann für $\Omega_{23} = 0$ die lineare Absorption des Übergangs $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ berechnet werden. Das Ergebnis ist identisch mit Gleichung (3.16) und kann anhand des Quellcodes im Anhang B nachvollzogen werden. Aus dem in Kapitel 3.3 gewonnenen Bild des getriebenen Drei-Niveausystems ergeben sich einige intuitive Erwartungen an die Populationsverteilung für den Fall, daß Ω_{23} wieder die Rolle des Kopplungslasers übernimmt und $\Omega_{13} \ll \Omega_{23}$ die Kopplung auf dem Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ abfragt: Trägt man ϱ_{22} über δ_{13} auf, so sollten analog zu Abbildung 3.11 zwei Maxima in der Population mit einem Frequenzabstand von Ω_{eff} auftreten. Sie sollten zudem noch

⁷durch Ersetzen von T_1 und τ_2 durch T_2 in Gleichungen (3.47) und (3.50)

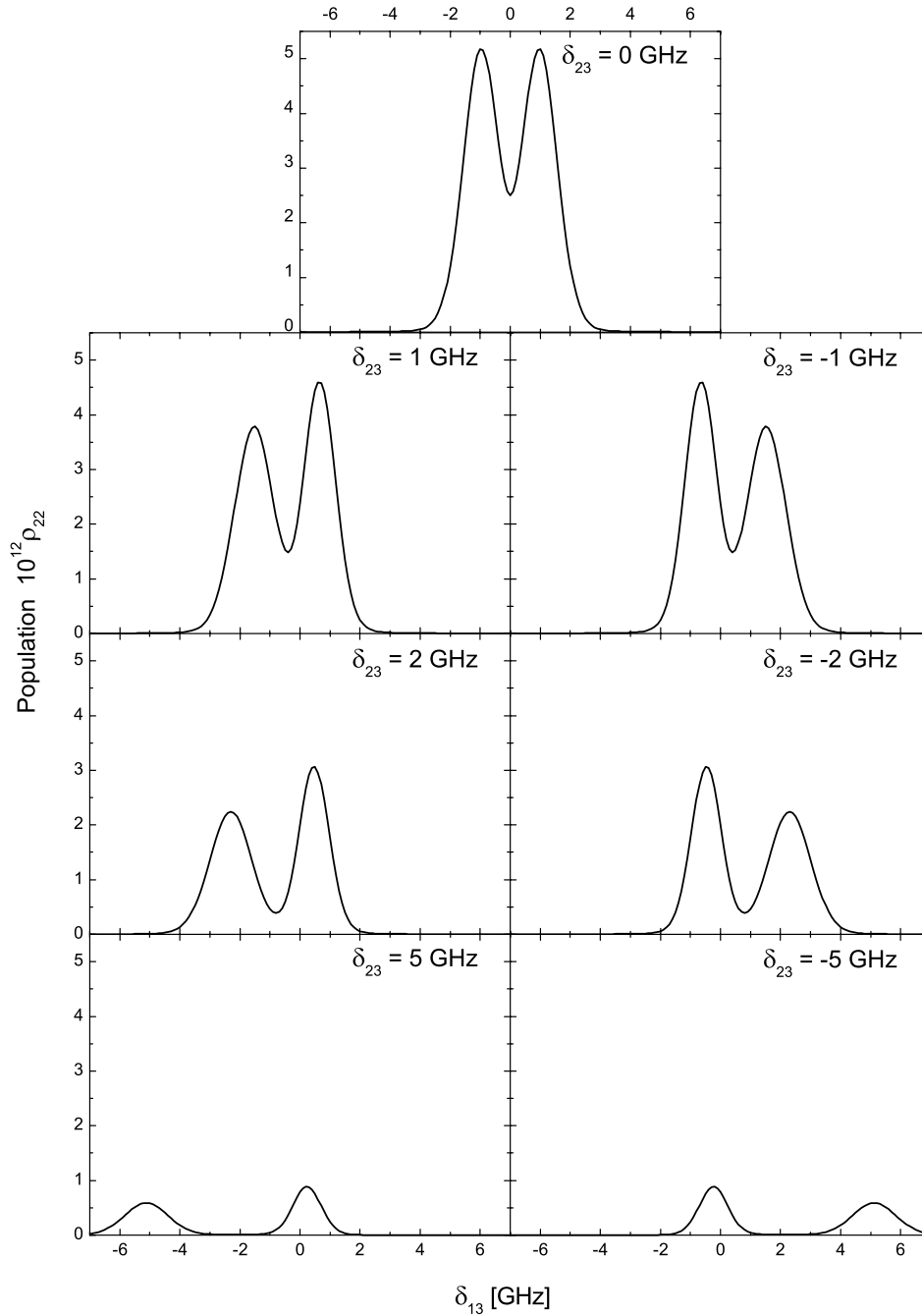


Abbildung 3.14: Population ρ_{22} in Abhängigkeit der Verstimmung des Probelaser δ_{13} mit $\Omega_{13} = 1$ kHz für verschiedene Kopplunglaserverstimmungen δ_{23} mit $\Omega_{23} = 2$ GHz für ein Quecksilber-Isotop bei 300 K.

für $\delta_{23} = 0$ symmetrisch sein und bei zunehmender Verstimmung des Kopplungslasers sollte sich die Absorption immer mehr der eines ungestörten Atoms annähern. Wie Abbildung 3.14 zeigt, ist diese Vorstellung zutreffend, allerdings bleibt für große Verstimmungen δ_{23} das von δ_{13} weiter entfernte Maximum stärker als das in Abbildung 3.11. Dieser Effekt stellt bereits die erste Besonderheit der Zwei-Photonenabsorption eines getriebenen Systems dar und wird im nächsten Unterkapitel näher betrachtet.

3.4.2 Asymmetrie der Populationsverteilung

Um zu verstehen, woher die unterschiedliche Auswirkung der starken Kopplung durch Ω_{23} für Ein- und Zwei-Photonenabsorption rührt, ist in Abbildung 3.15 die Population in jedem der drei Zustände bei gleichen Parametern dargestellt: Unter Einfluß eines schwachen Lasers für den ersten Übergang wird nur wenig Population aus dem Grundzustand herausgepumpt. Der starke Laser für den zweiten Übergang spaltet durch Verstimmung beide angeregten Zustände asymmetrisch auf. Die Auswirkungen dieser Asymmetrie auf die Frequenzabhängigkeit der Populationen ϱ_{33} und ϱ_{22} wird im folgenden erläutert.

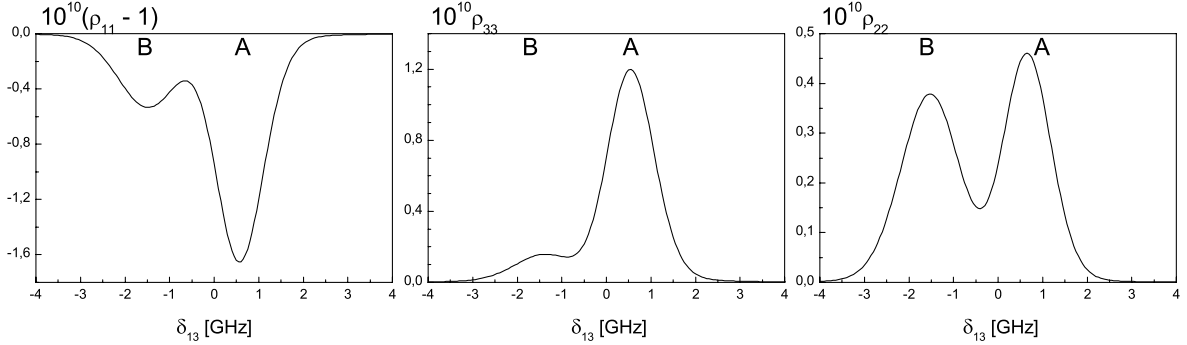


Abbildung 3.15: Population in den Niveaus $|1\rangle$, $|3\rangle$ und $|2\rangle$ bei Rabifrequenzen $\Omega_{13} = 10$ kHz und $\Omega_{23} = 1$ GHz für Quecksilberatome bei $T = 300$ K. Verstimmung des Kopplungslasers $\delta_{23} = 1$ GHz, die des Probelasers δ_{13} ist auf der Abszisse aufgetragen. Erläuterungen zu A und B im Text.

Die Asymmetrie ist in ϱ_{33} wesentlich deutlicher zu sehen als in ϱ_{22} . Eine anschauliche Erklärung dazu liefert Abbildung 3.16: In horizontaler Richtung aufgetragen ist die Verstimmung des Kopplungslasers δ_{23} , wodurch bei fester Rabifrequenz die Lage der gemischten Zustände gegeben ist. Auf der Ordinaten ist die Energie aufgetragen. Die beiden Zustände, aus denen heraus man Fluoreszenz bei 1014 nm beobachten kann sind $|2(N)\rangle$ und $|3(N+1)\rangle$; das Niveau 6^1P , in das beide gemischten Zustände zerfallen wird hier aus bereits erläuterten Gründen vernachlässigt. Welche Dipolmatrixelemente tragen nun zum effektiven Matrixelement des Zwei-Photonen-Übergangs bei?

Zur Antwort auf die Frage ist in Abbildung 3.16 als Beispiel ein Zwei-Photonenabsorptionsprozeß für feste Verstimmung $\delta_{23} > 0$ mit variabler Verstimmung δ_{13} eingezeichnet. Für festes δ_{23} gibt es zwei Möglichkeiten, mit einem durchstimmbaren Probelaser die Zustände $|2(N)\rangle$ und $|3(N+1)\rangle$ anzuregen:

$$\text{A : } |1(N)\rangle \rightarrow |3(N)\rangle \rightarrow |3(N+1)\rangle \quad (3.57)$$

$$\text{B : } |1(N)\rangle \rightarrow |2(N-1)\rangle \rightarrow |2(N)\rangle \quad (3.58)$$

Für Weg A wird ein starker Übergang ($|1(N)\rangle \rightarrow |2(N-1)\rangle$) mit einem schwachen ($|2(N-1)\rangle \rightarrow |2(N)\rangle$) kombiniert, für Weg B ist es umgekehrt: Der erste Übergang

($|1(N)\rangle \rightarrow |3(N)\rangle$) ist schwach und der zweite ($|3(N)\rangle \rightarrow |3(N+1)\rangle$) stark. Insgesamt ist das effektive Matrixelement der Zwei-Photonenübergänge A und B also ungefähr gleich groß, obwohl die einzelnen Dipolmatrixelemente unterschiedlich sind.

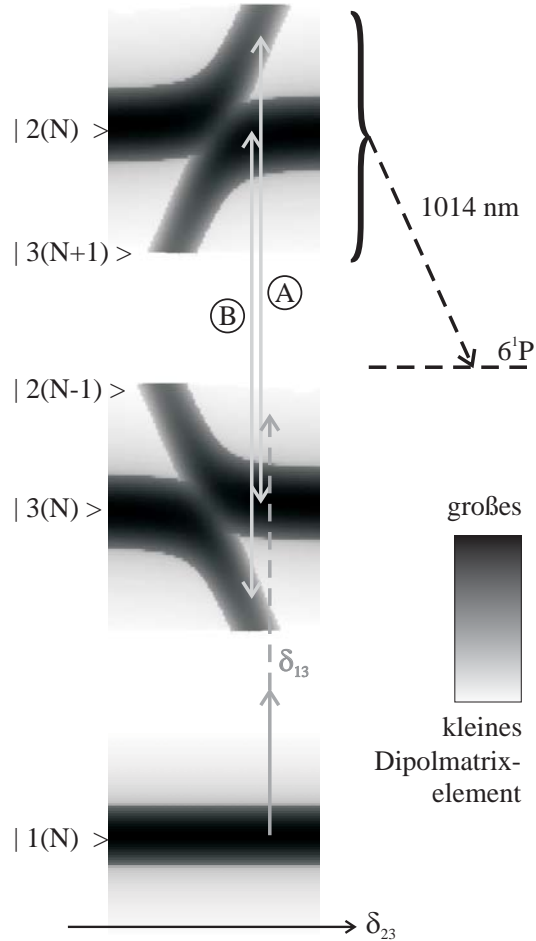


Abbildung 3.16: Diese Abbildung entspricht der Abbildung 3.10, hier nun unter Berücksichtigung des Dopplereffekts. Sie zeigt die Frequenzverschiebung der gemischten Zustände in Abhängigkeit der Verstimmung des Kopplungslasers δ_{23} . A und B zeigen die beiden Möglichkeiten, für eine feste Verstimmung δ_{23} die Zwei-Photonenabsorption resonant zu erhöhen. Es wird jeweils ein „starker“ mit einem „schwachen“ Übergang kombiniert.

3.4.3 Abhängigkeit der Zwei-Photonenabsorption von Probelaser- und Kopplungslaser-Verstimmung

In diesem Abschnitt soll geklärt werden, welche Linienprofile sich bei der Zwei-Photonenabsorption in einem Drei-Niveau-System mit einem starken und einem schwachen Lichtfeld ergeben. Will man ein Lichtfeld in der Frequenz konstant halten und das zweite verstimmen, ergeben sich vier Möglichkeiten: Das starke Lichtfeld kann entweder den Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ oder $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$ treiben, außerdem kann entweder der Probe- oder der Kopplungslaser durchgestimmt werden. Alle vier Fälle sind in Abbildung 3.17 dargestellt.

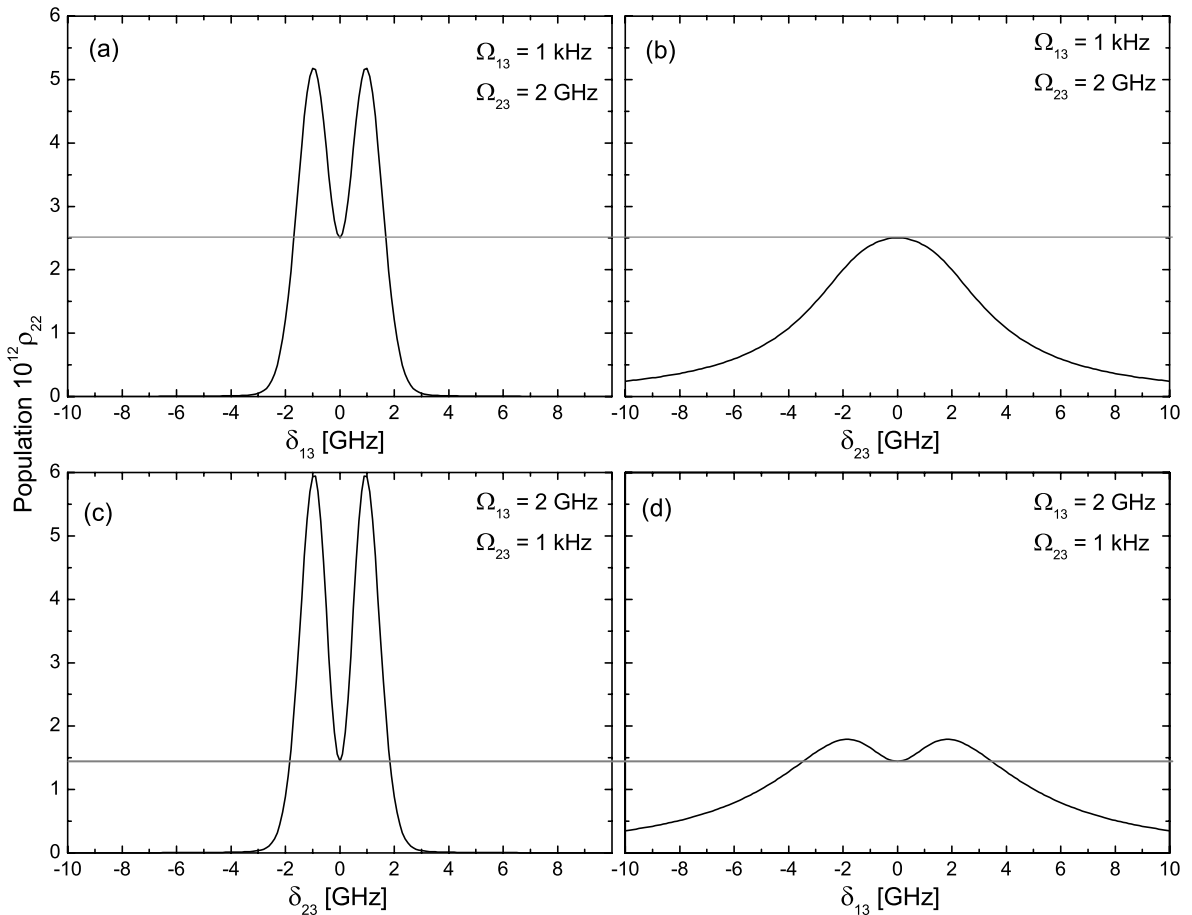


Abbildung 3.17: Population ρ_{22} für Quecksilberdampf bei 300 K. Der nicht durchgestimmte Laser hat jeweils $\delta = 0$, die Rabi-Frequenzen sind in den Graphen vermerkt.

Die vier Graphen der Abbildung 3.17 unterscheiden sich sowohl in der maximalen Population ρ_{22} als auch in der Linienform deutlich voneinander:

1. In (b) und (d) wird über einen größeren Frequenzbereich als in (a) und (c) Population in $|2\rangle$ gebracht. Die Gesamtbreite der Populationsverteilung ist in (a) und (c) bzw. (b) und (d) jeweils gleich groß.
2. Der Kontrast (Verhältnis von maximaler Population zum Populationsrückgang

zwischen den gemischten Zuständen) ist in Abbildung (a) kleiner als in (c) und in (b) kleiner als in (d).

3. ϱ_{22} ist für $\delta_{13} = \delta_{23} = 0$ in (a) und (b) sowie (c) und (d) gleich groß.

Der letzte Punkt ergibt sich notwendigerweise daraus, daß für $\delta_{23} = 0$ in Abbildung 3.17 (a) und (c) sowie $\delta_{13} = 0$ in (b) und (d) alle Parameter der nebeneinander liegenden Graphen identisch sind und somit $\varrho_{22}^{(a)} = \varrho_{22}^{(b)}$ bzw. $\varrho_{22}^{(c)} = \varrho_{22}^{(d)}$ gelten muß. Der zweite Punkt ist ebenfalls leicht zu verstehen: In den beiden Graphen mit besserem Kontrast, Abbildung 3.17 (c) und (d), ist der $\Omega_{13} = 2$ GHz und damit weit überhalb der Sättigungsintensität. Für $\delta_{13} \approx 0$ konkurrieren hier Ein- und Zwei-Photonenabsorption stärker als bei schwachem Ω_{13} , wo auch bei $\delta_{13} = 0$ angenommen werden kann, daß $\varrho_{11} \approx 1$. Daher bricht die Population ϱ_{22} mit starkem Ω_{13} auf Resonanz stärker ein als in den anderen beiden Graphen.

Das Zustandekommen der verschiedenen Breiten der Fluoreszenzlinien erklärt Abbildung 3.18:

Abbildung 3.17 (a) Hier wird der schwächere Lichtstrahl verstimmt und der stärkere, hier Ω_{23} in der Frequenz konstant $\delta_{23} = 0$ gehalten. In Abbildung 3.18 entspricht das der in der Bildmitte dargestellten Situation mit symmetrisch aufgespaltenen gemischten Zuständen. Nun gibt es zwei Möglichkeiten, Population in Zustand ϱ_{22} zu bringen, die im Bild mit schwarzen gestrichelten Linien eingezeichnet sind. Klammer a zeigt den Frequenzbereich, über den die Zwei-Photonenanregung stattfindet.

Abbildung 3.17 (b) In diesem Fall ist die Verstimmung des schwächeren Lichtstrahls $\delta_{13} = 0$ konstant und das stärkere Lichtfeld ändert mit seiner Frequenz nicht nur die Verstimmung zur Zwei-Photonenresonanz, sondern gleichzeitig auch die Übergangsfrequenzen der gemischten Zustände. In Abbildung 3.18 sind dafür Beispiele für $\delta_{23} < 0$, $\delta_{23} = 0$ und $\delta_{23} > 0$ mit grauen Linien eingezeichnet. Den Frequenzbereich, über den sich die Zwei-Photonen-Absorption erstreckt, gibt Klammer b an.

Abbildung 3.17 (c), (d) Ist Ω_{13} der stärkere Übergang, entstehen die gemischten Zustände aus den Niveaus $|1\rangle$ und $|3\rangle$ und der Zustand $|2\rangle$ bleibt unverändert. Auch dieser Fall läßt sich mit Abbildung 3.18 betrachten, dreht man sie um 180° . Klammer b gibt hier für Verstimmung von δ_{13} bei $\delta_{23} = 0$ und Klammer a für Verstimmung von δ_{23} bei festem $\delta_{13} = 0$ den Frequenzbereich über den hin Zwei-Photonenabsorption erfolgt an.

Die Linienbreiten der Zwei-Photonenabsorption sind also bei Verstimmung des schwachen Lichtstrahls – Abbildung 3.17 (a) und (c) – gleich und ebenso die Linienbreiten bei Verstimmung des starken Lichtfeldes (Abbildung 3.17 (b), (d)). Die spektrale Abhängigkeit der Fluoreszenz aus Niveau $|2\rangle$ des getriebenen Drei-Niveau-Systems

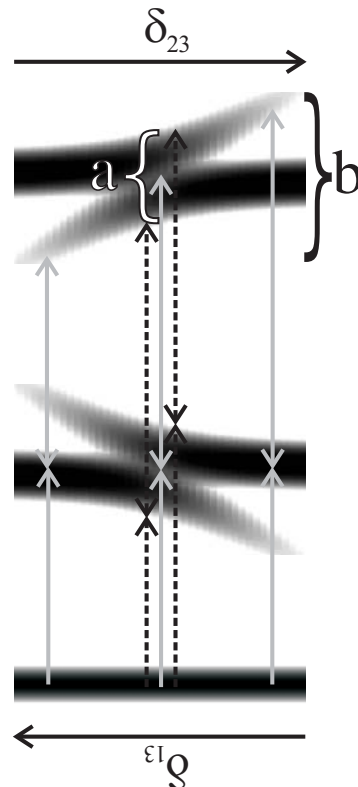


Abbildung 3.18: Zwei-Photonenabsorption im Drei-Niveau-System: Kopplung $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ schwach und $|3\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ stark. Dreht man die Abbildung um, zeigt sie starke Kopplung auf dem Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ und schwache Kopplung zwischen $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$. Die eingezeichneten Pfeile und die geschweiften Klammern a und b sind im Text erklärt.

kann also zwei verschiedene Linienbreiten haben. Im Experiment ist der Unterschied nur meßbar, wenn sich zum einen beide Rabi-Frequenzen deutlich unterscheiden und zum anderen eine ausreichende Kopplung zur meßbaren Aufspaltung der Niveaus für resonanten Kopplungslaser erreicht wird.

3.4.4 Sättigung des Ein-Photonenübergangs bei verstimmttem Kopplungslaser

Bei einer Verstimmung $\delta_{23} \neq 0$ des Kopplungslasers können im Experiment Schwierigkeiten bei der Interpretation der gemessenen Fluoreszenz auftreten: In Abbildung 3.19 ist in der rechten Spalte die Population ρ_{22} aufgetragen. Ignoriert man für den Moment die Angabe der Parameter, kommt man durch Vergleich mit Abbildung 3.14 zu dem Schluß, daß es sich bei Abbildung 3.19 um Population im Zustand $|2\rangle$ in Abhängigkeit der Probelaserverstimmung δ_{13} für verschiedene Kopplungslaserverstimnungen δ_{23} handelt. Statt eines falsch beschrifteten Graphen liegt hier allerdings eine weitere Besonderheit der Zwei-Photonenabsorption eines getriebenen Systems vor:

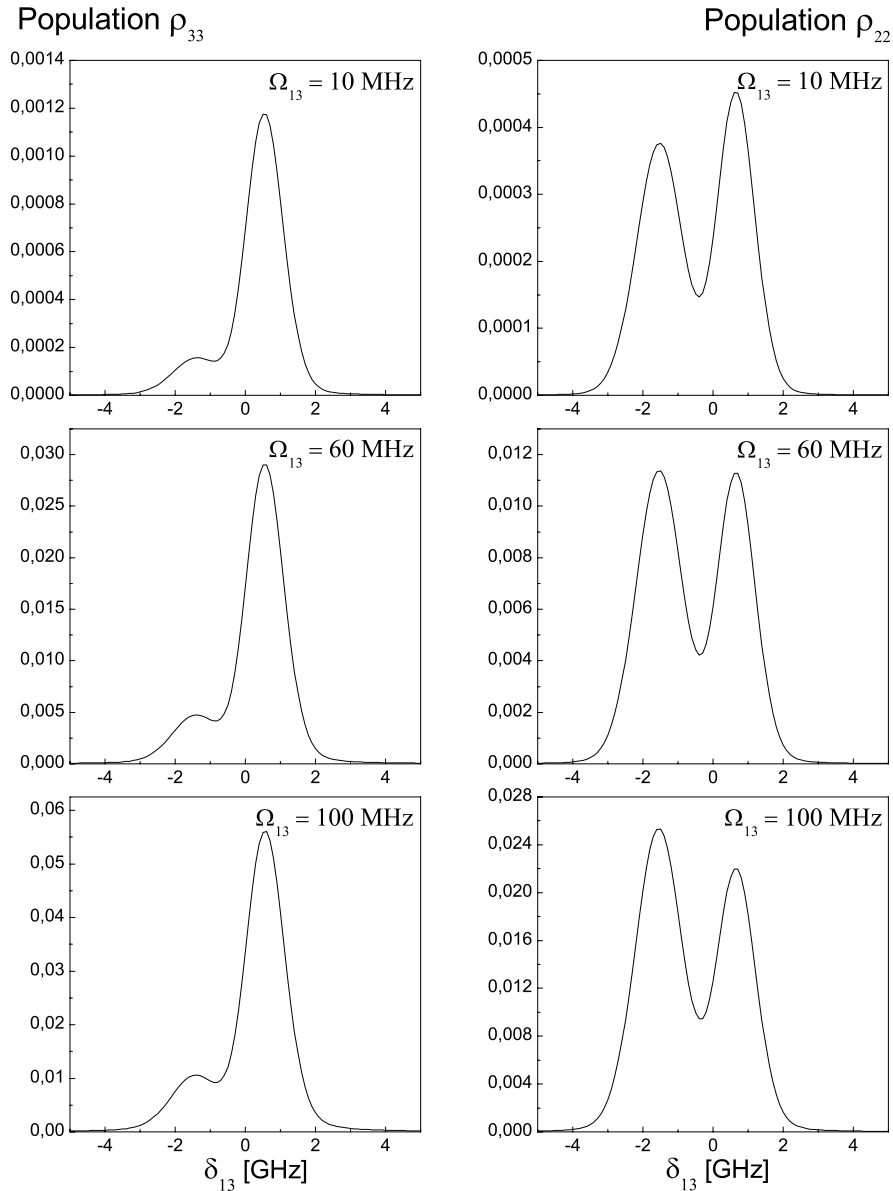


Abbildung 3.19: Einfluß von Ω_{13} und Ω_{23} auf die Form der Populationsverteilung für $\Omega_{23} = 2$ GHz, $\delta_{23} = +1$ GHz und $T = 300$ K. Die Form von ρ_{33} ist für alle drei abgebildeten Fälle gleich, die Skala der Ordinate ist allerdings deutlich verschieden.

Mit genügend Leistung im Probestrahl kann ein anderes Vorzeichen der Kopplungslaserstimmung vorgetäuscht werden. Die Symmetrieänderung der Population in ρ_{22} ist allein der Erhöhung der Rabi-Frequenz des *Probelasers* zuzuschreiben: An der Population ρ_{33} links im Bild sieht man, daß der gemischte Zustand bei $\delta_{13} \approx 0,8$ GHz wesentlich mehr Atome aus dem Grundzustand entfernt, als der bei $\delta_{13} \approx -1,5$ GHz. Bereits für $\Omega_{13} = 60$ MHz wirkt sich dies als Abschwächung des gemischten Zustandes von ρ_{22} bei $\delta_{13} \approx 0,8$ GHz aus und führt für $\Omega_{13} = 60$ MHz dazu, daß der ursprünglich stärkere Zustand nun der schwächere ist. Dieses Verhalten kann leicht zur Fehlinterpretation von Fluoreszenzmessungen aus Niveau $|2\rangle$ führen.

3.4.5 Isotopengemisch

Im Quecksilberisotopengemisch wird jedes Isotop den Kopplungslaser mit einer anderen Verstimmung „sehen“ und daher wird es die aus Kapitel 3.3 bekannte Vielzahl von Linien auch im Spektrum der Fluoreszenz geben. Die Lage des ungestörten 7^1S -Niveaus der verschiedenen Isotope ist in Tabelle A.1 im Anhang aufgeführt.

Da nur für ein Isotop beide Lichtstrahlen resonant sein können⁸, ist die Zwei-Photonenabsorption dieses Isotops im Vergleich zu den anderen stark resonant erhöht. Das bedeutet auch, daß man durch Messen der gemischten Zustände von $|2\rangle$ durch Fluoreszenz kaum eine Aussage über die induzierten Transparenz für den Übergang $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ machen kann. Um die Schwierigkeit zu verdeutlichen zeigen die Abbildungen 3.21–3.24 eine Vielzahl möglicher Linienformen der frequenzabhängigen Besetzung von ρ_{22} und damit der Fluoreszenz.

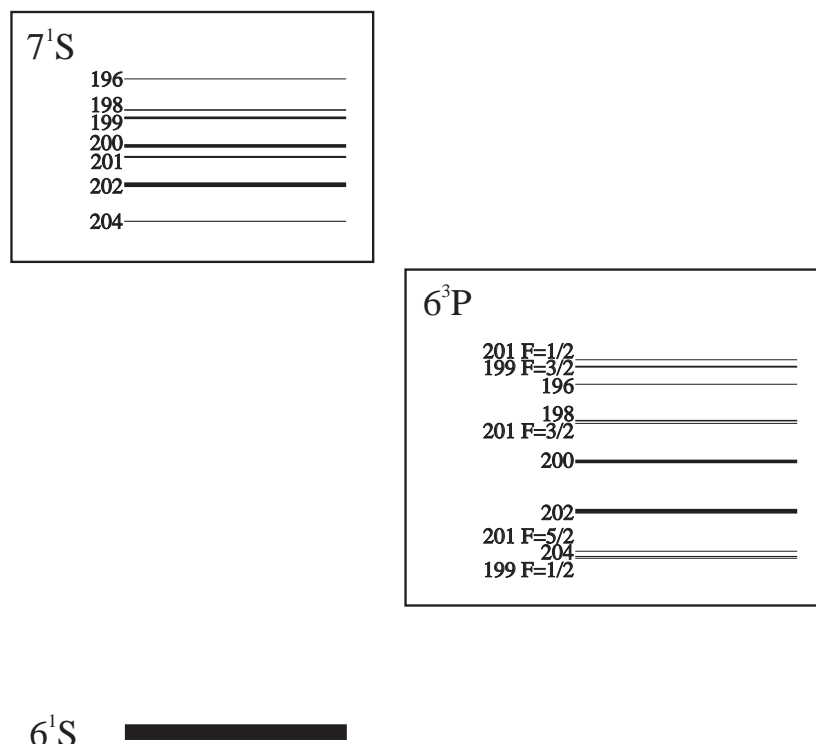


Abbildung 3.20: Isotopieverschiebung der Niveaus 6^3P und 7^1S in Quecksilber (aus Tabelle A.1). Die Strichdicke der eingezeichneten Niveaus ist proportional zur Häufigkeit des Isotops.

Zunächst wird die Zwei-Photonenabsorption eines Isotopengemischs ohne Veränderung der Atomniveaus durch starke Kopplung betrachtet. Bereits in dieser Situation läßt sich die Linienform der Fluoreszenz aus dem Niveau $|2\rangle$ durch Verändern der Nähe zur Ein-Photonenresonanz eines oder mehrerer Isotope stark beeinflussen. Abbildung 3.20 zeigt die Isotopieverschiebung der Übergänge $6^1S \rightarrow 6^3P \rightarrow 7^1S$.

⁸Die Frequenzen natürlich prinzipiell frei wählbar; im Hinblick auf Vier-Wellen-Mischen ist allerdings der (nah-)resonante Fall von besonderem Interesse.

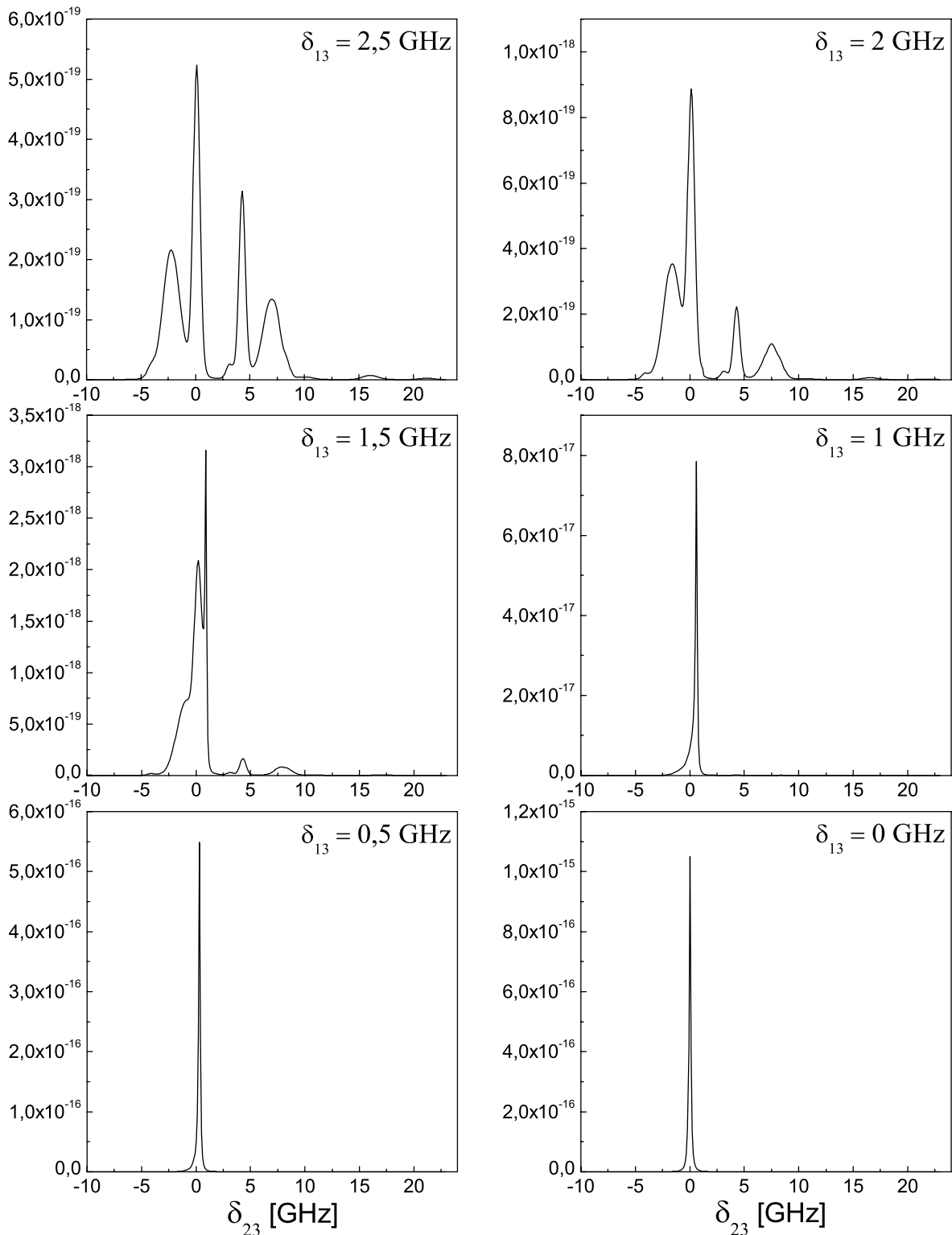
Population ρ_{22} 

Abbildung 3.21: Population ρ_{22} im Isotopengemisch in Abhängigkeit von δ_{23} für verschiedene Verstimmungen δ_{13} mit den Rabifrequenzen $\Omega_{13} = 1$ kHz, $\Omega_{23} = 1$ MHz (also keine Aufspaltung). Man beachte die verschiedenen Skalen der Ordinate: Die Population steigt von $5 \cdot 10^{-19}$ für $\delta_{13} = 2,5$ GHz auf 10^{-10} für $\delta_{13} = 0$.

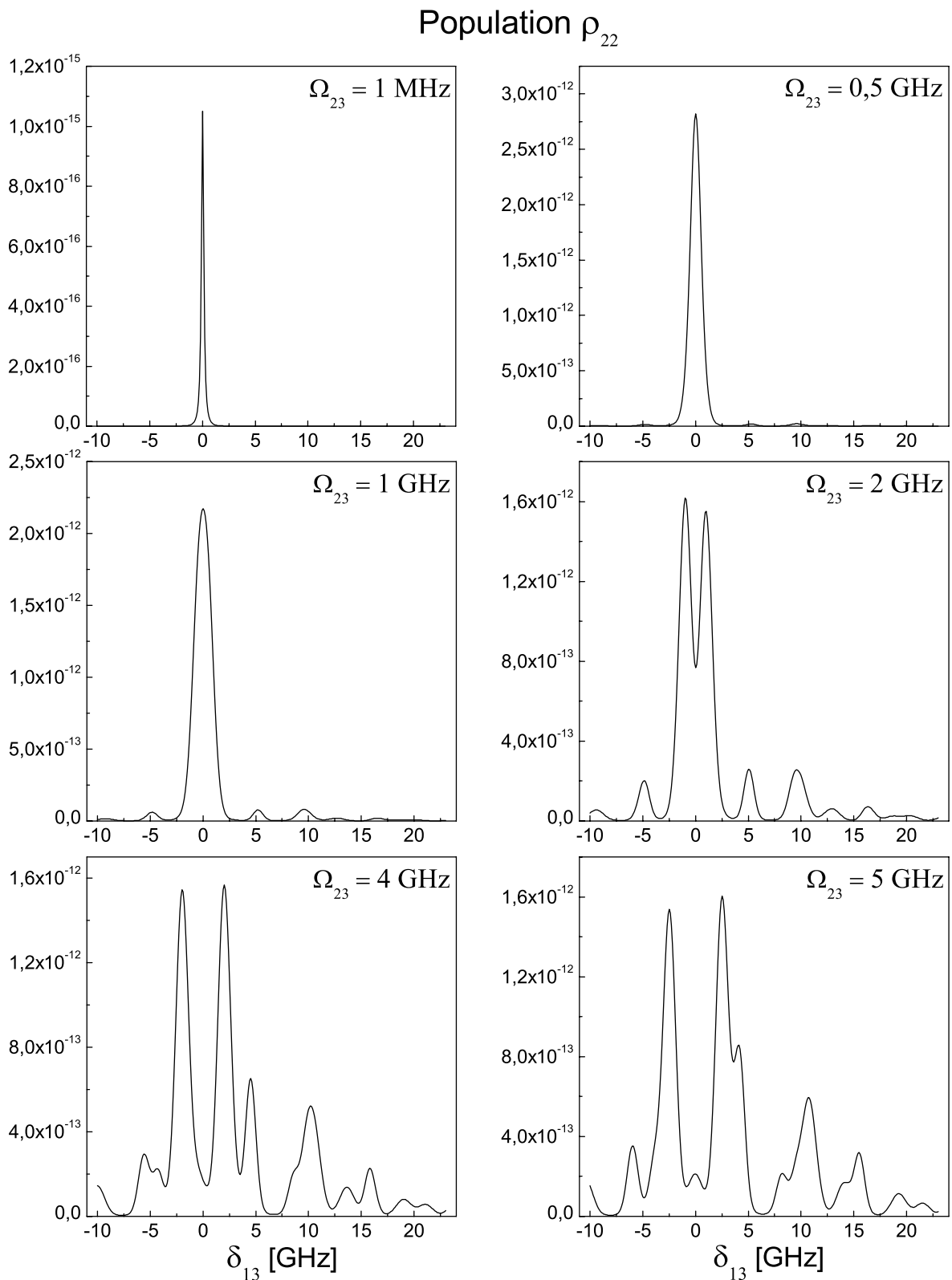


Abbildung 3.22: Population ρ_{22} im Isotopengemisch in Abhängigkeit von δ_{13} für verschiedene Rabi-frequenzen des Kopplungslasers Ω_{23} mit $\delta_{23} = 0$ und $\Omega_{13} = 1 \text{ kHz}$.

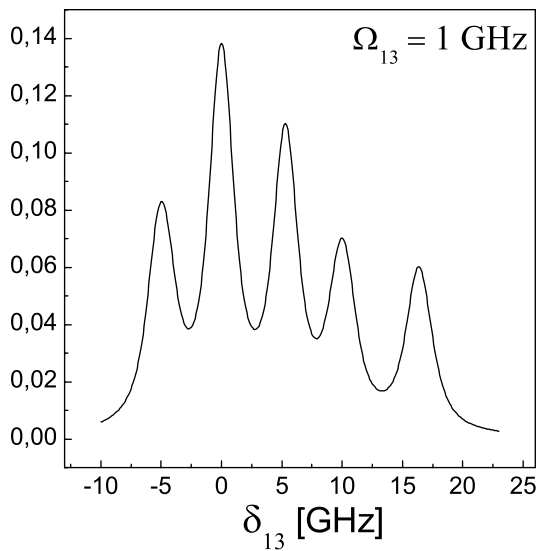
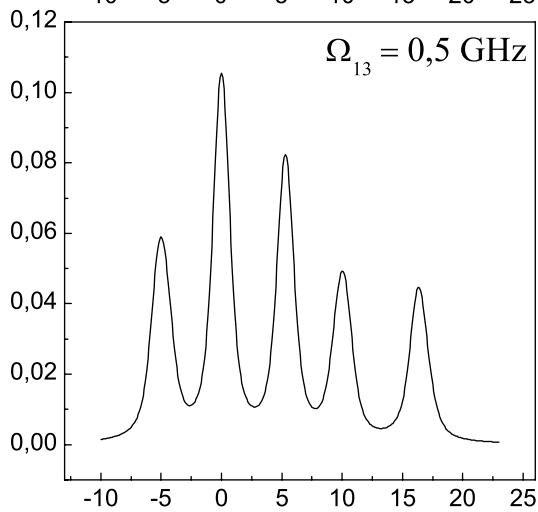
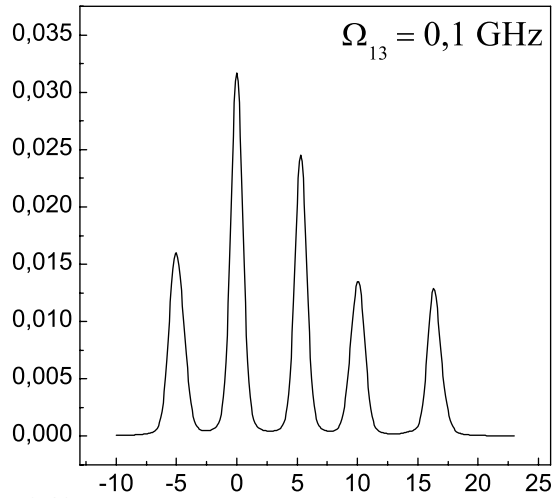
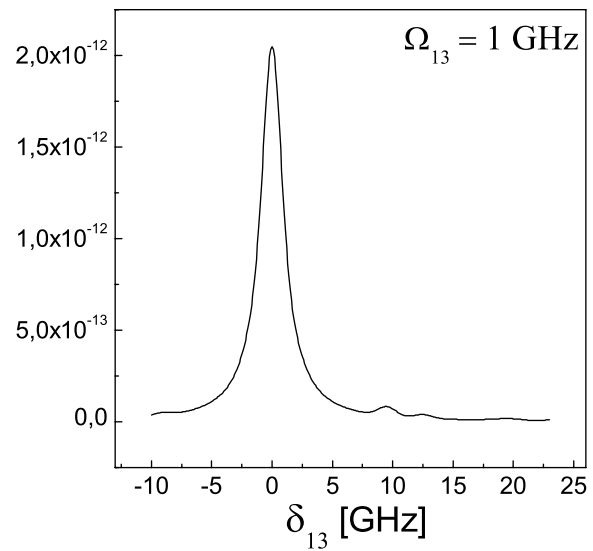
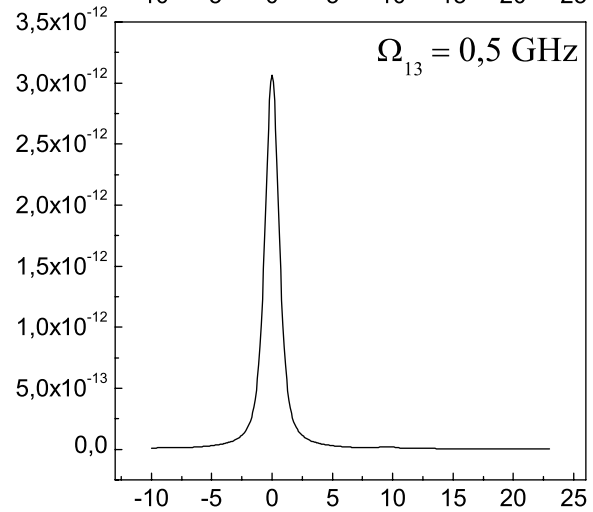
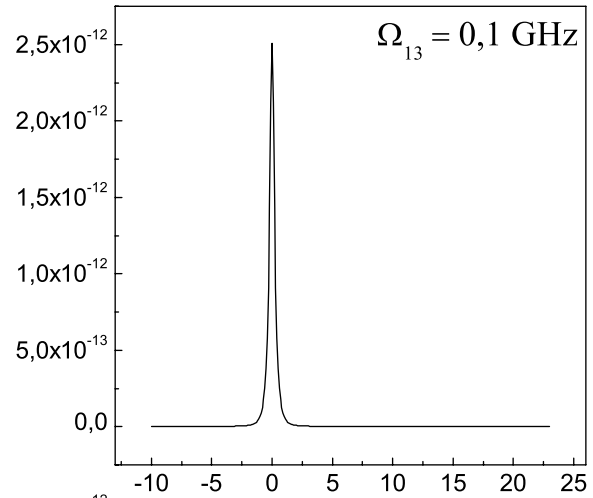
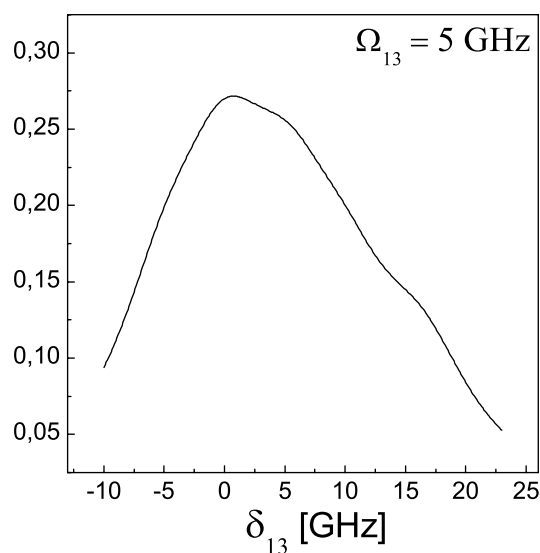
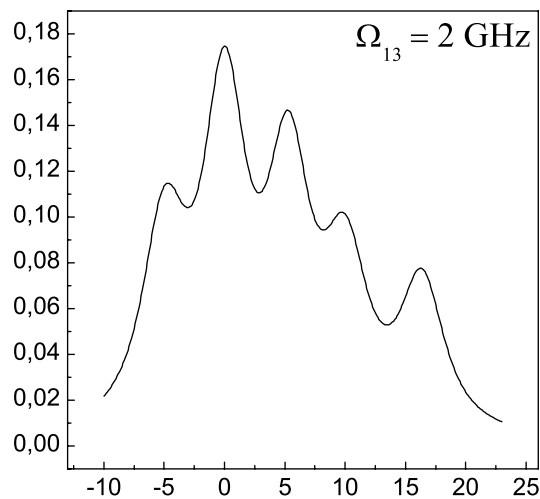
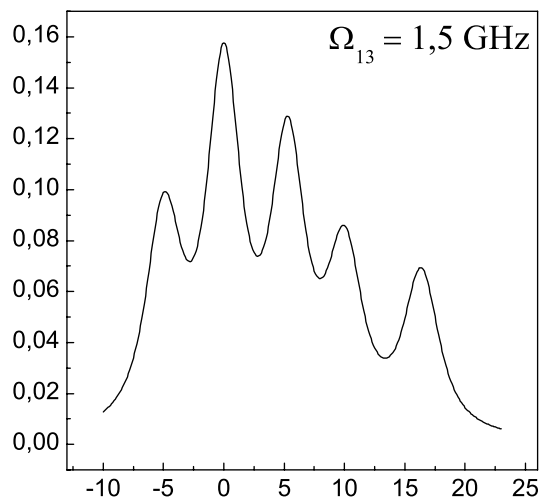
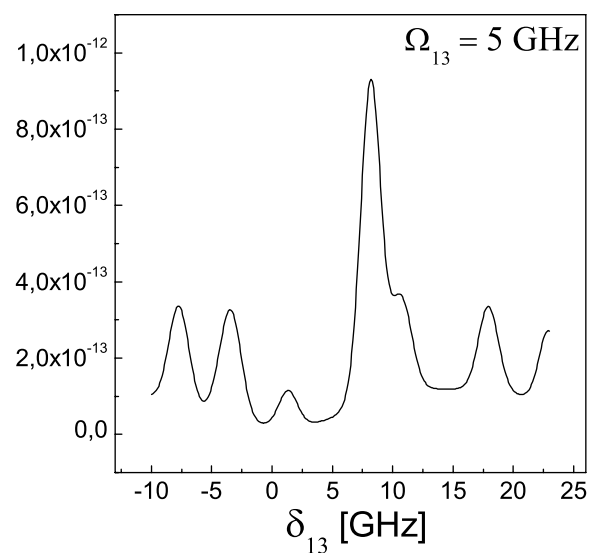
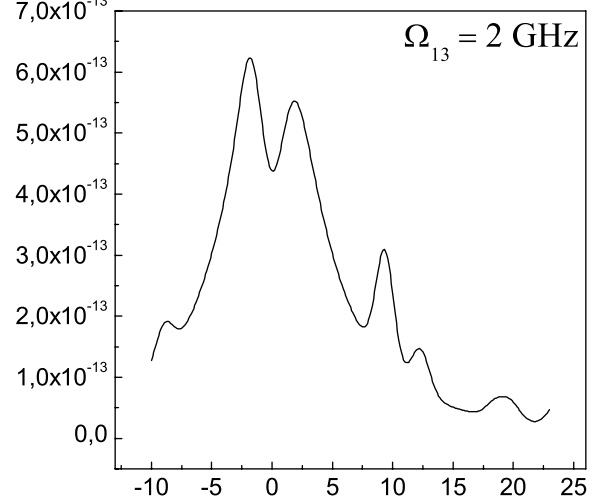
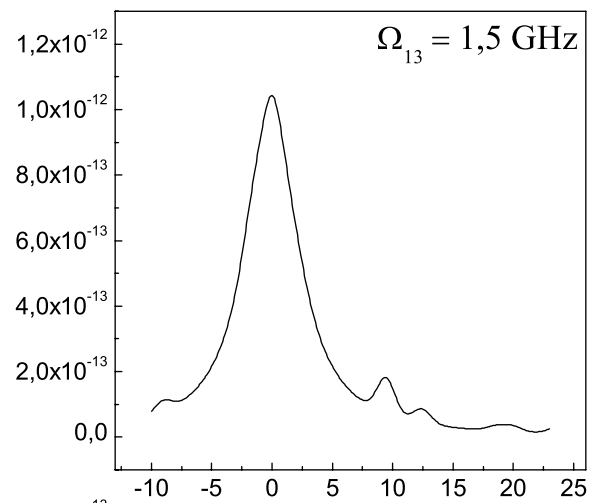
Population ρ_{33} Population ρ_{22} 

Abbildung 3.23: Populationen ρ_{33} (linke Spalte) und ρ_{22} (rechte Spalte) im Isotopengemisch in Abhängigkeit von δ_{13} für verschiedene Rabi-Frequenzen Ω_{13} mit $\Omega_{23} = 1 \text{ kHz}$ und $\delta_{23} = 0$. Zunehmende Sättigung des Ein-Photonenübergangs $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ führt dazu, daß die Überhöhung eines Isotops aus Abbildung 3.21 verloren geht.

Population ρ_{33} Population ρ_{22} Abbildung 3.24: Fortsetzung von Abbildung 3.23 zu höheren Rabi-Frequenzen Ω_{13} hin.

Nähert sich δ_{13} der Übergangsfrequenz eines bestimmten Isotops, so ist für dieses eine Isotop die Zwei-Photonenabsorption resonant erhöht, so daß das Fluoreszenzsignal im wesentlichen durch ein Isotop gegeben ist. Als Beispiel zeigt Abbildung 3.21 die verschiedenen Linienformen der Fluoreszenz bei Annäherung an die Ein-Photonenresonanz des Isotops 202, dabei steigt das Fluoreszenzmaximum um vier Größenordnungen an.

Die Parameter des letzten Graphen in Abbildung 3.21 und des ersten Graphen in Abbildung 3.22 sind dieselben. Die Fluoreszenzlinie stammt im wesentlichen vom Isotop 202. Erhöht man die Rabifrequenz auf $\Omega_{23} = 0,5 \text{ GHz}$, tritt zunächst eine scheinbare Verbreiterung von ϱ_{22} und eine weitere Erhöhung der Fluoreszenzmaximums ein. Bei stärkerer Kopplung mit $\Omega_{23} = 1 \text{ GHz}$ nimmt die resonante Erhöhung der Zwei-Photonenanregung von ^{202}Hg bereits ab, denn die Ein-Photonenübergänge der gemischten Zustände sind um $\pm 0,5 \text{ GHz}$ verschoben. Nun ist auch die Fluoreszenz weiterer Isotope zu sehen: ^{204}Hg bei $\delta_{13} \approx -5 \text{ GHz}$, ^{200}Hg bei $\delta_{13} \approx 5 \text{ GHz}$ und ^{198}Hg bei $\delta_{13} \approx 10 \text{ GHz}$. Eine leichte Verschiebung der Fluoreszenzmaxima gegenüber den in Tabelle A.1 angegebenen Werte kommt – ebenso wie weitere Nebenmaxima – durch die nichtresonante Kopplung dieser Isotope zustande. Für $\Omega_{23} \gtrsim 2 \text{ GHz}$ können die gemischten Zustände von ^{202}Hg in der Fluoreszenz aufgelöst werden und der Einfluß der anderen Isotope auf die Linienform nimmt weiter zu. Bei $\Omega_{23} = 5 \text{ GHz}$ hat bei $\delta_{13} = 0$ bereits der gemischte Zustand eines anderen Isotops sein Fluoreszenzmaximum.

Der Einfluß von Sättigung des Übergangs $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ auf die Form der Fluoreszenz ist in Abbildungen 3.23 und 3.24 zu sehen. Für verschiedene Rabifrequenzen Ω_{13} sind jeweils in der linken Spalte die Population ϱ_{33} und rechts daneben für dieselben Parameter ϱ_{22} dargestellt. Für alle Graphen der beiden Abbildungen gilt $\delta_{23} = 0$ und $\Omega_{23} = 1 \text{ kHz}$. Man sieht auch hier, daß der Einfluß der anderen Isotope mit steigender Rabifrequenz Ω_{13} zunimmt, das absolute Fluoreszenzmaximum aber abnimmt.

Hierfür gibt es zwei Gründe: Zum einen die Konkurrenz von Ein- und Zweiphotonenprozeß, zum anderen entfernt sich für ^{202}Hg das Zwischenniveau durch Kopplung immer weiter von der Resonanz des Übergangs $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$.

Ein Drei-Niveau-System kann also tatsächlich mit vielen verschiedenen Linienformen der Zwei-Photonenabsorption aufwarten.

Kapitel 4

Experiment

Erste Experimente zur induzierten Transparenz mit kontinuierlicher Laserstrahlung wurden bereits seit Mitte der neunziger Jahre unternommen [Moseley et al., 1995]. Meist wurde eine Atomart gewählt, die Übergänge besitzt, die man mit Licht von Diodenlasern treiben kann und die eine niedrige Sättigungsintensität besitzen. Andere Gruppen wählten ein Niveausystem, das es gestattet, denselben Laser durch Frequenzmodulation als Probe- und Koppellaser zu verwenden und Kohärenzeffekte zu messen, die auf die relative Phase der beiden Lichtfelder empfindlich sind [Maichen et al., 1995]. In den meisten Fällen fanden Glas- oder Quarzzellen Verwendung, da sie einfachen optischen Zugang und eine Variation der Atomdichte über die Temperatur erlauben. Später kamen auch Experimente an kalten Atomwolken hinzu [Hau et al., 1999]. Für diese Arbeit fiel die Wahl des Elementes durch die Anforderungen des Vier-Wellen-Mischprozesses auf Quecksilber.

4.1 Erzeugung von kontinuierlich kohärenter Strahlung bei 254 nm und 408 nm

Cw Lichtquellen zur Spektroskopie des 6^1S-6^3P -Übergangs in Quecksilber mit einer Wellenlänge von 253,7 nm sind derzeit noch nicht kommerziell erhältlich. In der Literatur findet man wenige cw Lasersysteme zur Erzeugung von 254 nm. Eines, das zum Nachweis von Quecksilber in Gasen entwickelt wurde, ist in [Alnis et al., 2000] beschrieben: Durch Mischen des Lichts eines Diodenlasers mit einer Wellenlänge von 400 nm mit dem Licht eines zweiten Diodenlasers bei 688 nm wurde eine Ausgangsleistung von 0,9 nW bei 254 nm erreicht. Das System ist einfach in der Handhabung, allerdings im Hinblick auf VWM zu leistungsschwach. Ein kontinuierliches System mit höherer Ausgangsleistung wurde in [Harber and Romalis, 2001] vorgestellt: Es diente der Messung der Stark-Verschiebung der $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ -Übergangsfrequenz und bestand aus einem Master Oscillator Power Amplifier (MOPA) bei 1016 nm mit 500 mW, die in einem KNbO_3 -Kristall zu 130 mW bei 508 nm in der Frequenz verdoppelt wurden. Die zweite Frequenzverdopplung mit einem BBO-Kristall lieferte 6 mW bei 254 nm.

| | | |
|--------------------|---------------------------------|--------------|
| Benzylalkohol | 200 ml | Merck |
| Coumarin 30 | 0,65 g | Radiant Dyes |
| 9-Methylantracen | 1,8 g | Merck |
| Ethylenglykol | 530 ml | Merck |
| Farbstoff- düse | Saphirdüse, 10 μ m Dicke | Kyburz |
| Spiegelsatz | für Coumarin 102 | Coherent |

Tabelle 4.1: Für 507,4 nm optimierte Farbstoffmischung. Der Farbstoff wurde in der Farbstoffpumpe (von Radiant Dyes, Betriebsdruck 9 bar) auf 15 °C gekühlt. Spezifikationen zum Farbstoff sind in [Brackmann, 2000] zu finden.

Zur Erzeugung von 253,7 nm für die Messungen im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Farbstofflaser (Modell 699-21 der Firma Coherent) mit einer Wellenlänge von 507,4 nm aufgebaut. Es wurden die Farbstoffe Coumarin 102, Coumarin 30 und Coumarin 6 jeweils mit Triplettenquenchern 9-Methylantracen (9MA) und Triethylendiamin (DABCO, von 1,4-Diazabicyclo[2.2.2]octan) in verschiedenen Lösungsmitteln (Methanol, Benzylalkohol und Ethylenglykol) und in verschiedenen Konzentrationen und bei verschiedenen Farbstofftemperaturen getestet. Als Pumplaser wurde ein Krypton-Ionenlaser (Innova 100, Coherent) mit Wellenlängen von 360 – 420 nm verwendet.

Die Kombination von Farbstoff und Triplettenquencher mit der die höchste Ausgangsleistung bei 507,4 nm erreicht wurde, ist in Tabelle 4.1 zusammen mit den übrigen Betriebsparametern des Farbstoffsystems aufgelistet. Die üblicherweise verwendeten Düsen aus Edelstahl mit einer Strahldicke von 0,2 mm (Hersteller Radiant Dyes) erleiden durch die Farbstoffmischung Coumarin 30 mit 9MA starke Korrosion, was die Oberflächenqualität des Farbstoffstrahls verringert und eine solche Düse für den Einsatz in einem Farbstofflaser unbrauchbar macht. Als widerstandsfähiger erwiesen sich Saphirdüsen der Firma Kyburz mit 0,1 mm Strahldicke, wenngleich auf Kosten einer um ca. 20 % geringeren Ausgangsleistung des Farbstofflasers.

Durch die geringe Verstärkung des Farbstoffs [Brackmann, 2000] hat sich die Sauberkeit und Justage der optischen Elemente des Lasers als äußerst kritisch erwiesen. Um eine optimale Ausgangsleistung zu erhalten, wurde der Aufbau des Farbstofflasers an einigen Stellen geändert: Die Farbstoffdüse wurde in einem Spiegelhalter montiert. Durch eine Mikrometerschraube an der Düsenhalterung konnte der Abstand des Pumplaserfokus zum Austritt des Farbstoffstrahls aus der Düse variiert werden ohne weitere Parameter zu verändern. Die Halterung der sogenannten ICA (siehe Abbildung 4.1) wurde derart modifiziert, daß das dicke Ethalon zur Reinigung und Justage aus der Halterung genommen werden kann. Eine Reinigung oder Justage ist werkseitig nicht vorgesehen – beide Prismen werden nur von methanol- und acetone-löslichem Klebstoff gehalten – war allerdings durch die geringe Verstärkung des Farbstoffs und

der aufgrund langjähriger Nutzung des Lasers starken Verschmutzung unumgänglich. Sie wurde nach Anleitung von Prof. Windholz, TU Graz, vorgenommen.

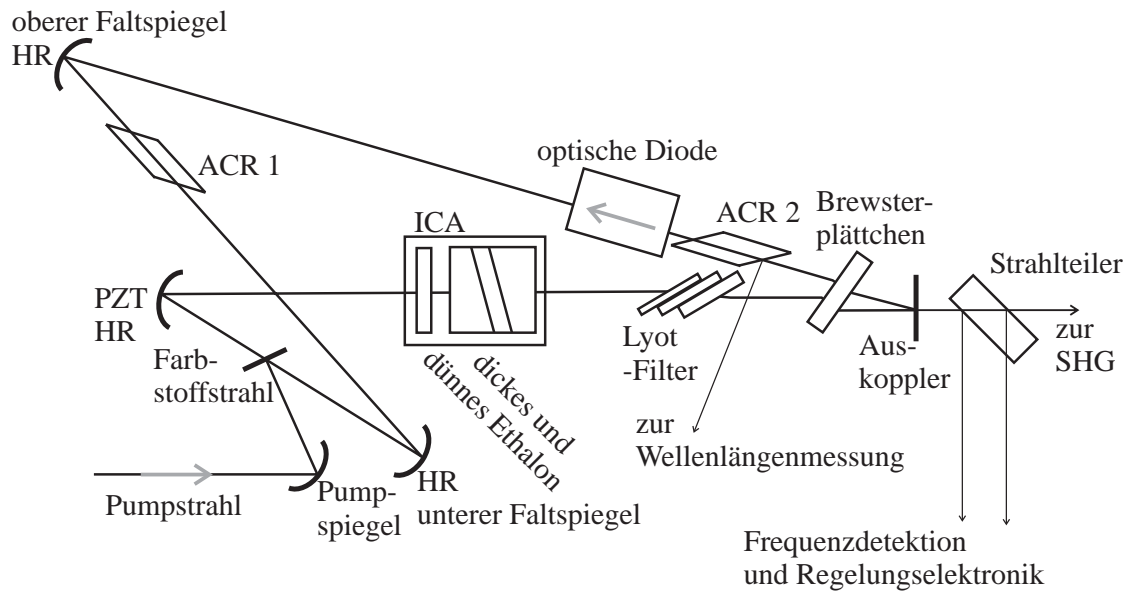


Abbildung 4.1: Aufbau des Farbstofflasers: HR hochreflektierender Spiegel, ACR Astigmatismus kompensierender Rhombus, ICA intracavity assembly bestehend aus dünnem und dickem Ethalon, PZT piezoelektrisch regelbare Spiegelposition. Zur Frequenzregelung werden die Spiegelposition des PTZ HR, ICA und das Brewsterplättchen verwendet.

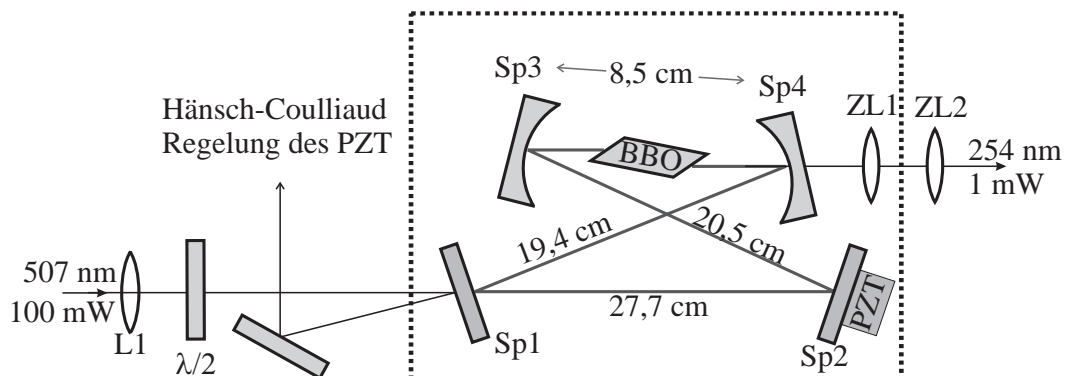


Abbildung 4.2: Aufbau des Resonators zur Frequenzverdopplung (SHG) von 507 nm: Anpassung der Mode des Farbstofflaserslichts an die des SHG-Resonators durch Linse L1 mit $f = 750$ mm in einer Entfernung von ca. 10 cm vom Farbstofflaser und 50 cm vor dem Einkoppelspiegel Sp1. Die Reflektivität bei 507 nm von Sp1 beträgt $R = 98\%$. Für Spiegel Sp2, Sp3 und Sp4 ist $R > 99,7\%$ für 507 nm und die Transmission $T > 85\%$ bei 254 nm. Der Krümmungsradius von Sp3 und Sp4 beträgt $r = -75$ mm. Die Abmessungen des BBO-Kristalls (von Cleveland Chrystals) sind $3 \times 3 \times 11$ mm³ mit unbeschichteten Endflächen im Brewsterwinkel für 507 nm und Phasenanpassungswinkel $\Theta = 51,1^\circ$, $\Phi = 90^\circ$. Astigmatismuskompensation des Lichtstrahls bei 254 nm durch Zylinderlinsen ZL1 ($f = 100$ mm, Abstand Sp4-ZL1 = 13 cm) und ZL2 ($f = 700$ mm, Abstand ZL1-ZL2 = 70 cm). Regelung der Resonatorlänge durch Piezotranslator PZT mit Hänsch-Coullaud-Verfahren [Hänsch and Coullaud, 1980].

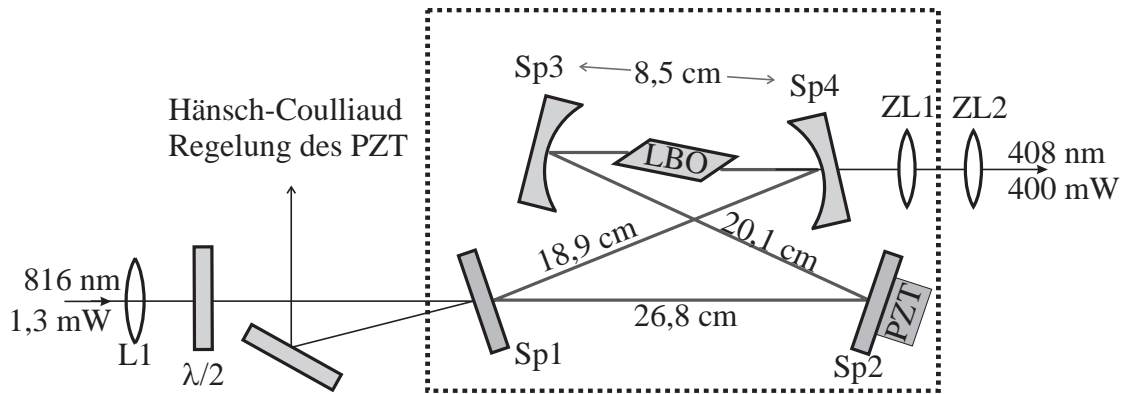


Abbildung 4.3: Aufbau des Resonators zur Frequenzverdopplung (SHG) von 816 nm: Modenanpassung des Titan-Saphir-Laserslichts an den SHG-Resonators durch Linse L1 ($f = 400$ nm, Abstand 58 cm vom Titan-Saphirlaser, Abstand L1-Sp1 40 cm). Reflektivität von Sp1 bei 816 nm ist $R = 98\%$, für Spiegel Sp2, Sp3 und Sp4 ist $R > 99,8\%$ für 816 nm und Transmission $T > 85\%$ bei 408 nm. Krümmungsradius von Sp3 und Sp4: $r = -75$ mm. Die Abmessungen des LBO-Kristalls (von Photox): $3 \times 3 \times 11$ mm³ mit unbeschichteten Endflächen im Brewsterwinkel für 816 nm und Phasenanpassungswinkel $\Theta = 90^\circ$, $\Phi = 30^\circ$. Astigmatismuskompensation des Lichtstrahls bei 408 nm durch Zylinderlinsen ZL1 ($f = 100$ mm, Abstand Sp4-ZL1 ca. 14 cm) und ZL2 ($f = 200$ mm, Abstand ZL1-ZL2 ca. 56 cm). Regelung der Resonatorlänge durch Piezotranslator PZT mit Hänsch-Coullaud-Verfahren [Hänsch and Coullaud, 1980].

Erreicht wurden maximal 150 mW und typischerweise 80 – 100 mW Ausgangsleistung mit einer Pumpleistung von 5 W verteilt auf mehrere Emissionslinien im nahen UV-Bereich (360 – 420 nm). In einer externen Frequenzverdopplung wurden in einem BBO-Kristall einige mW bei 253,7 nm erzeugt. Aufbau und Daten der Frequenzverdopplung sind Abbildung 4.2 zu entnehmen. Die Sättigungsintensität des Übergangs $6^1S \rightarrow 6^3P$ beträgt nach Gleichung (A.2) nur 10 mW/cm², so daß bereits bei leichter Fokussierung eines UV-Strahls mit einer Leistung von 1 mW auf diesem Übergang Sättigung eintritt.

Die Laserstrahlung bei 408 nm wurde mit einem Titan-Saphir-Ringlaser (Modell 899-21, Pumplaser Verdi V10, Coherent) erzeugt, der bei einer Wellenlänge von 816 nm betrieben und dessen Licht ebenfalls in einem externen Ringresonator in der Frequenz verdoppelt wurde. Der Aufbau des externen Resonators ist analog zum Aufbau der SHG für 254 nm, die Abmessungen sind in Abbildung 4.3 zu sehen.

Bestimmung der Wellenlängen

Die Wellenlänge des Farbstofflasers wurde mit einem Wellenlängenmeßgerät WA-1000 (Burgleigh) bestimmt. Hierzu wurde ein Reflex der Oberfläche des Rhombus ACR2 im Farbstofflaser (rechts in Abbildung 4.1 zu sehen) verwendet. Die Richtung des Refle-

xes blieb bei Änderung der Frequenz des Lasers erhalten. Das Wellenlängenmeßgerät besitzt einen analogen Ausgang, an dem eine Spannung anliegt, die proportional zur Abweichung der gemessenen Wellenlänge zu einer vom Benutzer vorgegebenen Wellenlänge λ_0 ist. Ausgegebene Spannung und Wellenlängenabweichung hängen folgendermaßen zusammen:

$$U_{\text{out}} = 0.00475 \cdot \frac{\text{Abweichung in nm}}{\text{analoge Auflösung}} + \text{Offset} \quad (4.1)$$

Die Offset-Spannung wurde für das verwendete Gerät zu Null gemessen. Die Auflösung wurde maximal gewählt (analoge Auflösung = 0,0001), die Wellenlänge mit $\lambda_0 = 507,46$ nm vorgegeben. Die Frequenzdifferenz der Laserstrahlung zu vorgegebenen Frequenz bzw. Wellenlänge ist damit

$$\begin{aligned} \Delta\lambda &= \frac{U_{\text{out}}}{49 \text{ V}} \text{ nm} \\ \Delta f &= c \cdot \left(\frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \\ &= c \cdot \left(\frac{1}{507,46 \text{ nm}} - \frac{1}{507,46 \text{ nm} + U_{\text{out}}/(49 \text{ V}) \text{ nm}} \right). \end{aligned}$$

Für die Verstimmung der Strahlung bei 408 nm ist eine Berechnung der Wellenlänge nicht nötig, da das hierfür benutzte Wellenmeßgerät (Burleigh WA-1500) über GPIB-Schnittstelle verfügte und die Wellenlänge direkt vom Meßprogramm aus dem Gerät ausgelesen werden konnte.

4.2 Herstellung der Glaszellen

Quarzglaszellen mit Quecksilber stellen ein geeignetes Mittel dar, um erste Erfahrungen mit EIT zu machen, weil sie einfach in der Handhabung sind und guten optischen Zugang bieten. Für diese Arbeit wurden zylindrische Küvetten verschiedener Längen (1 mm, 2 mm, 5 mm, 2 cm) aus Quarzglas mit Abschmelzrohr aus Flintglas der Firma Starna mit einer kleinen Menge Quecksilber (Reinheit 99,9999 %, Firma GoodFellow) gefüllt und unter Vakuum durch Abschmelzen verschlossen.

4.3 Absorptionsmessungen

Die Absorptionslinien aller stabilen Quecksilberisotope bei 254 nm sind über einen Frequenzbereich von 20 GHz verteilt. Um den frequenzabhängigen Absorptionskoeffizienten dieses Übergangs zu bestimmen, muß der Farbstofflaser bei 507 nm über 10 GHz verstimmt werden, was mit einer Änderung der Ausgangsleistung des Lasers und damit auch der Strahlung bei 254 nm verbunden ist. Eine weitere Schwierigkeit stellt die geringe Sättigungsintensität von 10 mW/cm² des Übergangs $6^1S \rightarrow 6^3P$ dar: Selbst mit einem Milliwatt Leistung und schwacher Fokussierung kann man den Übergang sättigen.

Deshalb wurde die Absorptionsmessung mit möglichst geringer Intensität bei 254 nm vorgenommen. Die Intensität der transmittierten Strahlung wurde durch einen Interferenzfilter (Melles Griot, 18 % Transmission bei 253,7 nm) mit einer Photodiode mit erhöhter Empfindlichkeit für UV-Strahlung (Typ S1227-66BQ mit erhöhter UV- und verringerter IR-Empfindlichkeit bzw. S1337-66BQ mit erhöhter UV-Empfindlichkeit von Hamamatsu) gemessen.

Die Rohdaten in Abbildung 4.4 zeigen die Absorptionslinien mit deutlicher Intensitätsänderung des Farbstofflasers durch Frequenzänderung: Zwischen den Absorptionslinien ist der Quecksilberdampf transparent, aber in den verschiedenen Bereichen zwischen den Absorptionslinien wurden unterschiedliche Spannungen an der Photodiode gemessen. Ist sichergestellt, daß das anregende Lichtfeld den Übergang nicht sättigt, gilt für die transmittierte Intensität $I = I_0 e^{-\alpha l}$ mit Zellenlänge l , wobei I_0 hier abschnittsweise bestimmt werden muß. In Bereich (1) in Abbildung 4.4 ist I_0 konstant, in (2) hängt I_0 linear von der Frequenz ab und in (3) ist I_0 wieder konstant. Die sich daraus ergebenden Korrekturfaktoren sind in Tabelle 4.2 zusammengefaßt.

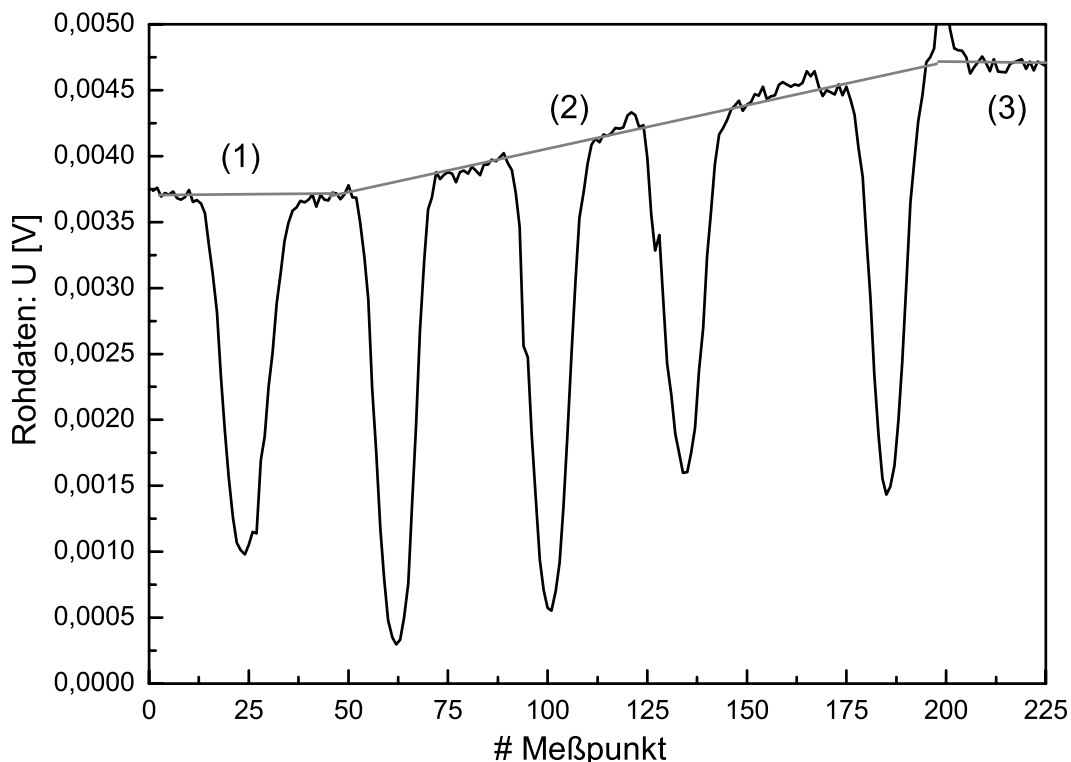


Abbildung 4.4: Rohdaten einer Absorptionsmessung bei Raumtemperatur in der 2 mm langen Quecksilberzelle. In schwarz die Spannung an der Photodiode und in grau die entsprechende „100 %-Transmission-Linie“, mit der die Meßdaten auf die Intensitätsänderung des absorbierten Strahls während der Messung korrigiert wurden.

| | Meßpunkte | Korrekturfaktor | Meßpunkte auf einer Absorptionslinie |
|-----|-----------|--|--------------------------------------|
| (1) | 1-46 | 1/0,00374 | 12-38 |
| (2) | 47-196 | $1/(0,0034 + 7 \cdot 10^{-6} \cdot i)$ | 52-72; 90-111; 124-146; 176-195 |
| (3) | 196-Ende | 1/0,00465 | |

Tabelle 4.2: Parameter zur Korrektur der Meßwerte: In Abschnitt (2) gibt i die Nummer des Meßpunktes an. Die in der rechten Spalte angegebenen Meßpunkte gehören zu einer der Absorptionslinien und wurden bei der Berechnung des jeweiligen Korrekturfaktors nicht berücksichtigt.

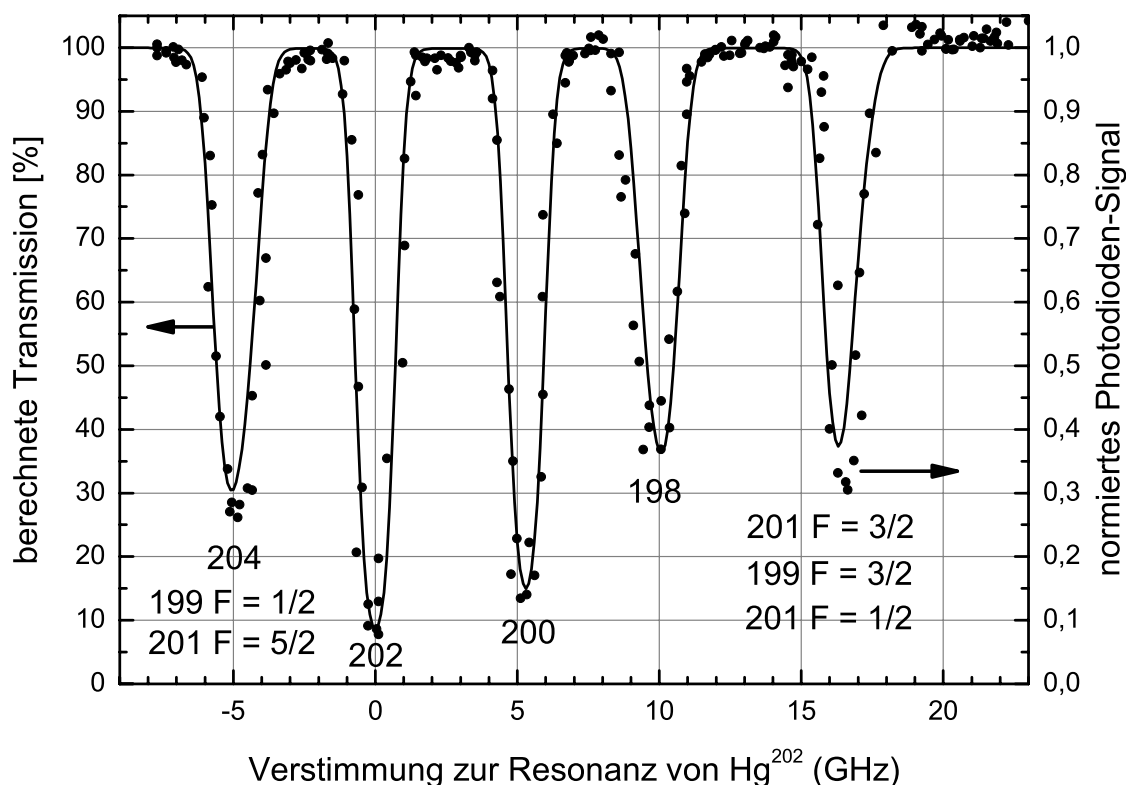


Abbildung 4.5: Die Meßdaten (Punkte, Ordinate rechts) wurden wie im Text beschrieben bearbeitet. Die Rechnung (durchgezogene Linie, Ordinate links) zeigt $e^{-\alpha \cdot l}$ mit Absorptionskoeffizient α aus Kapitel 3.2 und der Zellenlänge $l = 2$ mm.

Durch die Korrektur ergibt sich der Graph in Abbildung 4.5. Mit einer Dopplerverbreiterung von einem GHz kann durch die geringe Verstimmung der Übergangsfrequenz des Isotops 204 zu den Übergangsfrequenzen der Hyperfeinzustände von ^{199}Hg , $F = 1/2$ und ^{201}Hg , $F = 5/2$ ebensowenig aufgelöst werden wie die Absorptionslinien von ^{201}Hg , $F = 3/2$, ^{199}Hg , $F = 3/2$ und ^{201}Hg , $F = 1/2$. Das Isotop 196 wurde aufgrund seines geringen Anteils nicht berücksichtigt. Die gezeigten gemessenen und berechneten Absorptionsspektren stimmen gut überein und sind konsistent mit den in [Wallenstein and Hänsch, 1976] veröffentlichten Messung.

4.4 Quantitativer Vergleich von Messung und Rechnung im Drei-Niveau-System mit Dopplerverbreiterung

Die Berechnung des linearen Absorptionkoeffizienten läßt sich durch den quantitativen Vergleich mit einem gemessenen Absorptionsspektrum überprüfen. Um einen solchen Vergleich auch für die Population ϱ_{22} aus Berechnungen im Drei-Niveau durchführen zu können, wurde eine Messung der Fluoreszenz aus dem Zustand 7^1S nach 6^1P bei 1014 nm herangezogen. Die Anzahl der Atome in diesem Zustand ist proportional zu Anzahl der gestreuten Photonen und damit zur gemessenen Spannung an der Photodiode. Der Proportionalitätsfaktor läßt sich aus Zerfallsraten des Atoms und experimentellen Parametern berechnen.

Zum quantitativen Vergleich wurde eine Zwei-Photonenabsorptionsmessung, bei der $\delta_{13} = 0$ konstant gehalten und δ_{23} variiert wurde, herangezogen. Beide Lichtstrahlen wurden mit einer Quarzlinse mit einer Brennweite $f = 100$ mm in eine 1 mm lange Quecksilberzelle fokussiert. Die Photodiode (Modell 1337-66BQ, Firma Hamamatsu) zur Messung der Fluoreszenz bei 1014 nm wurde mit einem Interferenzfilter (Transmission 60%) versehen und im Abstand $d = 1$ cm über dem Fokus platziert. Der Aufbau ist in Abbildung 4.6 rechts zu sehen, links daneben das Anregungs- und Fluoreszenzschema.

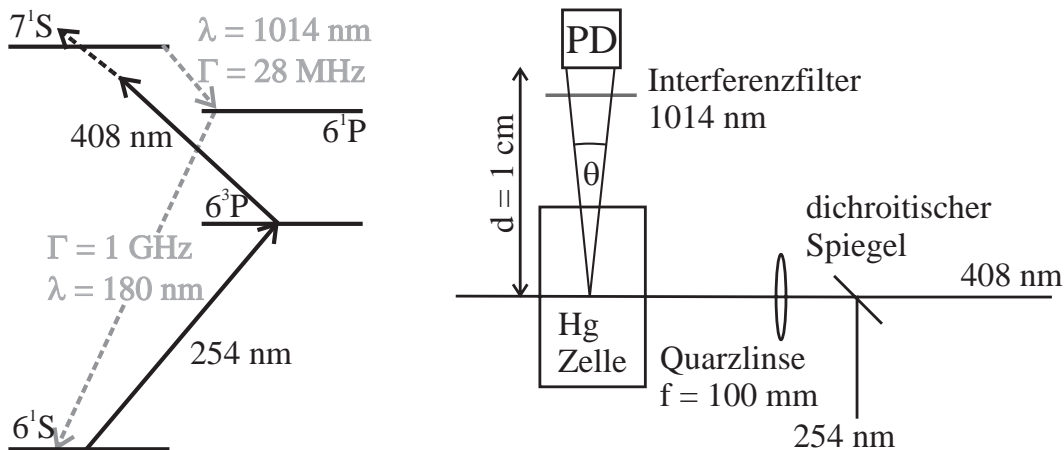


Abbildung 4.6: links: Niveausystem mit Anregungswellenlängen (schwarz) und Fluoreszenz (grau, Zerfallsraten aus [Benck et al., 1989]), rechts: Experimenteller Aufbau, PD: Photodiode.

Die Ausgangsspannung der Photodiode ist dann gegeben durch

$$U = S \cdot R \cdot P \quad (4.2)$$

mit S = Sensitivität der Photodiode für 1014 nm

$$\begin{aligned}
&= 0,4 \frac{\text{A}}{\text{W}} \\
R &= 560 \text{ k}\Omega \text{ Rückkoppelwiderstand der Photodiodenschaltung} \\
P &= \text{Leistung des gestreuten Lichts auf der Photodiode} \\
&= T_{IF} \frac{\theta}{4\pi} \cdot N_P \cdot \hbar\omega \\
\theta &= \text{erfaßter Raumwinkel} \\
T_{IF} &= 60 \% \text{ Transmission des Interferenzfilters} \\
N_P &= \text{Anzahl der Fluoreszenzphotonen} \\
&= \text{Atomdichte} \cdot \text{Beobachtungsvolumen} \cdot \text{Zerfallsrate} \cdot \varrho_{22}.
\end{aligned} \tag{4.3}$$

Die Anzahl der gestreuten Fluoreszenzphotonen ist proportional zur Anzahl der Atome, die sich im Beobachtungsvolumen im Zustand $|2\rangle = 7^1S$ befinden sowie zur Zerfallsrate des Übergangs $7^1S \rightarrow 6^1S$. Letzteres ergibt sich aus der Lebensdauer des Niveaus 7^1S , das zu 87 % in 6^1P und zu 13 % in 6^3P zerfällt [Benck et al., 1989]:

$$\begin{aligned}
\Gamma &= \frac{0,87}{T_{7^1S}} = 28 \cdot 10^6 \frac{1}{\text{s}} \\
\text{mit } T_{7^1S} &= 31,2 \text{ ns}
\end{aligned}$$

Die Atomdichte von Quecksilber bei 300 K beträgt $4,8 \cdot 10^{19} \text{ m}^{-3}$, das Beobachtungsvolumen V , in dem Atome angeregt werden, ist in guter Näherung durch den Fokus der beiden Lichtstrahlen gegeben:

$$\begin{aligned}
V &= w_0^2 \cdot \pi \cdot b \approx (10 \mu\text{m})^2 \cdot \pi \cdot 0,5 \text{ mm} \\
&= 1,5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3
\end{aligned}$$

Der Bruchteil der Fluoreszenzphotonen, die von der Photodiode gemessen werden, entspricht dem Verhältnis der Photodiodenfläche zu der Fläche einer Kugel mit Radius d . Die aktive Fläche A der Photodiode beträgt $33,6 \text{ mm}^2$, demnach gelangen etwa 3 von 100 Fluoreszenzphotonen zur Photodiode.

Die Intensität der beiden Lichtstrahlen geht ebenso wie die Isotopenzusammensetzung des Atomdampfs in die Berechnung von ϱ_{22} ein.

$$\begin{aligned}
N_P &= 6,7 \cdot 10^{14} \cdot \varrho_{22} \frac{1}{\text{s}} \\
\Rightarrow U &\approx 0,6 \cdot \varrho_{22} \text{ V}
\end{aligned}$$

Aus der Leistung der beiden Strahlen – 170 mW bei 408 nm und 0,5 mW bei 254 nm – lassen sich die Rabi-Frequenzen Ω_{13} und Ω_{23} berechnen. Es handelt sich dabei um Maximalwerte, denn bereits ein kleiner Fehler in der Strahlüberlagerung beim Experiment sorgt dafür, daß nicht mehr die Bereiche der höchsten Rabi-Frequenz beider Strahlen zusammenfallen. Die Quecksilberatome werden dann in den sich noch überlappenden „Randbereichen“ beider Strahlen mit geringeren Rabi-Frequenzen angeregt.

Die gemessene Leistung P eines Lichtstrahls mit gaußschem Profil ist das Integral der Intensität über den Strahlquerschnitt A . Der Effektivwert des elektrischen Feldes und damit auch die Rabifrequenz des Strahls nimmt das Maximum im Fokus auf der Strahlachse an ($z = 0$ und $r = 0$ in Abbildung 2.1).

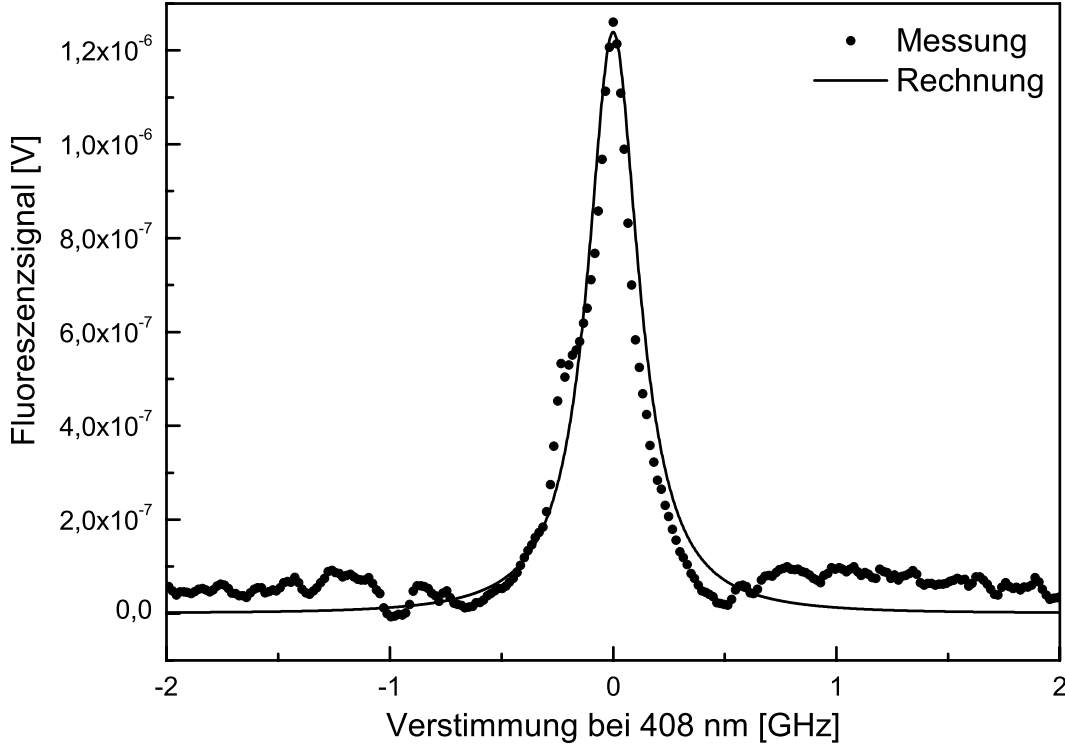


Abbildung 4.7: Gemessenes und berechnetes Fluoreszenzsignal des Übergangs $7^1S \rightarrow 6^1P$. Die Rechnung erfolgte mit Rabifrequenzen $\Omega_{13} = 1$ MHz, $\Omega_{23} = 80$ MHz und $\delta_{13} = 0$.

$$\begin{aligned}
 P &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \iint E^2 dA & (4.4) \\
 &= \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \cdot E_0^2 \cdot \frac{\pi \omega_0^2}{2}
 \end{aligned}$$

$$\text{wobei } E(r, z = 0) = E_0 \cdot e^{-\left(\frac{r}{w_0}\right)^2} \text{ [Verdeyen, 1981]}$$

$$\Rightarrow E_0 = \sqrt{\frac{4P}{\pi \omega_0^2}} \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \quad (4.5)$$

Mit einer gemessenen Strahltaile von $w_0 = 50 \mu\text{m}$ erhält man als Obergrenzen der beiden Rabifrequenzen $\Omega_{23} = 1$ GHz und $\Omega_{13} = 54$ MHz.

Für das in Abbildung 4.7 gezeigte berechnete Zwei-Photonenanregungsspektrum wurden beide Rabifrequenzen an die gemessene Fluoreszenzlinie angepasst. Daß die Rabifrequenz mit $\Omega_{13} = 1$ MHz den Ein-Photonenübergang bereits sättigt, führt – durch die Verbreiterung des Ein-Photonenübergangs – zu einer Verbreiterung der Fluoreszenzlinie bei 1014 nm. Es wurde also zunächst Ω_{13} an die Linienbreite, danach die

berechnete Signalhöhe durch variieren von Ω_{23} an die gemessene Linie angepaßt. Die so gewonnenen Rabi-Frequenzen liegen mit $\Omega_{13} = 1$ MHz und $\Omega_{23} = 80$ MHz wie erwartet unter den aus der Leistung berechneten Werten. Die gute Übereinstimmung der gemessenen und berechneten Fluoreszenzlinien sind in Abbildung 4.7 zu sehen.

4.5 Induzierte Transmission

Zur Beobachtung der in Kapitel 3.3 berechneten Verringerung der Absorption im Experiment wurde in einer 2 mm langen Quecksilberzelle die Abhängigkeit der Absorptionslinie des Übergangs $6^1S \rightarrow 6^3P$ von der Kopplung durch den zweiten Lichtstrahl von 6^3P an 7^1S gemessen.

4.5.1 Aufbau und technische Details

Abbildung 4.8 zeigt den Aufbau dieses Experiments: Der Probestrahl (254 nm) und der Strahl mit hoher Intensität zur Kopplung der Niveaus 6^3P und 7^1S (408 nm) werden mit einem dichroitischen Spiegel überlagert und kollinear durch eine Quecksilberzelle aus Quarzglas geführt. Eine Kontrolle der Justage erfolgte mit einer 20 μm großen Lochblende anstelle der Hg-Zelle. Zur Kontrolle der Kollinearität wurden beide Strahlen sowohl an der Lochblende als auch an einem zwei Meter entfernten Punkt überlagert. Der wellenlängenabhängige Brechungsindex von Quarz ist in Abbildung [Melles Griot, 2005] zu sehen: Bei einer Dicke des Eintrittsfensters von 0,75 mm resultiert daraus bei einer Ungenauigkeit des Einfallswinkels von $\alpha \leq 2^\circ$ ein Versatz von bis zu 2 μm der beiden Strahlen gegeneinander innerhalb der Quecksilberzelle. Der longitudinale Strahlversatz der beiden Strahlen wurde durch leichtes Verschieben einer der Teleskoplinsen des 254 nm-Strahls korrigiert. Bei nahezu senkrechtem Einfall des Lichts auf das Eintrittsfenster ist der Effekt des Strahlversatzes auf die Überlagerung der beiden Strahlen also vernachlässigbar.

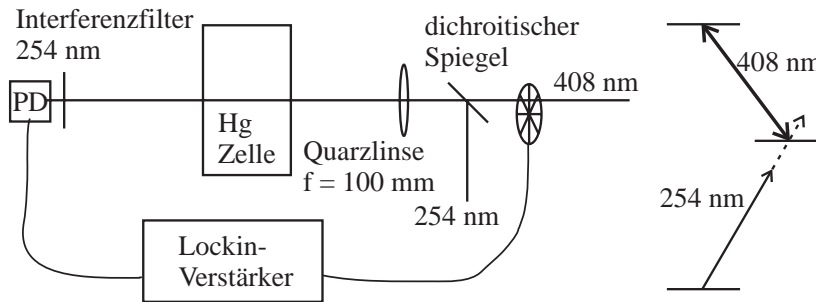


Abbildung 4.8: Experimenteller Aufbau zur Messung von induzierter Transparenz in einer Quecksilberzelle.

4.5.2 Einfluß des Dopplereffekts

Der Dopplereffekt im Quecksilberdampf bewirkt nicht nur, daß die Atome die Lichtstrahlen mit verschiedenen Verstimmungen „sehen“, sondern auch, daß die Atome unterschiedlich viel Zeit im Fokus verbringen. In Abbildung 4.10 ist als Beispiel ein einzelnes Quecksilberatom mit Geschwindigkeit \vec{v} dargestellt. Der hellgraue Bereich, den das Atom durchfliegt, ist die Wechselwirkungszone, also der Bereich, in dem durch die

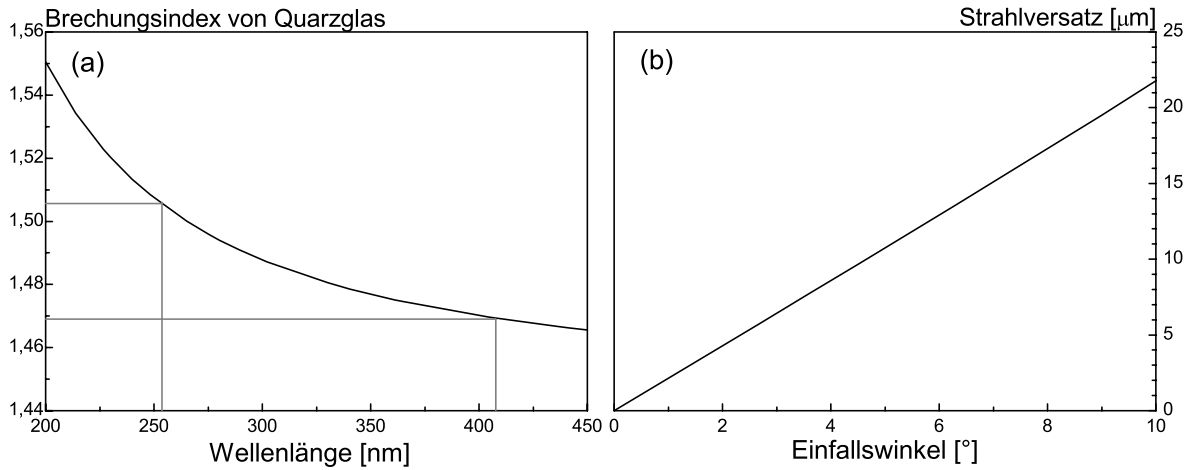


Abbildung 4.9: (a) Brechungsindex von Quarzglas bei 300 K [Melles Griot, 2005] und (b) daraus resultierender Versatz zwischen zwei Lichtstrahlen bei 254 nm und 408 nm nach Durchgang durch eine 0,75 mm dicke Quarzplatte.

starke Fokussierung die Bedingungen für das Induzieren von Transparenz erreicht werden. Er wird allgemein durch ein Ellipsoid beschrieben, durch die starke Fokussierung des Kopplungsstrahls kann die Wechselwirkungszone hier jedoch in guter Näherung als kugelförmig betrachtet werden.

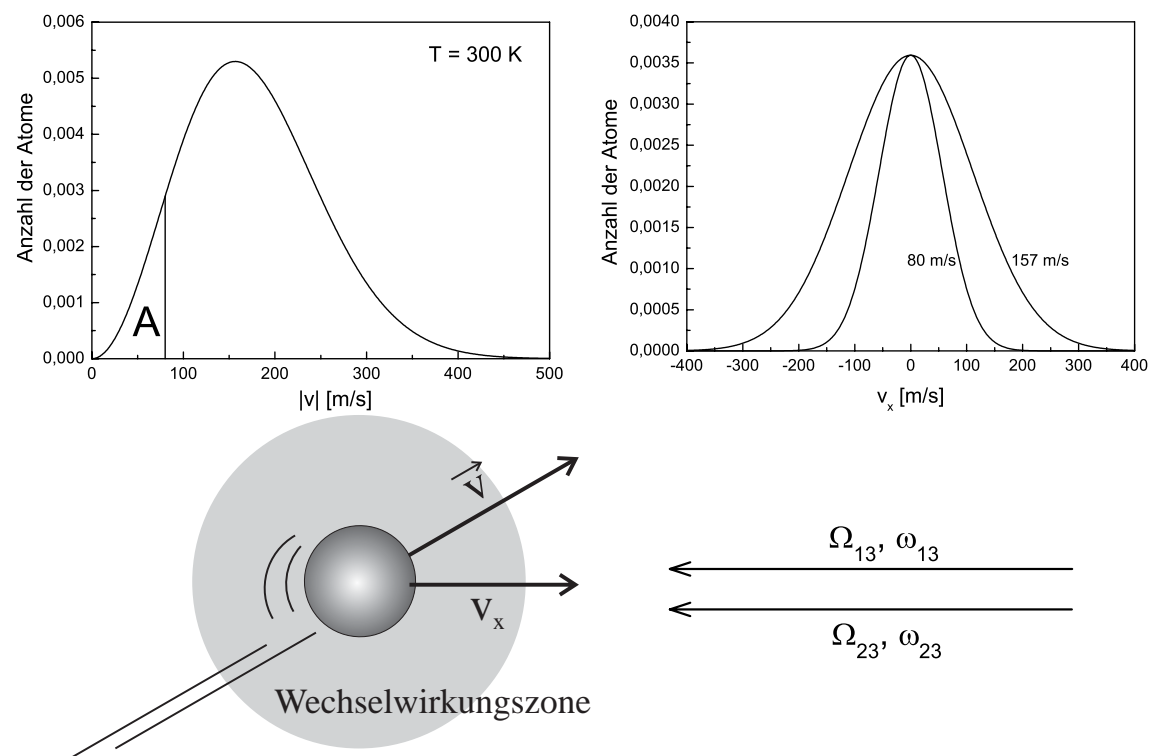


Abbildung 4.10: Anteil der zum EIT-Signal beitragenden Atome im Quecksilberdampf und Reduktion der Dopplerverbreiterung durch endliche Wechselwirkungszeit der Atome mit den Lichtfeldern. Weitere Erläuterungen im Text.

Die Komponente seiner Geschwindigkeit entgegen den Lichtstrahlen wird mit v_x bezeichnet. Die Zeit, die ein Atom in der Wechselwirkungszone verbringen muß, um in die stationäre Lösung zu finden, ist nach [Cohen-Tannoudji et al., 1992] ungefähr die Lebensdauer des stark getriebenen Übergangs, in diesem Fall¹

$$T_{7^1S \rightarrow 6^3P} = \frac{T_{7^1S}}{0,13} = 230 \text{ ns.} \quad (4.6)$$

Atome, die so schnell sind, daß sie weniger als 230 ns in diesem Bereich verbringen, werden also nicht zum EIT-Signal beitragen. Bei einem Fokusbereich von 20 μm ist das ab einer Geschwindigkeit von 87 m/s der Fall. Der Anteil der Atome, die bei 300 K genügend Zeit in der Wechselwirkungszone verbringen um stationäre gemischte Zustände auszubilden, ist in Abbildung 4.10 in der Verteilung des Geschwindigkeitsbetrags mit „A“ gekennzeichnet und macht nur 8 % der Atome aus. Für die Dopplerbreite der gemessenen Kurven ist die Verteilung von v_x entscheidend. Sie wird durch die endliche Wechselwirkungszeit für EIT-Signale ebenfalls eingeschränkt.

4.5.3 Interpretation des Photodiodensignals

Das am Lockin-Verstärker gemessene Signal kommt durch die Verwendung eines Unterbrechers im Kopplungsstrahl folgendermaßen zustande: Der Lockin-Verstärker ermittelt die Differenz zwischen der Spannung an der Photodiode, wenn beide Lichtstrahlen durch die Quecksilberzelle gehen und der Spannung, die anliegt, wenn der Koppelstrahl unterbrochen ist. Im letzten Fall handelt es sich – geringe Leistung im Probestrahl vorausgesetzt – um lineare Absorption, im ersten um die gesamte Absorption des getriebenen Drei-Niveau-Systems auf dem Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$. Der Imaginärteil der entsprechenden Kohärenz ist in Abbildung 4.11 dargestellt: Dazu wurde in der Kohärenz ρ_{13} aus Gleichung (3.55) berücksichtigt, daß eine Wechselwirkung von Atomen mit $v > 80 \text{ m/s}$ mit dem Kopplungslaser unwahrscheinlich ist und diese Atome daher lineare Absorptionseigenschaften haben.

Der Anteil der Atome, die durch gemischte Zustände Licht der ursprünglichen Übergangsfrequenz nicht absorbieren, ist mit 8 % zu gering, um eine deutliche Änderung der Absorptionslinienform zu bewirken. Auch der Rückgang der maximalen Absorption um 8 % kann aufgrund von Leistungsschwankungen des Probestrahls in der selben Größenordnung nicht beobachtet werden. Im Experiment konnte durch die Verwendung von Lockin-Technik die Absorption der „EIT-Atome“ (Abbildung 4.11, Kurve (3)) als Differenz der reinen linearen Absorption (1) und der 92 % linearen und 8 % EIT-Absorption (2) gemessen werden.

¹Je nach Lebensdauer der gekoppelten Zustände und der – ggf. auch zeitabhängigen – Rabi-Frequenz des Kopplungslasers kann diese Zeitkonstante auch durch die Rabi-Frequenz selbst gegeben sein [Ye and Shen, 1982].

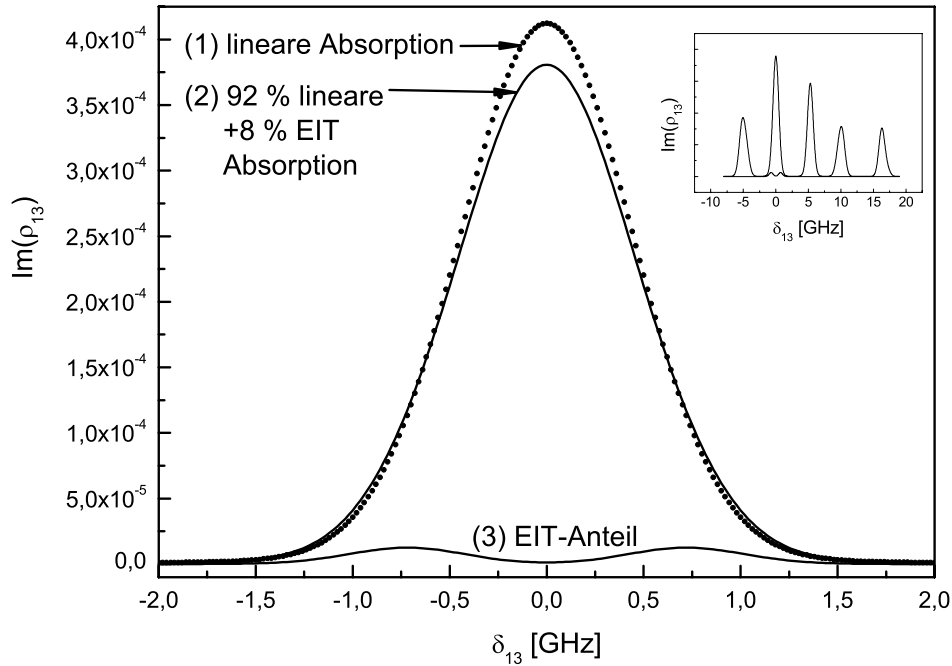


Abbildung 4.11: Aufteilung des Absorptionskoeffizienten von Quecksilber bei 300 K in eine von Ω_{23} -unabhängige (Graph (1): lineare Absorption, $\Omega_{13} = 1$ MHz) und eine Ω_{23} -abhängige (EIT-Anteil der Absorption, Graph (3), $\Omega_{13} = 1$ MHz, $\Omega_{23} = 1,5$ GHz) Komponente. Graph (2) zeigt den gesamten Absorptionskoeffizienten (siehe Text).

4.5.4 Auswertung

Der EIT-Anteil der Absorption wurde für verschiedene Verstimmungen des Kopplungslasers δ_{23} in Abhängigkeit von δ_{13} bestimmt. Da die Intensitäten der beiden Lichtstrahlen über eine gesamte Meßreihe nicht als konstant angenommen werden können, wurden die Daten folgendermaßen ausgewertet: Zunächst wurde die Frequenzachse δ_{13} wie in Kapitel 4.1 skaliert und eine Offsetkorrektur durchgeführt². Anschließend wurde die effektive Rabi-Frequenz anhand des Frequenzabstandes der Absorptionsmaxima der gemischten Zustände bestimmt. Mit der Verstimmung δ_{23} aus den Daten des Wellenlängenmeßgerätes WA-1500 läßt sich über Gleichung (3.31) Ω_{23} berechnen. Durch Anpassen der Linienbreite der Rechnung an die Messung wie in Kapitel 4.4 erhält man $\Omega_{13} = 0,1$ GHz für jeden der im folgenden in Abbildungen 4.12 ff. gezeigten Graphen.

Die Berechnung der Absorption erfolgte mit der in Kapitel 3.4 vorgestellten Form der Kohärenz ρ_{13} mit den Lebensdauern $T_1 = 30$ ns, $T_2 = 120$ ns und $\tau_2 = 70$ ns. Nicht in der Rechnung berücksichtigt wird die Ortsabhängigkeit der Rabi-Frequenzen durch die Fokussierung. Durch Anpassen von Ω_{13} und Ω_{23} an die Meßdaten erfolgt allerdings indirekt eine Mittelung über die räumliche Abhängigkeit der beiden Größen. Diese

²Das festgelegte λ_0 ist nicht exakt $\lambda_{6^1S \rightarrow 6^3P}$ von ^{202}Hg außerdem wird die Einkopplung des 507 nm-Strahls in das Wellenlängenmeßgerät geringfügig durch Neujustage des Farbstofflasers beeinflusst, was sich ebenfalls in einem Frequenzoffset äußert.

Näherung resultiert zusammen mit den vereinfachten Zerfallszeiten in geringfügig abweichendem Kontrast und relativen Intensitäten der gemischten Zustände in der Rechnung im Vergleich zum Experiment.

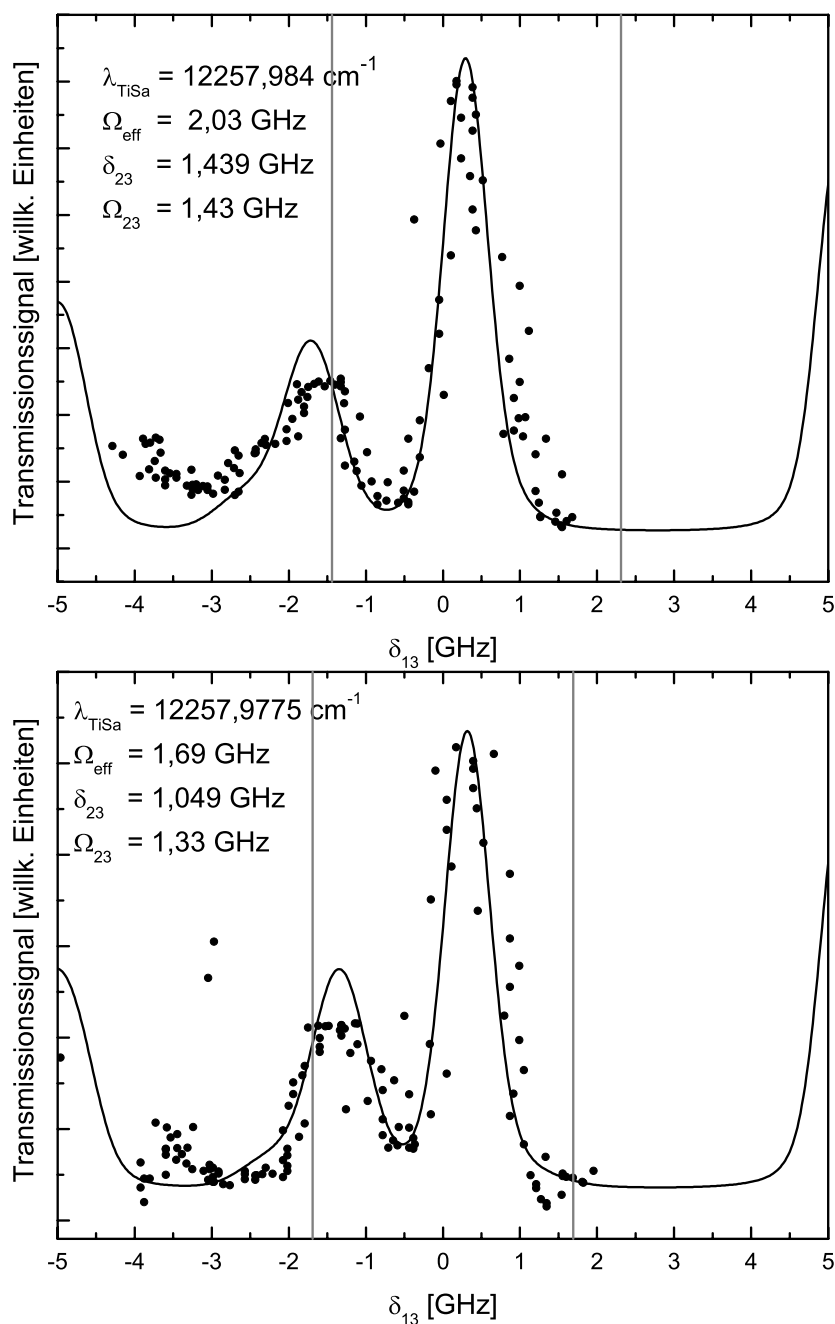


Abbildung 4.12: Transmissionsmessungen: Die Parameter sind im jeweiligen Graphen angegeben. Die beiden grauen Linien geben die Position der Absorptionsmaxima durch Dopplereffekt an, sie werden in Kapitel 4.6.2 erläutert. Bei $\delta_{13} = \pm 5$ GHz ist in der Rechnung bereits die Absorption der Isotope 200 und 204 zu sehen.

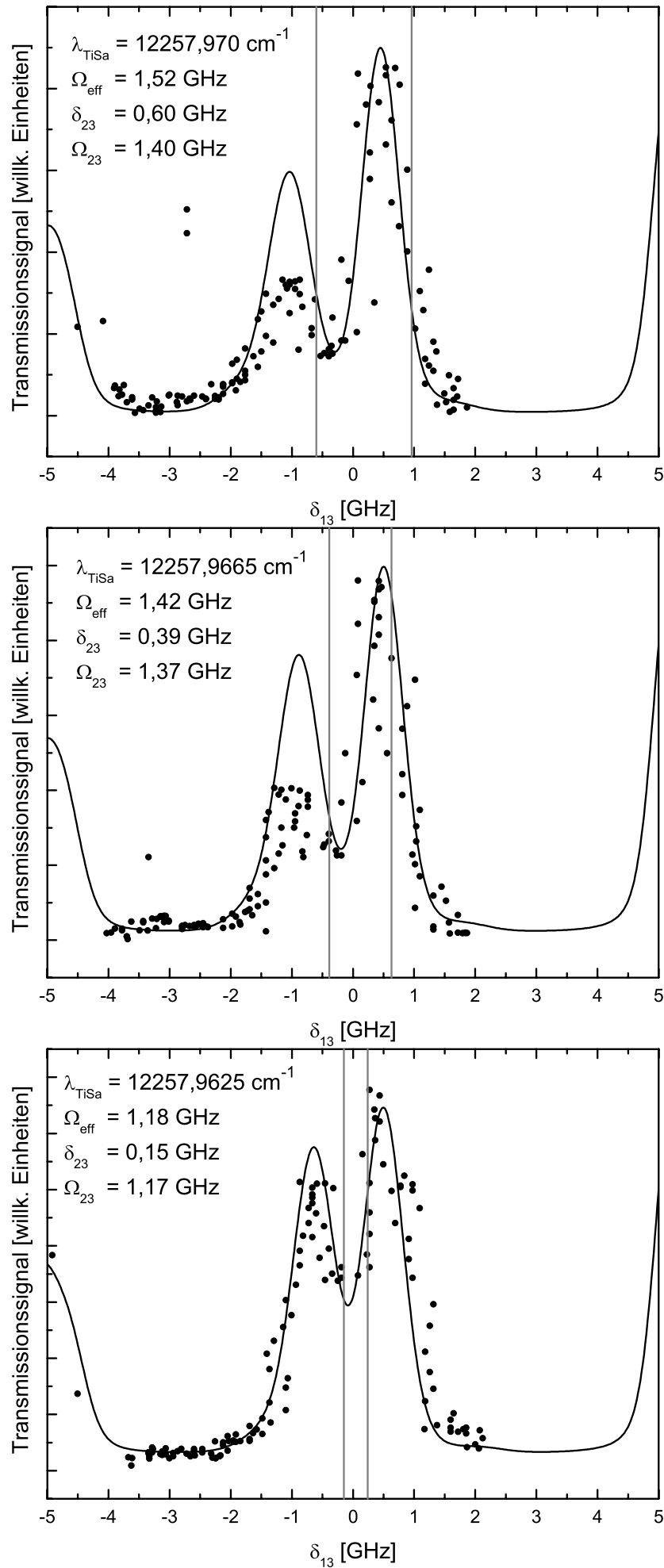


Abbildung 4.13: Fortsetzung von Abbildung 4.12.

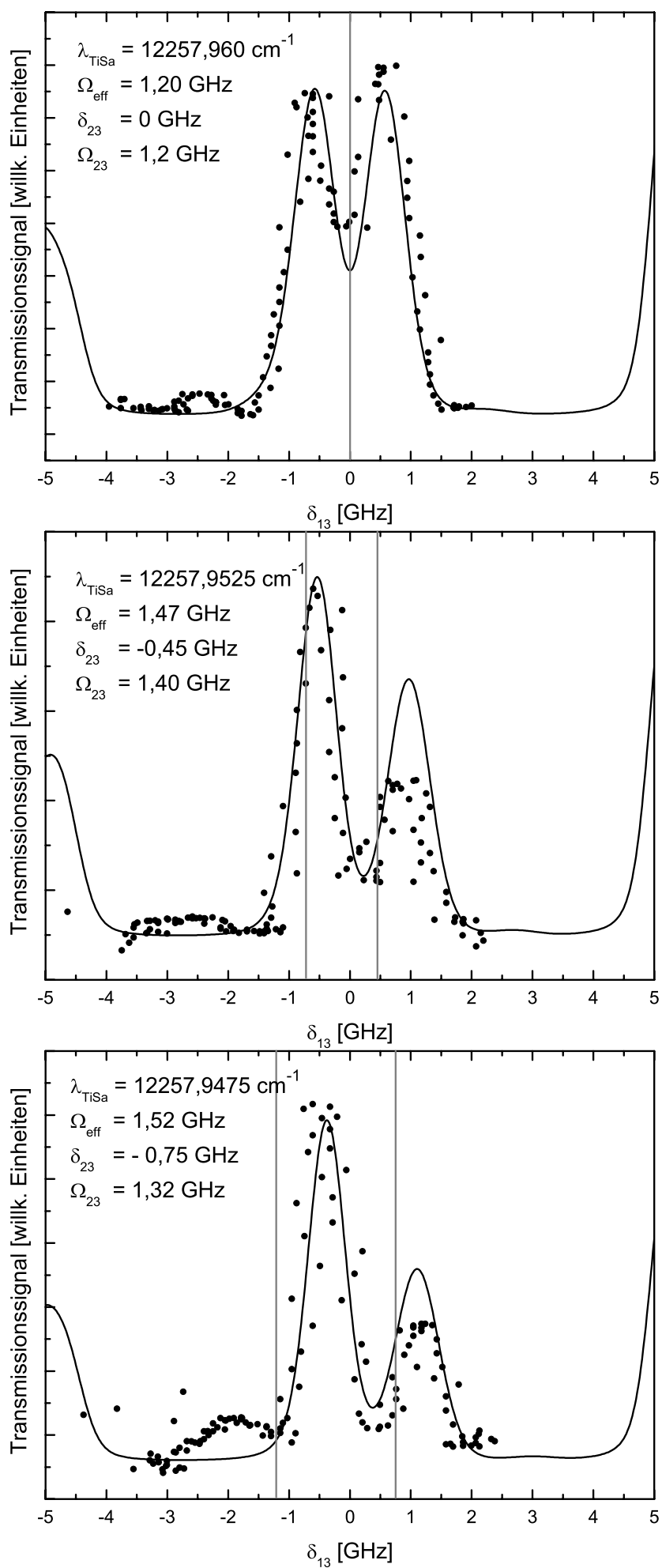


Abbildung 4.14: Fortsetzung von Abbildung 4.12.

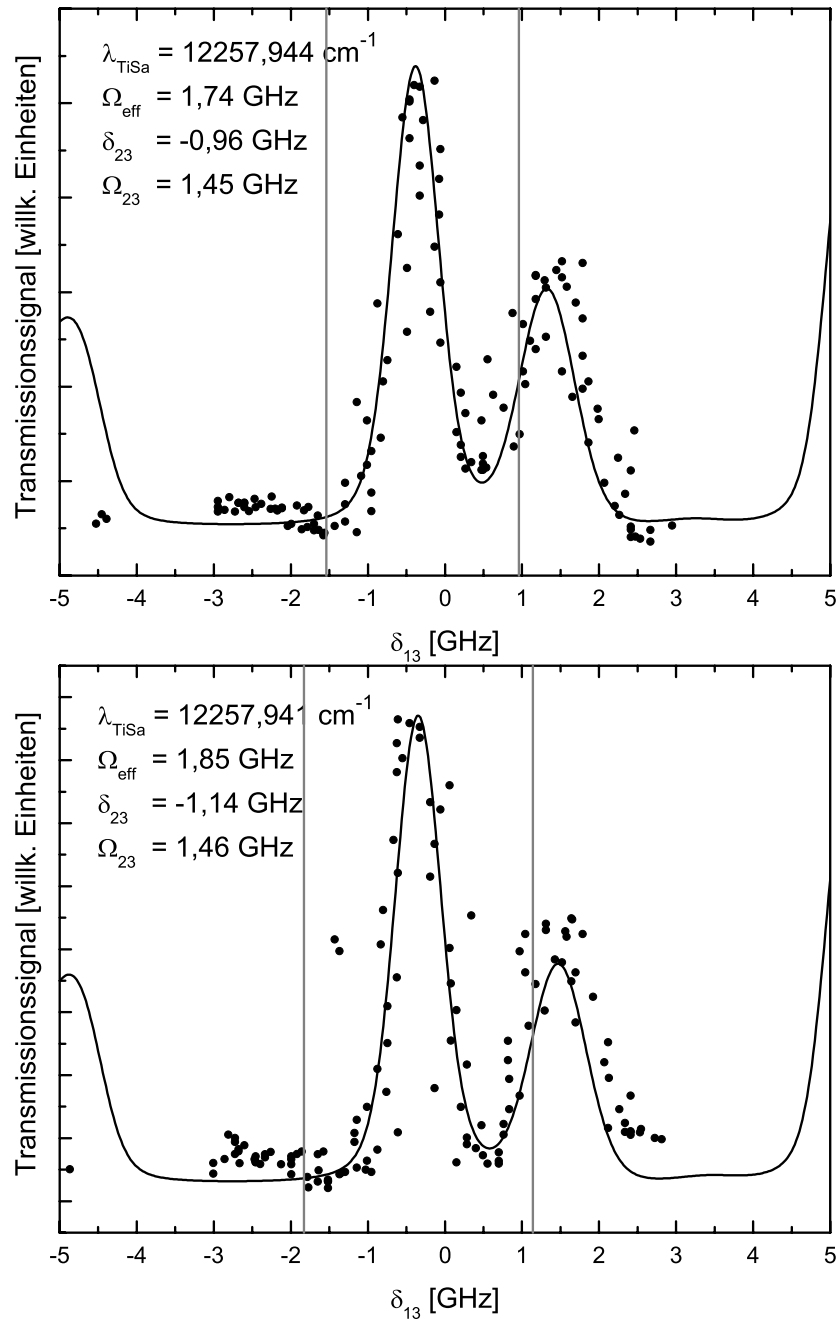


Abbildung 4.15: Fortsetzung von Abbildung 4.12.

Das Anpassen der Rechnung an die Meßdaten ergab hieraus eine mittlere Geschwindigkeit für die eindimensionale Gaußverteilung von $v_x = 80 \text{ m/s}$. Das entspräche einer Wechselwirkungslänge von $18 \mu\text{m}$. Bereits eine kleine Abweichung in Überlagerung der Foki beider Lichtstrahlen in allen drei Raumrichtungen ist ausreichend, um die Verringerung der Wechselwirkungslänge von den in Abschnitt 4.5.2 berechneten $20 \mu\text{m}$ auf $18 \mu\text{m}$ zu erklären.

Obwohl eine Rabi-Frequenz größer der Linienbreite des aufzusplittenden Übergangs erreicht wurde, konnte in einer Transmissionsmessung aufgrund der geringen Wechsel-

wirkungszeit ohne Lockin-Technik keine Verringerung der Absorption gegenüber der linearen Absorption festgestellt werden. Mit Lockin-Technik jedoch zeigt die Meßreihe den aus Abbildung 3.11 in Kapitel 3.3 bekannten Einfluß der Verstimmung des Kopplungslasers auf die Lage der gemischten Zustände: In ersten Graphen der Abbildungesreihe 4.12 beobachtet man einen stärker werdenden gemischten Zustand, der sich von $\delta_{13} < 0$ her mit abnehmender Kopplungslaserverstimmung in Richtung der ursprünglichen Übergangsfrequenz verschiebt, bis für $\delta_{23} = 0$ im sechsten Graphen zwei gleich starke Absorptionslinien vorhanden sind. Nimmt die Frequenz des Kopplungslasers weiter ab, wird die Übergangsfrequenz des gemischten Zustands rechts im Bild größer und seine Absorptionslinie schwächer.

Diese Meßreihe zeigt damit, daß bei ausreichender Wechselwirkungszeit das Induzieren von Transparenz in Quecksilber möglich ist. Die gemischten Zustände bilden wie erwartet ein Autler-Townes-Doublett und der Populationstransfer in einen Dunkelzustand ist vernachlässigbar.

4.6 Fluoreszenzmessungen

4.6.1 Gemischte Zustände durch Kopplung der Niveaus 6^3P und 7^1S

Um die Lage der gemischten Zustände des Niveaus 7^1S zu bestimmen, wurde die Fluoreszenz des Übergangs $7^1S \rightarrow 6^1P$ bei 1014 nm mit hoher Rabifrequenz Ω_{23} und Ω_{13} weit unterhalb der Sättigungsintensität gemessen. Für verschiedene Wellenlängen des Kopplungslasers wurde die Abhängigkeit der Fluoreszenz von der Verstimmung δ_{13} bestimmt. Eine Silizium-Photodiode (S1337-66BQ, Hamamatsu) mit einem Interferenzfilter für 1014 nm dienten der Detektion der Fluoreszenzphotonen. Die Auswertung erfolgte wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben. Auch hier führt die Vereinfachung der Zerfallsraten in der Rechnung zu einem anderen Intensitätsverhältnis der gemischten Zustände als im Experiment. Die Rabifrequenz des Kopplungslasers hat in dieser Meßreihe die Dopplerbreite des Übergangs $6^1S \rightarrow 7^1S$ nicht übertroffen, daher ist in der Fluoreszenzlinie für $\delta_{23} = 0$ keine Aufspaltung sichtbar. Die Zwei-Photonenabsorptionsrate läßt sich mit experimentell erreichbaren Rabifrequenzen der Kopplungslasers also nicht unterdrücken.

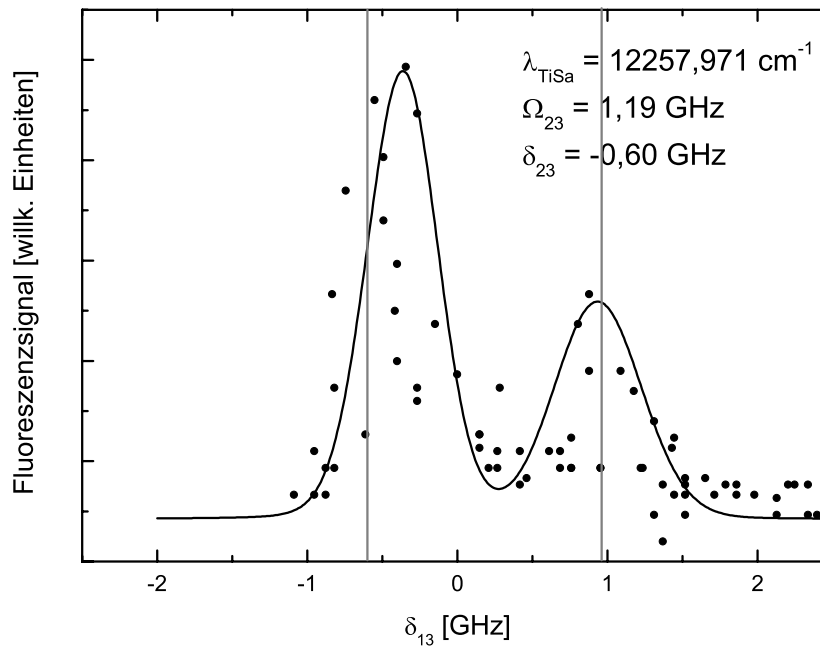


Abbildung 4.16: Gemessene Fluoreszenz aus dem Niveau 7^1S (Punkte) und Population ρ_{22} berechnet aus den im jeweiligen Graphen angegebenen Parametern des Experiments (Linie). Die beiden grauen Linien geben die Position der Absorptionsmaxima durch Dopplereffekt an, sie werden im folgenden Abschnitt 4.6.2 erläutert. Auf der nächsten Seite sind weitere Graphen dieser Meßreihe abgebildet.

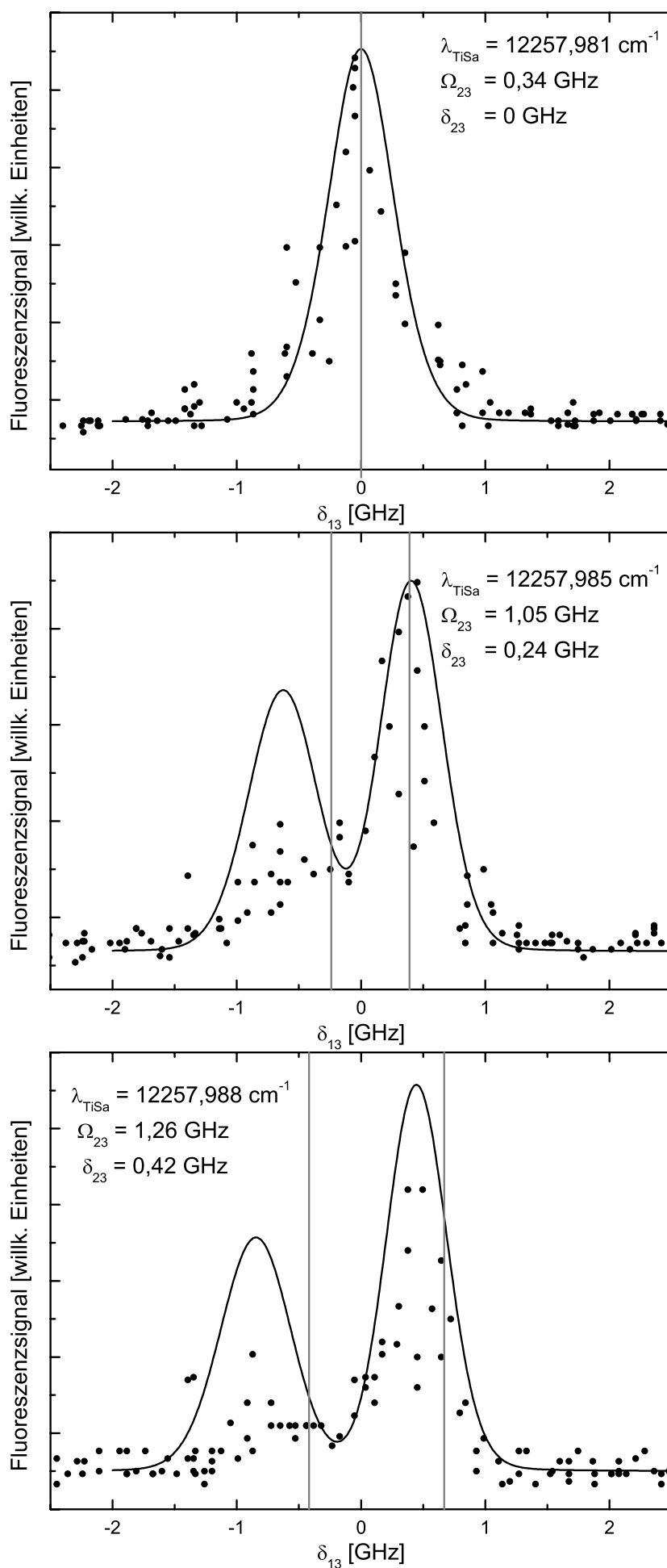


Abbildung 4.17: Fortsetzung von Abb. 4.16 zu größeren Wellenlängen des Koppellasers hin.

4.6.2 EIT-ähnliche Fluoreszenz durch Dopplereffekt

In einem Medium, in dem Dopplerverbreiterung auftritt, wird ein Lichtstrahl mit Verstimmung δ gegen eine atomare Resonanz ω von Atomen mit Geschwindigkeit $v \approx c \cdot \delta/\omega$ resonant „gesehen“. Wird δ_{13} konstant gehalten und δ_{23} variiert, führt der Dopplereffekt dazu, daß für zwei verschiedene Geschwindigkeitsgruppen die Zwei-Photonenabsorption durch Resonanznähe gegenüber den anderen Geschwindigkeitsgruppen erhöht wird. Eine der beiden Gruppen bilden Atome mit Geschwindigkeit $v = 0$ in Ausbreitungsrichtung des Lichts. Für sie ist die Zwei-Photonenresonanz-Bedingung für $\delta_{13} + \delta_{23} = 0$ erfüllt. Die zweite Gruppe besteht aus Atomen, deren Geschwindigkeit gerade $v = c \cdot \delta_{13}/\omega_{13}$ beträgt, so daß eine Ein-Photonenresonanz vorliegt und für $\delta_{23} = -\omega_{23} \cdot v/c$ auch die Zwei-Photonenresonanz. Beide Gruppen sind in Abbildung 4.18 skizziert.

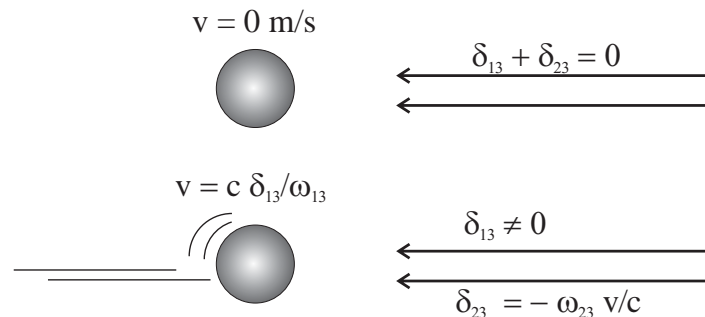


Abbildung 4.18: Geschwindigkeitsgruppen mit erhöhter Zwei-Photonenabsorptionsrate. Oben: Zwei-Photonenresonanz mit Verstimmung δ_{13} zum Zwischenniveau, unten: Zwei-Photonenresonanz mit resonantem Zwischenniveau.

Bei Atomen mit $v = 0$ kommt die Population ρ_{22} im allgemeinen ($\delta_{13} \neq 0$) durch Zwei-Photonenabsorption zustande, während in der zweiten Gruppe sowohl Zwei-Photonenabsorption als auch stufenweise Anregung zu erwarten ist. Die Abhängigkeit der Fluoreszenz von δ_{23} wird demnach für die beiden Geschwindigkeitsgruppen unterschiedliche Linienbreiten besitzen. Die gemessenen Fluoreszenzspektren sind zusammen mit der berechneten Population ρ_{22} in Abbildungen 4.19, 4.20 und 4.21 zu sehen.

Eine Anpassung der Rechnung an die gemessene Fluoreszenz ergab, daß sich die gemessene Struktur nicht durch das Vorhandensein verschiedener Isotope mit unterschiedlichen Übergangsfrequenzen erklären läßt. Es kann auch ausgeschlossen werden, daß es sich um gemischte Zustände handelt, denn bei gemischten Zuständen nähert sich einer von beiden bei zunehmender Verstimmung des koppelnden Lichtfeldes dem ungestörten Zustand an. Hier beobachtet man jedoch, daß sich beide Fluoreszenzmaxima bei zunehmender Verstimmung weiter von der Frequenz des ungestörten Zwei-Photonenübergangs entfernen.

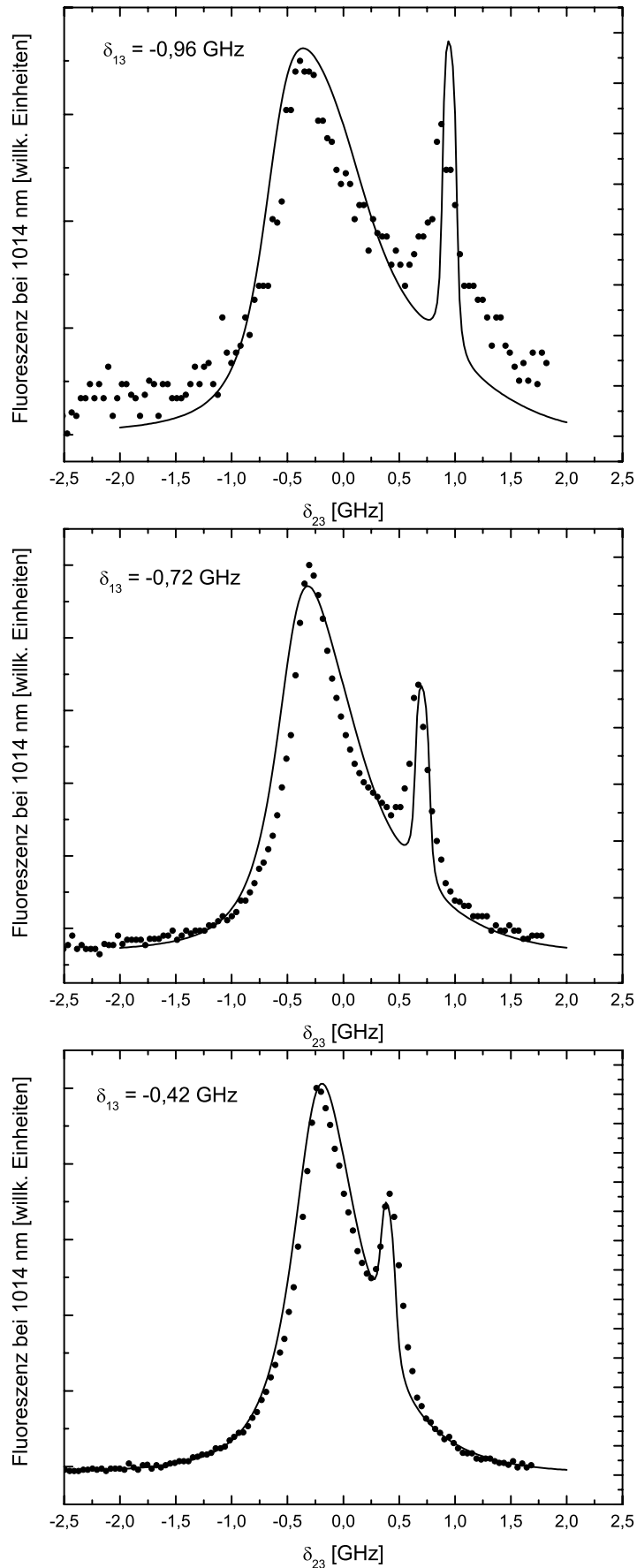


Abbildung 4.19: Fluoreszenz $7^1S \rightarrow 6^1P$ der beiden im Text erläuterten Geschwindigkeitsgruppen: Die breitere der beiden Fluoreszenzlinien stammt von $v = c \cdot \delta_{13}/\omega_{13}$ -Atomen ($\Omega_{13} = \Omega_{23} = 50$ MHz, $v_0 = 157$ m/s), die schmalere von $v = 0$ -Atomen ($\Omega_{13} = \Omega_{23} = 0,1$ GHz, $v_0 = 80$ m/s).

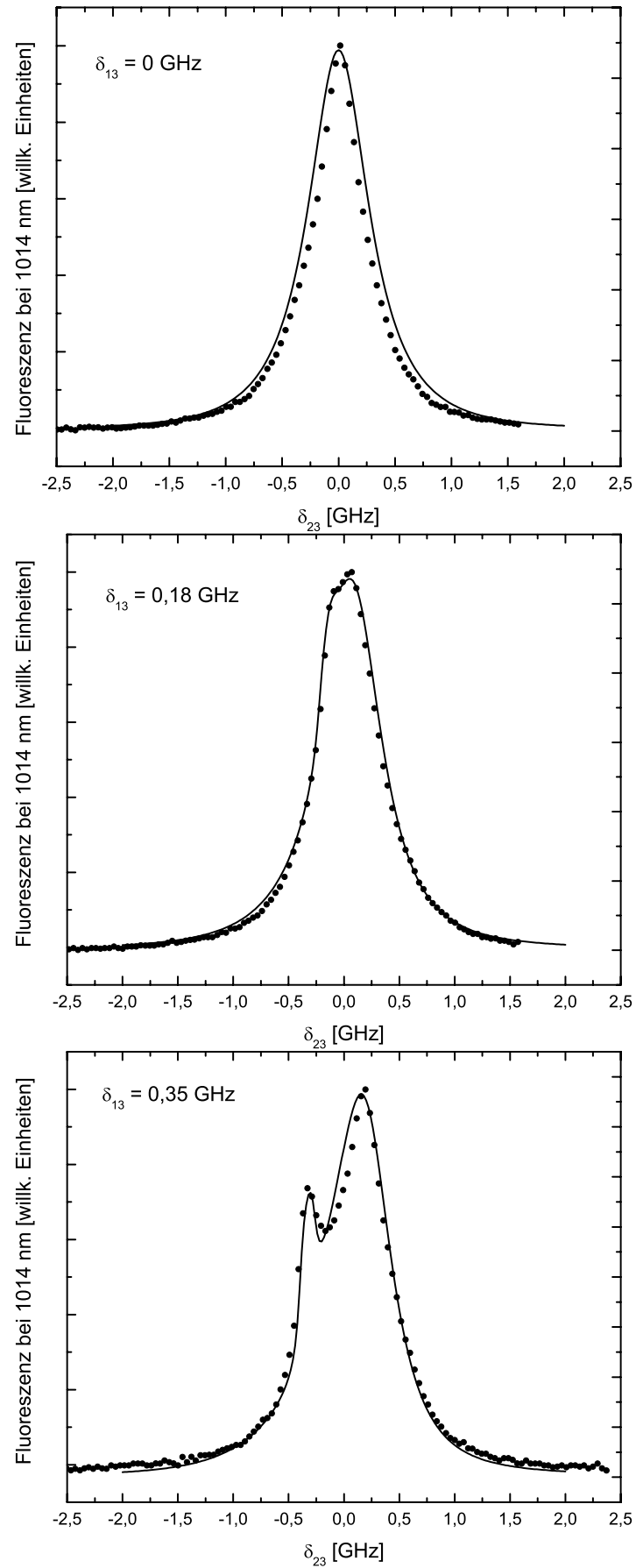


Abbildung 4.20: Fortsetzung zu Abbildung 4.19.

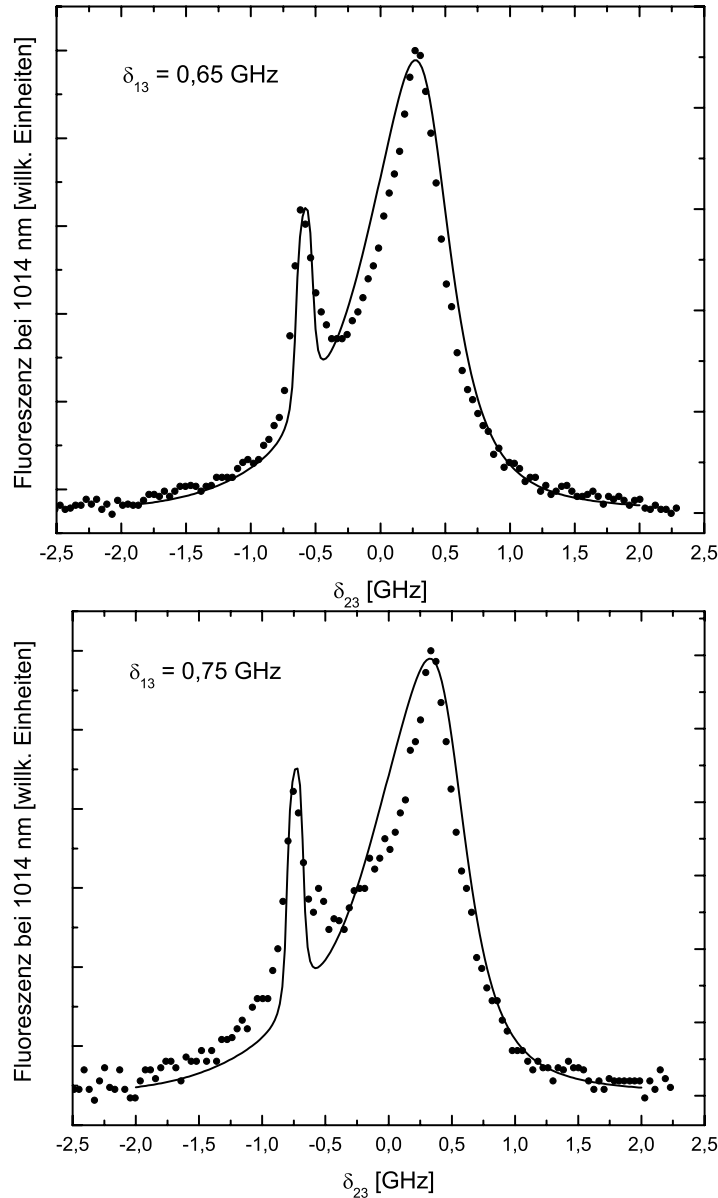


Abbildung 4.21: Fortsetzung zu Abbildung 4.19.

Des weiteren dominieren für hohe Intensitäten der Lichtstrahlen $v = 0$ -Atome das Fluoreszenzsignal, während bei geringen Intensitäten fast ausschließlich Atome der zweiten Geschwindigkeitsgruppe in den Zustand 7^1S angeregt werden. Die gemessenen Fluoreszenzphotonen kommen demnach aus unterschiedlichen Bereichen des Fokus: Aus dem Kernbereich des Fokusüberlapps der beiden Strahlen kommen Fluoreszenzphotonen der $v = 0$ -Atome mit schmalen Zwei-Photonenabsorptionslinien. Im Randbereich mit geringeren Intensitäten emittieren $v = c \cdot \delta_{13} / \omega_{13}$ -Atome Fluoreszenzphotonen bei 1014 nm. Da beide Bereiche nicht notwendigerweise gleich groß sein müssen, wurde die relative Höhe beider Fluoreszenzkomponenten den Meßdaten angepaßt:

$$\varrho_{22} = \varrho_{22}^{(v=c \cdot \delta_{13} / \omega_{13})} + 2 \cdot \varrho_{22}^{(v=0)} \quad (4.7)$$

In Abbildungen 4.19, 4.20 und 4.21 sind Messung und berechnetes ϱ_{22} mit guter Über-

einstimmung zu sehen. Der Effekt wird im Experiment beobachtet, wenn beide Strahlen zwar kollinear sind, aber mit Strahlversatz durch die Hg-Zelle gehen oder einer oder beide Strahlen Astigmatismus aufweisen und dadurch die Bereiche höchster Rabinfrequenzen beider Strahlen nicht zusammenfallen.

Rückblickend auf die in Kapitel 4.5 und 4.6.1 vorgestellten Meßreihen ist zu erkennen, daß die grauen Linien, die die Position der durch Dopplereffekt entstehenden Absorptionslinien nicht mit der beobachteten Verschiebung der gemischten Zustände zusammenfallen. Der in diesem Abschnitt vorgestellte Effekt ist also nicht für die Strukturen in Kapitel 4.5 und 4.6.1 verantwortlich. Die in Kapitel 3.4 beschriebene Rechnung gibt die experimentelle Situation also gut wieder, wenn man berücksichtigt, ob der Dopplereffekt oder das Mischen der atomaren Zustände das Vorhandensein mehrerer Absorptionslinien verursacht.

Kapitel 5

Verbesserung der Konversionseffizienz des Vier-Wellen-Mischens

In diesem Kapitel werden Schlüsse aus den experimentellen Ergebnissen für mögliche Verbesserungen der Anfangs vorgestellten Lyman- α -Quelle gezogen. Die Diskussion ist in die verschiedenen in die Konversionseffizienz des VWM eingehenden Größen gegliedert: Zunächst geht es um die Atomdichte und die Frage, wie die Nachteile von Dampfzellen umgangen werden können. Anschließend werden verschiedene Möglichkeiten erörtert, durch Ändern des Anregungsschemas mehr Leistung in den Fundamentalstrahlen zu bekommen. Mit der Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität durch EIT beschäftigt sich Kapitel 5.3, danach wird detailliert auf die Problematik der Phasenanpassung eingegangen.

5.1 Atomdichte und Dopplereffekt

Zellen, wie sie in den Experimenten zu dieser Arbeit verwendet wurden, stellen einen geeigneten „Behälter“ für das nichtlineare Medium dar, da sie einfach in der Handhabung sind, guten optischen Zugang bieten und die Atomdichte über die Zelltemperatur regelbar ist. Allerdings nimmt durch Heizen einer Zelle nicht nur die Atomdichte, sondern auch der Dopplereffekt zu (selbes gilt auch für eine sogenannte *heatpipe*, [Vidal and Cooper, 1969, Steffes et al., 1996, Scheingraber and Vidal, 1981] sowie [Boyd and Dodd, 1980]). Ein Mischen der Niveaus 6^3P und 7^1S durch kontinuierliches Laserlicht mit einer Rabi-Frequenz von ca. 1,5 GHz, wie sie in den Experimenten im Rahmen dieser Arbeit erreicht wurden (siehe Meßreihen des vorangegangenen Kapitels) ist dann nicht mehr möglich. Kühlt man die Zelle, um den Dopplereffekt zu verringern, so nimmt die Atomdichte stark ab, damit würde im Falle von VWM mit EIT in einer Zelle auch die erzeugte VUV-Leistung zurückgehen. Glaszellen sind damit zwar für erste Experimente gut geeignet, für VWM mit EIT aber nicht.

Mit einer Atomstrahlapparatur läßt sich der Konflikt zwischen Dichte und Doppler- sowie Druckverbreiterung der atomaren Übergänge elegant umgehen: Bei 220 °C wird die Verbreiterung der Zwei-Photonenabsorptionslinie $6^1S \rightarrow 7^1S$ durch die Verwendung eines Atomstrahls bei vergleichbarer Dichte von den 3 GHz (Zelle) auf 2 GHz verringert [König, 2003]. Führt man das Experiment aus Kapitel 4.5 statt mit einer Zelle mit der in [König, 2003] vorgestellten Apparatur durch, verringert sich die Wechselwirkungszeit der Atome für eine Strahltaile von 20 μm auf weniger als 120 ns¹. In der Geschwindigkeitsverteilung der Atome, die durch eine Düse ins Vakuum expandieren, befinden sich weniger langsame Atome als in einer Zelle bei gleicher Temperatur, denn in der Düse werden die langsamen Atome durch Stöße mit nachfolgenden schnelleren Atomen beschleunigt. Durch diesen sogenannten *Zacharias-Effekt* wird im Strahl nicht nur die Wechselwirkungszeit geringer, sondern auch die Zahl der Atome, in denen dennoch Transparenz induziert werden könnte. Damit bleiben die Absorptionseigenschaften des Atomstrahls auf dem Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ nahezu ungestört.

Daß es prinzipiell möglich ist, Kohärenzeffekte in einem Atomstrahl zu beobachten, zeigt eine Veröffentlichung aus dem Jahre 1996, worin von der dem EIT verwandten Erzeugung kohärenter Strahlung ohne Populationsinversion² in einem Natrium-Atomstrahl berichtet wird [Padmabandu et al., 1996]. Es ist also zu erwarten, daß mit einem entsprechenden Lasersystem – Möglichkeiten hierfür werden in Kapitel 5.2 diskutiert – auch im Quecksilber-Atomstrahl Transparenz induziert werden kann.

Das Problem der kurzen Verweildauer des nichtlinearen Mediums läßt sich durch Verwenden einer kalten Atomwolke lösen, deshalb wurden in der letzten Zeit die meisten Experimente zur nichtlinearen Optik mit kalten Atomwolken realisiert: 1999 machte man sich die starke Dispersion die EIT mit sich bringt zunutze, um die Lichtgeschwindigkeit stark zu verringern [Harris and Hau, 1999], [Hau et al., 1999]. Eine Kontrolle des Brechungsindex und damit der Phasenanpassung ermöglichte dann auch Vier-Wellen-Mischen [Braje et al., 2004] oder Sechs-Wellen-Mischen in kaltem Rubidium [Kang et al., 2004]. Eine detailliertere Diskussion der Phasenanpassung durch EIT erfolgt in Abschnitt 5.4.

In einer kalten Quecksilber-Atomwolke gäbe es so gut wie keine Dopplerverbreiterung; die zur Aufspaltung des Niveaus 6^3P benötigte Rabi-Frequenz wäre somit geringer, so daß VMW mit kollimierten Strahlen möglich sein sollte. Die Problematik, daß nur 8 % der Atome bei EIT „mitmachen“, wäre ebenso wie die räumlich variierende Rabi-Frequenz hinfällig. Allerdings birgt die Erzeugung einer kalten Quecksilber-Atomwolke

¹Die Geschwindigkeit der Atome bei Austritt aus der Düse beträgt im Mittel 166 m/s. Da der Strahl ins Vakuum expandiert, werden die Atome bereits 1 mm hinter der Düse auf 300 m/s beschleunigt.

²engl.: *lasing without inversion* (LWI)

einige Schwierigkeiten in sich. Pläne einer Falle für neutrale Quecksilberatome mit Dichten über 10^{11} Atome/cm³ und einer räumlichen Ausdehnung von 300 μ m findet man in [Walther, 2002].

Eine weitere Möglichkeit besteht in der Verwendung einer mit dem nichtlinearen Medium gefüllten Hohlleiter oder photonischer Kristallfaser [Fedotov et al., 2001]. Eine Faser eignet sich sehr gut, um große Längen des nichtlinearen Mediums bei hoher Leistungsdichte der Fundamentalstrahlen zu realisieren – dabei stehen durch die Wahl der Faser zusätzliche Parameter zur Optimierung der Phasenanpassung zur Verfügung (siehe [Naumov et al., 2001] und darin zitierte Arbeiten). Würde man das in Kapitel 2 beschriebene Experiment statt in einer 1,5 cm langen Dampfzone bei 220 °C in einer mit Quecksilberdampf gefüllten Hohlleiter durchführen, kann man bei geeigneter Wahl des Durchmessers und der Faserlänge sicherlich mit einer höheren Leistung der erzeugten Lyman- α -Strahlung rechnen. Eine Aussage über die Größenordnung des Effizienzgewinns beim VWM in der Faser zu treffen ist allerdings schwierig, da sie von vielen experimentellen Parametern wie beispielsweise der möglichen Atomdichte oder der praktisch erreichbaren Phasenanpassung abhängt.

5.2 Laserleistung und Anregungsschema

Eine möglichst hohe Leistung in den Fundamentalstrahlen ist aus zwei Gründen wünschenswert:

- Beim VWM ist die erzeugte Leistung nach Gleichung (2.15) proportional zum Produkt der Leistung der Fundamentalstrahlen.
- Ist die Leistung des Fundamentalstrahls, der zum Mischen von Niveaus verwendet wird weitaus höher, als zur Erzeugung von Transparenz benötigt wird, kann man auf starkes Fokussieren der Fundamentalstrahlen verzichten. Die Wechselwirkungszone und damit auch die Wechselwirkungszeit der Atome mit den Fundamentalstrahlen nimmt dadurch zu, so daß auch bei Atomen mit hoher Geschwindigkeit Transparenz induziert wird. Auf diesem Weg könnte beispielsweise VWM mit EIT auch in einem Atomstrahl realisiert werden.

Eine Überlegung wert ist es daher, statt des in dieser Arbeit verwendeten Anregungsschemas $6^1S \rightarrow 6^3P \leftrightarrow 7^1S$ mit den Übergangswellenlängen 254 nm und 408 nm, auf dem Übergang $6^1S \rightarrow 6^1P$ mit einer Übergangswellenlänge von 185 nm durch Kopplung von $6^1P \leftrightarrow 7^1S$ durch ein starkes Lichtfeld mit einer Wellenlänge von 1014 nm Transparenz zu erzeugen. Bei dieser Wellenlänge sind Laser mit hoher Ausgangsleistung kommerziell erhältlich, zudem finden die Übergänge in diesem Fall innerhalb des Singulett-System statt, wodurch die Dipolmatrixelemente größer sind als im vorherge-

henden Fall:

$$\begin{aligned} \text{mit } \mu &\propto \sqrt{\frac{f}{\omega}} \\ \Rightarrow \mu_{6^1S \rightarrow 6^1P} &\approx 6 \cdot \mu_{6^1S \rightarrow 6^3P} \\ \text{und } \mu_{6^1P \rightarrow 7^1S} &\approx 13 \cdot \mu_{6^3P \rightarrow 7^1S} \end{aligned}$$

Das bedeutet, daß bei gleicher Intensität des Kopplungslasers die Rabifrequenz für den Übergang $6^1P \leftrightarrow 7^1S$ eine Größenordnung größer ist als die für den Übergang $6^3P \leftrightarrow 7^1S$. Ein Mischen der Niveaus $6^1P \leftrightarrow 7^1S$ erfordert statt der in dieser Arbeit verwendeten 254 nm als ersten Fundamentalstrahl Licht mit einer Wellenlänge von 185 nm. Bei dieser Wellenlänge ist mit weniger Leistung zu rechnen als bei 254 nm möglich sind.

Das Niveausystem von Quecksilber, aufgeteilt in Singulett- und Triplettssystem, ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Wählt man nicht als Bedingung, daß der Kopplungslaser auch als Fundamentalstrahl verwendet wird, bietet das Niveausystem noch weitere Möglichkeiten, Transparenz für einen der Übergänge $6^1S \rightarrow 6^{1,3}P$ zu induzieren. Die Frequenz des Lichtfelds mit dem die Transparenz induziert wird muß auch nicht im optischen Bereich liegen: In [Wu et al., 2003] beispielsweise wurde die Transparenz für den ersten Fundamentalstrahl nicht durch einen anderen Fundamentalstrahl, sondern ein zusätzliches Lichtfeld erzeugt. Um diese Technik zur Erzeugung von kontinuierlich kohärenter Lyman- α -Strahlung gewinnbringend anzuwenden, müsste ein leistungsstarker cw Laser für die Kopplungswellenlänge erhältlich sein oder – besser *und* – das Dipolmatrixelement des Kopplungsübergangs größer sein als die der Übergänge $6^{1,3}P \leftrightarrow 7^1S$. Bei Quecksilber sehen allerdings weder Übergangswellenlängen noch Dipolmatrixelemente vielversprechend aus. Eine weitere Möglichkeit ist, die atomaren Zustände mit Mikrowellen anstatt einem Feld mit optischer Frequenz zu mischen [Kosachiov and Korsunsky, 2000]. Dafür anbieten würden sich die beiden Hyperfeinstruktur-niveaus $6^3P, F = 1/2$ und $F = 3/2$ von ^{199}Hg . Die Kopplung würde hier durch Radiofrequenz- statt Mikrowellenstrahlung, erfolgen. Das Quecksilberisotop 201 bietet sich in einem natürlichen Isotopengemisch durch geringere Häufigkeit nicht an.

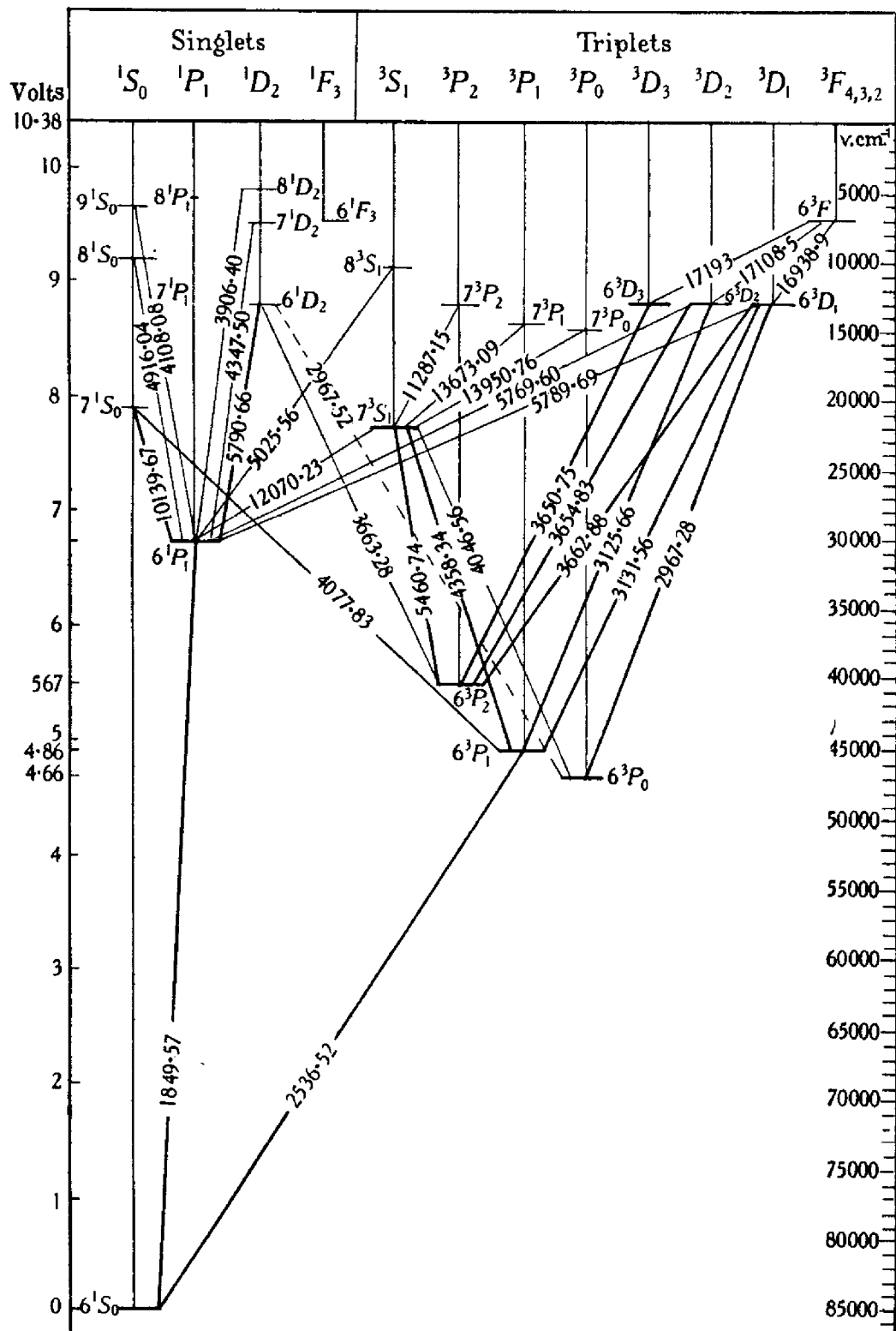


Abbildung 5.1: Niveauschema von Quecksilber aus [Mitchell and Zemansky, 1971].

5.3 Nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(3)}$

Die Rabifrequenz Ω_{23} kann aber auch zu hoch gewählt werden: Die gemischten Zustände können soweit auseinander liegen, daß $|\chi^{(3)}|$ nicht mehr resonant erhöht wird. Als Beispiel sind in Abbildung 5.2 Suszeptibilitäten eines Vier-Wellenmischprozesses in Abhängigkeit der Verstimmung δ_{12} des ersten Fundamentalstrahls abgebildet. Die Verstimmung des ersten Fundamentalstrahls δ_{12} ist auf der Abszisse aufgetragen, die des zweiten Lichtfeldes ist zur resonanten Kopplung des Niveaus $|2\rangle$ an $|3\rangle$ null, die Frequenz des dritten Fundamentalstrahl ist konstant mit einer Verstimmung $\delta_{34} \neq 0$ zum Niveau $|4\rangle$. Auf dem Übergang $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ wird mit Rabifrequenz Ω_{23} Transparenz für den ersten Fundamentalstrahl induziert. Im linken Graphen ist der Imaginärteil von $\chi^{(1)}$ (\propto Absorptionskoeffizient) des Übergangs $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$, im rechten die nichtlineare Suszeptibilität zur Summenfrequenzbildung, jeweils für verschiedene Rabifrequenzen Ω_{23} , dargestellt.

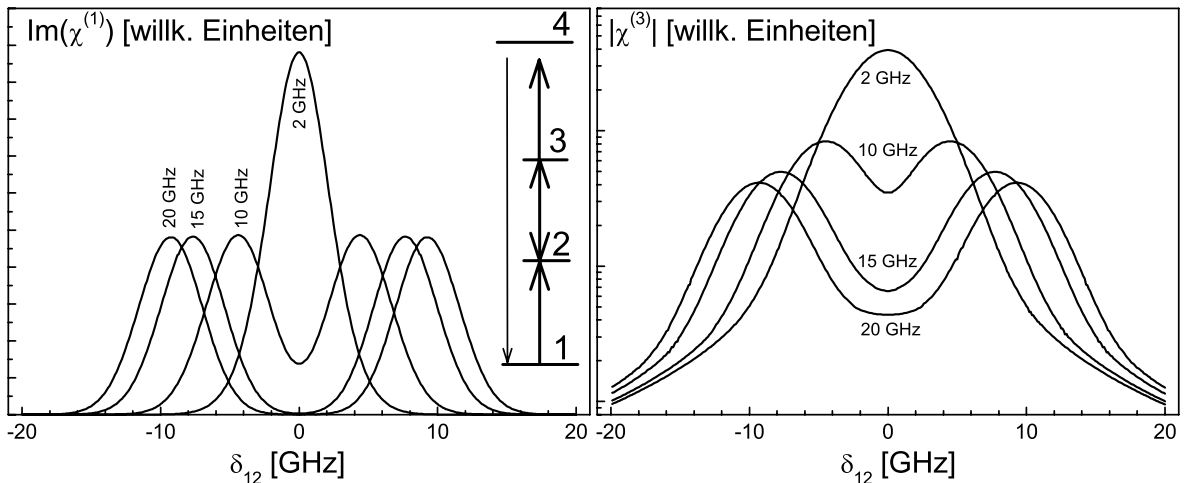


Abbildung 5.2: Links: Imaginärteil von $\chi^{(1)}$ für Übergang $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ bei verschiedenen Kopplungsstärken Ω_{23} der Niveaus $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$. Rechts: $|\chi^{(3)}|$ (logarithmische Skala) für die Summenfrequenzbildung mit resonantem Fundamentalstrahlen für den Übergang $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ in Abhängigkeit von δ_{13} und denselben Rabifrequenzen Ω_{23} wie im Bild links. Linienverbreiterungen von Quecksilber in einer Dampfzelle bei 220 °C.

Bei zunehmender Rabifrequenz Ω_{23} sieht man, daß die lineare Suszeptibilität bei $\delta_{12} = 0$ auf null zurückgeht, während die nichtlineare Suszeptibilität zwar über die gesamte Kurvenschar hinweg um vier Größenordnungen einbricht, aber auf einen von null verschiedenen Wert. Man spricht in diesem Zusammenhang von einer resonanten Überhöhung von $\chi^{(3)}$.

Welche Leistungssteigerung der für $\delta_{12} = 0$ erzeugten VUV-Strahlung würde sich für eine Erhöhung der Rabifrequenz von $\Omega_{23} = 15$ GHz auf $\Omega_{23} = 20$ GHz ergeben? In beiden Fällen ist die induzierte Transparenz ausreichend, um lineare Absorption

zu vermeiden. Die Änderung von Ω_{23} bei ansonsten gleichen Parametern bringt eine Leistungssteigerung in diesem Lichtstrahl um das 1,8-fache mit sich, die nichtlineare Suszeptibilität geht dafür aber um einen Faktor 1,5 zurück. In die Effizienz des VWMs geht $|\chi^{(3)}|$ quadratisch ein, die Leistung der Fundamentalstrahlen linear und damit ändert sich die erzeugte VUV-Leistung um $1,8/1,5^2 = 0,8$ – geht also um 20 % zurück! Anhand des Beispiels wird deutlich, daß eine möglichst große Aufspaltung der Niveaus nicht unbedingt einen Effizienzgewinn für das VWM mit sich bringt.

Die in Abbildung 5.2 gezeigten Suszeptibilitäten wurden im Vier-Niveau-System mit Dopplerverbreiterung analog zu [Harris et al., 1990] berechnet. Eine ausführliche Beschreibung dazu findet man in [Alam, 1999] oder auch in [Moseley et al., 1993], dort allerdings für die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung.

5.4 Phasen Anpassung

Der Begriff der Phasen Anpassung wurde bereits in Kapitel 2.1 angesprochen. Dort war das Ziel, im Falle von ebenen Wellen die Phasenfehl Anpassung $\Delta k = 0$ zu erhalten bzw. für fokussierte Gauß-Strahlen als Fundamentalstrahlen das Phasen Anpassungsintegral zu maximieren. Im folgenden liegt nun der Diskussionsschwerpunkt auf Möglichkeiten, mit Hilfe z. B. von induzierter Transparenz auf die Phasen Anpassung Einfluß zu nehmen und auch mit nicht optimaler Phasen Anpassung hohe Effizienz beim VWM zu erreichen. Die Diskussion beschränkt sich dabei weitgehend auf ebene Wellen als Fundamentalstrahlen.

Auch bei nicht optimaler Phasen Anpassung wird über eine bestimmte Länge des nichtlinearen Mediums der Summenfrequenzstrahl noch „phasenrichtig“ erzeugt. Diese Länge nennt man *Kohärenzlänge* L_c [Boyd, 1992]:

$$L_c = \frac{2}{\Delta k} \quad (5.1)$$

$$\Delta k = \frac{n_4}{\lambda_4} - \left(\frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2} + \frac{n_3}{\lambda_3} \right) \quad (5.2)$$

Nachdem über die Länge L_c die Leistung im Summenfrequenzstrahl zunimmt, überlagern die räumlich danach erzeugten Strahlen destruktiv, so daß die Leistung des Summenfrequenzstrahls nach L_c wieder abnimmt.

5.4.1 Maximierung der Kohärenzlänge

Nach Gleichungen (5.1) und (5.2) erreicht man die maximale Kohärenzlänge durch Anpassen der Brechungsindices an die gewählten Wellenlängen der Fundamentalstrahlen. Das kann auf verschiedenen Wegen erreicht werden: Durch Ändern des Drucks des

nichtlinearen Mediums, durch Beimischen eines zweiten Gases als sogenanntes Puffergas³ [Vidal and Cooper, 1969] oder durch Einflußnahme auf die Suszeptibilität der für das VWM relevanten Übergänge im Medium [Harris et al., 1990, Rathe et al., 1993, Fleischhauer et al., 1992]. In den vorangegangenen Kapiteln wurde gezeigt, daß eine Veränderung der Suszeptibilität in Quecksilber möglich ist. Damit kann man durch Ändern der Kopplungsstärke zwischen den Niveaus $6^3P \leftrightarrow 7^1S$ den Brechungsindex für den Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ „einstellen“ (siehe Abbildung 3.12) und so Phasenanpassung erreichen. Experimentell beobachtet wurde elektromagnetisch induzierte Phasenanpassung bei der Erzeugung von 283 nm in Bleidampf [Jain et al., 1993]. Ist die Kopplungsstärke ausreichend für eine sehr große Kohärenzlänge (bei geringer Absorption), wäre eine mit Quecksilberdampf gefüllte Hohlaser das geeignete Mittel, eine L_c entsprechende Länge des Mediums experimentell zu realisieren.

5.4.2 Vektorielle Phasenanpassung

Man kann nicht nur den Betrag, sondern auch die Richtung der Wellenvektoren zur Phasenanpassung nutzen. In der Literatur findet man solche Fälle selten, denn sie sind aus rein experimenteller Sicht durch die Justage des Winkels schwieriger als die kollineare Geometrie. Grund dafür mag sein, daß sich das Erreichen von Phasenanpassung nach [Harris et al., 1990] im stufenweisen Anstieg des Signals auswirkt, was eine „Vorjustage“ mit anschließender Optimierung des Signals stark erschwert. Ein erfolgreich realisiertes Beispiel vektorieller Phasenanpassung findet man beispielsweise in [Babin et al., 1999], wo einer der drei Fundamentalstrahlen unter einem Winkel von 10 mrad gegen die beiden anderen Fundamentalstrahlen im nichtlinearen Medium propagiert. Die Folge ist allerdings, daß von dem insgesamt 6 cm langen Medium weniger als 1 cm zur Frequenzkonversion genutzt wird.

5.4.3 Fokussierte Gauß-Strahlen

Bislang wurden die Fundamentalstrahlen mit einer kurzbrennweitigen Linse in das nichtlineare Medium fokussiert. Grund dafür ist die höhere Leistungsdichte durch die Fokussierung, die eine bessere Konversionseffizienz ergibt. Um die optischen Eigenschaften des Quecksilberdampfs jedoch genau kontrollieren zu können und Effekte wie Deformation des Strahlprofils durch räumlich variierenden Brechungsindex zu vermeiden, sind ebene Wellen von Vorteil. Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Experimenten wäre mit ebenen Wellen die Leistungsdichte der Lichtstrahlen zur Summenfrequenzbildung zu gering gewesen. In künftigen Experimenten wird es also von der Leistungsdichte der Fundamentalstrahlen abhängen, inwieweit die starke Fokussierung aufgegeben werden kann.

³In vielen Fällen führt die Verwendung eines Puffergases durch zusätzliche Druckverbreiterung zu einer Verringerung der Konversionseffizienz.

Kapitel 6

Ausblick

In dieser Arbeit wurde gezeigt, daß in Quecksilberdampf das Induzieren gemischter Zustände sowohl für die Ein- als auch die Zwei-Photonenübergang $6^1S \rightarrow 6^3P \rightarrow 7^1S$ mit kontinuierlich kohärentem Licht möglich ist. Zur Umsetzung der hierbei gewonnenen Erkenntnisse in einer verbesserten Lyman- α -Quelle wurden im vorangegangenen Kapitel bereits einige Vorschläge gemacht. Für die Zukunft des Experiments ergeben sich daraus vielfältige Möglichkeiten:

Um in Quecksilber hohe Konversionseffizienzen durch induzierte Phasenanpassung und Resonanznähe bei reduzierter Absorption zu erhalten, muß die Wechselwirkungszeit der Atome mit den Fundamentalstrahlen verlängert werden. Mit den beobachteten 8 % der Atome ist es nicht möglich, Brechungsindex und Absorptionskoeffizient in dem für VWM nötigen Maß zu kontrollieren.

Die eleganteste und zugleich technisch anspruchsvollste Lösung dieses Problems wäre der Aufbau einer magneto-optischen Falle (MOT) für Quecksilber. Dabei muß im konkreten Fall allerdings gut abgewogen werden, ob die geringe Atomdichte in einer MOT durch den Gewinn an nichtlinearer Suszeptibilität kompensiert wird.

Die weitere Möglichkeit ist das VWM im Atomstrahl mit der Ein- und Zwei-Photonenresonanz $6^1S \rightarrow 6^1P \rightarrow 7^1S$: Da für die Kopplungslaserwellenlänge von 1014 nm leistungsstarke cw Laser erhältlich sind, kann hier die nötige Wechselwirkungszeit durch einen großen Strahldurchmesser erreicht werden. Die Erzeugung von 185 nm könnte durch Summenfrequenzmischen in einem CLBO [Umemura and Kato, 1997] erfolgen.

Zur Realisierung von VWM in einer Hohlleiter mit resonanten Fundamentalstrahlen muß sichergestellt sein, daß die Rabi-Frequenz des koppelnden Lichtfeldes ausreicht, um Transparenz für den ersten Fundamentalstrahl zu erzeugen. Dazu sollte zuerst untersucht werden, welche Linienverbreiterungen sich in Abhängigkeit des Kerndurchmessers ergeben.

Bei all diesen Möglichkeiten führt der Autler-Townes-Charakter der erzeugten Aufspaltung führt dazu, daß zur signifikanten Reduktion hohe Rabifrequenzen benötigt werden. Ursache dafür ist die kurze Lebensdauer des Niveaus 7^1S . Die Konsequenz ist, daß VWM mit EIT einen Großteil seiner Vorteile gegenüber nichtresonantem Vierwellenmischen einbüßt: Wird eine hohe Rabifrequenz Ω_{23} zum Induzieren von Transparenz benötigt, nimmt der Einfluß der resonanten Überhöhung von $\chi^{(3)}$ ab und die Situation entspräche einem VWM-Schema ohne EIT, bei dem δ_{13} und δ_{23} um $\pm\Omega_{23}/2$ verstimmt wären. Das gewünschte CPT-EIT erhält man ausschließlich durch Kopplung an ein metastabiles Niveau. Dazu kommen die Zustände 6^3P_2 und 6^3P_0 in Frage, wobei der Übergang $6^3P_1 \rightarrow 6^3P_{0,2}$ allerdings nicht dipolerlaubt ist. Um die Konversionseffizienz von VWM zur Erzeugung von cw Lyman- α -Strahlung zu erhöhen, stellt die Kombination von EIT und VWM damit nicht die aussichtsreichste Lösung dar.

Eine weitere Möglichkeit, mehr Leistung im Lyman- α -Strahl zu erhalten, besteht darin, isotonenreines Quecksilber zu verwenden. Die in Kapitel 2 beschriebenen Apparatur würde allein dadurch, daß dreimal mehr Atome bei ansonsten gleichen Parametern zum VMW beitragen, eine Größenordnung mehr VUV-Strahlung produzieren. Die Verwendung von isotonenreinem Quecksilber hat allerdings keine weiteren Vorteile – auch nicht für EIT, wie in Kapitel 3 gezeigt wurde – sodaß dadurch keine Verbesserung der Konversionseffizienz über diese Größenordnung hinaus zu erwarten ist. Ein Argument gegen die Verwendung von isotonenreinem oder isotonenangereicherem Quecksilber ist jedoch der hohe Anschaffungspreis, wenn wie in der in Kapitel 2 vorgestellten Apparatur mehrere hundert Gramm zum Betrieb benötigt werden. Die Konstruktion einer miniaturisierten Dampfzelle könnte hier jedoch Abhilfe schaffen.

Eine leistungsstarke kontinuierliche Quelle kohärenter Lyman- α -Strahlung wird eine zentrale Rolle für Experimente mit Antiwasserstoff spielen. Führt man die eine oder andere der in dieser Arbeit aufgezeigten Verbesserungsmöglichkeiten durch, kann die Leistung des erzeugten Lyman- α -Lichts um einige Größenordnungen verbessert werden.

Anhang A

Zusammenstellung der wichtigsten Quecksilberdaten

Dipolmatrixelemente

Die in dieser Arbeit verwendeten Dipolmatrixelemente der Quecksilberübergänge wurden aus Oszillatorstärken [Smith and Alford, 1986], [Alford and Smith, 1987] berechnet. Die Umrechnung ist in [Hilborn, 1982] beschrieben. Es wurde berücksichtigt, daß durch Entartung von Niveaus das Absorptions- und Emissionsdipolmatrixelement ungleich sind.

Durch die Unterscheidung von Absorptions- und Emissionsmatrixelement entsteht in manchen Lehrbüchern ein Fallstrick, denn nicht überall werden die beiden Matrixelemente konsequent verwendet: In [Hilborn, 1982] und [Boyd, 1992] findet man beide, jedoch in [Loudon, 1973] – beispielsweise in Gleichung (2.138) des Kapitels 2.11 – nicht. Sind noch Polarisierungseffekte zu berücksichtigen, kann je nach Lehrbuch das Dipolmatrixelement bzw. die beiden Matrixelemente eines Dipolübergangs einen Faktor 3 größer oder kleiner werden. Eine hilfreiche Diskussion dieser Problematik findet man in [Siegman, 1986] in den Kapiteln „the factor of three“ und „the factor of 3*“.

Sättigungsintensitäten

Für den Übergang $6^1S \rightarrow 6^3P$ beträgt die Intensität, die gerade ausreicht, um 50 % der Atome anzuregen [Metcalf and van der Straten, 1999]:

$$I_s = \frac{\pi \cdot h \cdot c}{3 \cdot \lambda^3 \tau} \quad (\text{A.1})$$

$$= 10 \frac{\text{mW}}{\text{cm}^2} \quad (\text{A.2})$$

mit $\lambda = 253,7 \text{ nm}$

$$\tau = 120 \text{ ns}$$

| Isotop | δ [GHz] für $6^1S \rightarrow 6^3P$ | δ [GHz] für $6^3P \rightarrow 7^1S$ | δ [GHz] für $6^1S \rightarrow 7^1S$ | Häufigkeit [%] |
|-----------|---|---|---|-------------------|
| 202 | 0 | 0 | 0 | 29,863 |
| 200 | 5,3 | -0,93 | 4,37 | 23,096 |
| 198 | 10,20 | -1,78 | 8,42 | 9,968 |
| 196 | 14,32 | -2,40 | 11,92 | 0,15 |
| 204 | -5,10 | 0,92 | -4,12 | 6,74 |
| 199 F=1/2 | -5,29 | 13,1 | 7,81 | 5,78 |
| 199 F=3/2 | 16,28 | -9,02 | 7,26 | 11,56 |
| 201 F=1/2 | 17,06 | -13,94 | 3,12 | 1,93 |
| 201 F=3/2 | 9,61 | -6,38 | 3,23 | 4,82 |
| 201 F=5/2 | -4,51 | 7,55 | 3,04 | 5,78 |

Tabelle A.1: Hg-Daten für Häufigkeit $6^1S \rightarrow 6^3P$ von [Wallenstein and Hänsch, 1976] und für $6^3P \rightarrow 7^1S$ von [Murakawa, 1959]

| Übergang | Oszillatorstärke | Zerfallsrate $1/\tau$ |
|-------------------------|------------------|-----------------------|
| $6^3P \rightarrow 6^1S$ | 0,024 | 8,547 MHz |
| $7^1S \rightarrow 6^3P$ | 0,00357 | 4,1935 MHz |
| $6^1P \rightarrow 7^1P$ | 0,15 | 27,885 MHz |
| $6^1P \rightarrow 6^1S$ | 1,15 | 0,6 – 3 GHz |

Tabelle A.2: Oszillatorstärken von [Smith and Alford, 1986] und [Alford and Smith, 1987], für $6^1P \rightarrow 6^1S$ aus [Mitchell and Zemansky, 1971].

und für den Übergang $6^3P \rightarrow 7^1S$:

$$\begin{aligned}
 I_s &= 77 \frac{\text{mW}}{\text{cm}^2} & (\text{A.3}) \\
 \text{mit } \lambda &= 407,8 \text{ nm} \\
 \tau &= \frac{1}{0,13} 31,2 \text{ ns} = 240 \text{ ns}
 \end{aligned}$$

Überlegungen zu den Zeitkonstanten Kapitel 3.4

Die verschiedenen Zerfallsraten von Kohärenzen und Populationen wurden in Kapitel 3.4 auf drei Zeitkonstanten reduziert. Die Lebensdauern der Niveaus 6^3P und 7^1S sind in Tabelle A.2 aufgelistet. Daraus erhält man folgende Zerfallsraten Γ_{ij} der Kohärenzen ρ_{ij}

$$\Gamma_{13} = \frac{1}{2}(\Gamma_{11} + \Gamma_{33}) = \frac{1}{2 \cdot T_{6^3P}} = \frac{1}{2 \cdot 120 \text{ ns}} = 4,17 \text{ MHz} \quad (\text{A.4})$$

$$\Gamma_{23}^{(A)} = \frac{1}{2}(\Gamma_{22}^{\text{ges}} + \Gamma_{33}) = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{31,2 \text{ ns}} + \frac{1}{120 \text{ ns}} \right) = \frac{1}{50 \text{ ns}} \quad (\text{A.5})$$

$$\Gamma_{23}^{(B)} = \frac{1}{2}(\Gamma_{22}^{6^3P \rightarrow 7^1S} + \Gamma_{33}) = \frac{1}{2} \left(\frac{0,13}{31,2 \text{ ns}} + \frac{1}{120 \text{ ns}} \right) = \frac{1}{160 \text{ ns}} \quad (\text{A.6})$$

$$\begin{aligned}
 \Gamma_{12} &= \frac{1}{2} \Gamma_{22}^{\text{ges}} = \frac{1}{2 \cdot 31,2 \text{ ns}} = \frac{1}{62,4 \text{ ns}} \\
 &= \frac{1}{2} \Gamma_{22}^{7^1S \rightarrow 6^1S} = \frac{0,87}{2 \cdot 31,2 \text{ ns}} = \frac{1}{71,7 \text{ ns}}
 \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

Damit ergeben sich folgende Intervalle:

$$\tau_2 \in [62 \text{ ns}, 72 \text{ ns}]$$

$$T_2 \in [50 \text{ ns}, 240 \text{ ns}]$$

$$T_1 \in [30 \text{ ns}, 120 \text{ ns}]$$

Anhang B

Mathematica Programme

Im folgenden sind die Mathematica-Notebooks abgebildet, die zur Erstellung der Graphen in Kapitel 3 und zur Wiedergabe der Messungen in Kapitel 4 verwendet wurden.

Für Abbildungen 3.2 und 3.3

```
(* OBE 2-Niveau-System mit Dämpfung *)
ClearAll["*"]
<< Algebra`ReIm`

(* Frequenzen in Hz *)
(* Hg198 *)
Hg198DetCP = 10.20*10^9; (* 6.1.5.e+3 P *)
Hg198DetCS = 8.42*10^9; (* 6.3.P+7^1.S *)
Hg198 = 0.09968; (* Häufigkeit des Isotops *)

(* Hg200, Hg202, Hg204, Hg199, Hg201 ebenso *)
omegal /: Im[omegal] = 0;
omegal2 /: Im[omegal2] = 0;
omegal /: Im[omegal] = 0;
omegal2 /: Im[omegal2] = 0;
gamma /: Im[gamma] = 0;
delta /: Im[delta] = 0;
hb /: Im[hb] = 0;
t /: Im[t] = 0;

rho = {{rho11, rho12}, {rho21, rho22}};
h11 = hb * omegal;
h22 = hb * omegal2;
h21 = -hb/2 * omegal2 * Exp[-I * (omegal) * t];
h12 = Conjugate[h21];
h = {{h11, h12}, {h21, h22}};
g = {{+gamma * rho22, -1/2 * gamma * rho12}, {-1/2 * gamma * rho21, -gamma * rho22}};
rhoPkt = -I/hb * (h.rho - rho.h) + g;

(***)SVA(***)
(* Variablentransformation: rho12_neu -> rho12*Exp[I*omegal*t] *)
rho21_neu -> rho21*Exp[-I*omegal*t] *)

g111 =
g111 /. {rho12 -> (rho12 * Exp[I * omegal * t]), rho21 -> (rho21 * Exp[-I * omegal * t])};
g112 = g112 /. {rho12 -> (rho12 * Exp[I * omegal * t]),
rho21 -> (rho21 * Exp[-I * omegal * t])};
g121 = g121 /. {rho12 -> (rho12 * Exp[I * omegal * t]),
rho21 -> (rho21 * Exp[-I * omegal * t])};
g122 = g122 /. {rho12 -> (rho12 * Exp[I * omegal * t]),
rho21 -> (rho21 * Exp[-I * omegal * t])};

g111 = FullSimplify[g111]; g112 = FullSimplify[g112];
g121 = FullSimplify[g121]; g122 = FullSimplify[g122];
```

```

g112 = g112 /.
  rhopk12 -> (rhopk12 * Exp[I * omegaL * t] + rho12 * (1 + omegaL) * Exp[I * omegaL * t]);
* g121 = g121 /. rhopk21 -> (rhopk21 * Exp[-I * omegaL * t] +
  rho21 * (-1 + omegaL) * Exp[-I * omegaL * t]);
a1 = Solve[g112, rhopk12];
a2 = Solve[g121, rhopk21];
g111 = g111 /. rhopk11 -> 0;
g112 = 0 == rhopk12;
g112 = g112 /. a1[[1]];
g121 = 0 == rhopk21;
g121 = g121 /. a2[[1]];
g122 = g122 /. rhopk22 -> 0;
g111 = g111 /. rho11 -> (1 - rho22); g112 = g112 /. rho11 -> (1 - rho22);
g121 = g121 /. rho11 -> (1 - rho22); g122 = g122 /. rho11 -> (1 - rho22);
(* ***** *)
Isg = Solve[{g112, g121, g122}, {rho12, rho21, rho22}];
rho12 = rho12 /. Isg[[1]][[1]];
rho21 = rho21 /. Isg[[1]][[2]];
rho22 = rho22 /. Isg[[1]][[3]];
rho12 = FullSimplify[rho12];
rho21 = FullSimplify[rho21];
rho22 = FullSimplify[rho22];
rho11 = 1 - rho22;
(* Absorption und Dispersion *)
Imch11 = 1/omega12 * Normal[Series[-Im[rho12], {omega12, 0, 1}]]
rech11 = 1/omega12 * Normal[Series[Re[rho12], {omega12, 0, 1}]]
Imch11 = FullSimplify[Imch11]
rech11 = FullSimplify[rech11]
(* Doppelverbreiterung *)
dabs = Imch11 /. {omega1 - omega2 -> omegaL, omega2 -> delta}
disp = rech11 /. {omega1 - omega2 -> omegaL, omega2 -> delta}
(* die Frequenzen sind allesamt KREISfrequenzen *)
dabs = dabs /. {gamma -> 2 * Pi * gamma, delta -> 2 * Pi * delta};
disp = disp /. {gamma -> 2 * Pi * gamma, delta -> 2 * Pi * delta};
dabs = dabs /. delta -> (delta + v/c * (omega2 + delta));
disp = disp /. delta -> (delta + v/c * (omega2 + delta));
dabs = dabs /. {omega1 + 0, omega2 + (c/(253.7 * 10^(-9)))};
dabs = dabs /. c -> (2.9979 * 10^8);
disp = disp /. {omega1 + 0, omega2 + (c/(253.7 * 10^(-9)))};
disp = disp /. c -> (2.9979 * 10^8);

```

```

verteilung = Exp[-(v/v0)^2] / (Sqrt[Pi] * v0) /. v0 -> 157;
(* 157 für 300 K, 200 für 220 °C *)
dabs = ExpandAll[dabs * verteilung] /. {gamma -> (1/(120 * 10^(-9)) + stossvb);
disp = ExpandAll[disp * verteilung] /. {gamma -> (1/(120 * 10^(-9)) + stossvb)};
dabs = dabs /. stossvb -> 0 * 10^9; (* Stoßverbreiterung *)
disp = disp /. stossvb -> 0 * 10^9;
n = 4.8 * 10^19;
(* 4.8 * 10^19 pro m^3 bei RT, 8.79 * 10^23 bei 220 °C im Isotopengemisch *)
nu = 8.7 * 10^(-31);
eps0 = 8.8542 * 10^(-12);
hquer = 1.0546 * 10^(-34);
vorfaktor = n * 3 * nu^2 / (eps0 * hquer);
dabs = vorfaktor * dabs;
disp = vorfaktor * disp;
(* ch11 hat also ab hier die richtigen Einheiten *)
(* nun wird dabs zum Absorptionskoeffizienten *)
dabs = dabs * 2 * Pi * (2 * Pi / (253.7 * 10^(-9)));
dabs198 = dabs * hf198 /. delta -> (delta - hf198Def);
disp198 = disp * hf198 /. delta -> (delta - hf198Def);
(* ebenso alle anderen Isotope *)
(* Absorption *)
Fknt[delta_] := NIntegrate[dabs198, {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion -> 10] + ...];
(* Dispersion *)
Fknt[delta_] := NIntegrate[disp198, {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion -> 10] + ...];
(* Berechnung von Dispersion / Brechungsindex *)
(* n^4 - (1 + rech1)/2 * n^2 - 1/4 Imch1^2 = 0 *)
brechindex[delta_] := 2 * Pi * Fknt[delta]
absteb = Table[{delta, Fknt[delta],
  Evaluate[NIntegrate[dabs198, {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion -> 10]],
  Evaluate[NIntegrate[dabs200, {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion -> 10]], ...},
{delta, -10 * 10^9, 23 * 10^9, 1 * 10^8}];
disteb = Table[{delta, brechindex[delta],
  Evaluate[NIntegrate[disp198, {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion -> 10]],
  Evaluate[NIntegrate[disp200, {v, -800, 0, 800}, MaxRecursion -> 10]], ...},
{delta, -15 * 10^9, 28 * 10^9, 1 * 10^8}];
Export["C:\VVAbsorption27C.dat", absteb]
Export["C:\VVAbsorption27C.dat", disteb]

```

Für Abbildung 3.12

```
(* OBE 3-Niveau-Leiter-System mit Dämpfung *)
ClearAll["*"]
<< Algebra`ReIm`
t /: Im[t] = 0;
hb /: Im[hb] = 0;
omegal1 /: Im[omegal1] = 0;
omegal2 /: Im[omegal2] = 0;
omegal3 /: Im[omegal3] = 0;
omegal13 /: Im[omegal13] = 0;
omegal23 /: Im[omegal23] = 0;
omegal11 /: Im[omegal11] = 0;
omegal12 /: Im[omegal12] = 0;
gamma2 /: Im[gamma2] = 0;
gamma3 /: Im[gamma3] = 0;

h11 = hb*omegal1;
h12 = 0;
h13 = -hb/2*omegal3*Exp[I*omegal1*t];
h21 = 0;
h22 = hb*omegal2;
h23 = -hb/2*omegal3*Exp[I*omegal2*t];
h31 = Conjugate[h13];
h32 = Conjugate[h23];
h33 = hb*omegal3;

h = {{h11, h12, h13}, {h21, h22, h23}, {h31, h32, h33}};
rho = {{rho11, rho12, rho13}, {rho21, rho22, rho23}, {rho31, rho32, rho33}};

(* verwendete statc Dämpfung =
gamma.rho + rho-gamma leichter zu durchschauende Variante einer Dämpfungsmatrix,
die zur RHS der Lösvillie-G1. addiert wird *)
g11 = + gamma3*rho33;
g22 = -gamma2*rho22;
g33 = -gamma3*rho33 + gamma2*rho22;
g12 = -1/2*gamma2*rho12;
g21 = -1/2*gamma2*rho21;
g13 = -1/2*gamma3*rho13;
g31 = -1/2*gamma3*rho31;
g23 = -1/2*(gamma2 + gamma3)*rho23;
g32 = -1/2*(gamma2 + gamma3)*rho32;

gamma = {g11, g12, g13}, {g21, g22, g23}, {g31, g32, g33}};
rhoptc = -I/hb*(h.rho - rho.h) + gamma;
rhoptc // MatrixForm
```

Ch3-Niveausystem.nb

1

```
g111 = rhoptc11 == rhoptc[[1]][[1]];
g112 = rhoptc12 == rhoptc[[1]][[2]];
g113 = rhoptc13 == rhoptc[[1]][[3]];
g121 = rhoptc21 == rhoptc[[2]][[1]];
g122 = rhoptc22 == rhoptc[[2]][[2]];
g123 = rhoptc23 == rhoptc[[2]][[3]];
g131 = rhoptc31 == rhoptc[[3]][[1]];
g132 = rhoptc32 == rhoptc[[3]][[2]];
g133 = rhoptc33 == rhoptc[[3]][[3]];

g121 = NullSimplify[g121]
g122 = NullSimplify[g122]
g123 = NullSimplify[g123]

(* Näherungen: Population anfänglich im Grundzustand *)
(* → rho11 = 1, rho22 = rho33 = rho23 = 0 *)
(* Begründung für rho23: rho23 = hb3*,
da rho33*hb3*0 und rho22*hb2*0 folgt Behauptung *)
g131a = g131 / (rho11 + 1, rho22 + 0, rho33 + 0, rho23 + 0)
g121a = g121 / (rho11 + 1, rho22 + 0, rho33 + 0, rho23 + 0)
g132a = g132 / (rho11 + 1, rho22 + 0, rho33 + 0, rho23 + 0)

g131b = Solve[g131a, rhoptc31]
g121b = Solve[g121a, rhoptc21]
g132b = Solve[g132a, rhoptc32]

g131c = rhopt31c == rhoptc31;
g121c = rhopt21c == rhoptc21;
g132c = rhopt32c == rhoptc32;
g133d = g133c / (g131b[[1]][[1]]
g123d = g123c / (g121b[[1]][[1]]
g132d = g132c / (g132b[[1]][[1]]

g131e = ExpandAll[g131d]
g121e = ExpandAll[g121d]
g132e = ExpandAll[g132d]

g131f = g131e /. {rho31 → rho31*Exp[-I*omegal1*t],
rho31bpc → (rho31bpc*Exp[-I*omegal1*t] + rho31*(-I*omegal1)*t
g121f = g121e /. {rho31 → rho31*Exp[-I*omegal1*t]}
g132f = g132e

g131g = g131f /. {rho21 → rho21*Exp[I*(-omegal1 + omegal2)*t],
g121g = g121f /. {rho21 → rho21*Exp[I*(-omegal1 + omegal2)*t],
rho21bpc → (rho21bpc*Exp[I*(-omegal1 + omegal2)*t] +
rho21*(I*(-omegal1 + omegal2)) * Exp[I*(-omegal1 + omegal2)*t])}
g132g = g132f /. {rho21 → rho21*Exp[I*(-omegal1 + omegal2)*t]}

g131h = Solve[g131g, rho31bpc]
g121h = Solve[g121g, rho21bpc]
g132h = Solve[g132g, rho32bpc]
```

Ch3-Niveausystem.nb

2

```
(* rho31 und rho21 ohne rho22 lösbar *)
g1311 = 0 == rho31pkT;
g1211 = 0 == rho21pkT;
g131j = g1311 /. g131h[[1]][[1]]
g121j = g1211 /. g121h[[1]][[1]]
g131k = FullSimplify[g131j]
g121k = FullSimplify[g121j]
Isq = Solve[{g131k, g121k}, {rho31, rho21}]

rho31 = rho31 /. Isq[[1]]
rho21 = rho21 /. Isq[[1]]

rho31 = FullSimplify[rho31]
rho21 = FullSimplify[rho21]

rho31 = FullSimplify[rho31/omega13]
rho21 = Re[rho31]

(* Parameter für Hg einsetzen, Frequenzen - nicht Kreisfrequenzen *)
Imrho31 = Imrho31 /. {omega1 → 0, omega2 → (omega2 + Iso7s), omega3 → (omega3 + Iso6p)}
Rerho31 = Rerho31 /. {omega1 → 0, omega2 → (omega2 + Iso7s), omega3 → (omega3 + Iso6p)}
Imrho31 = Imrho31 /. {omega12 → (-omega2 + omega3 + delta) * (1 + v/c)}
Rerho31 = Rerho31 /. {omega12 → (omega3 + delta) * (1 + v/c)}
Imrho31 = Imrho31 /. {omega1 → (omega3 + delta) * (1 + v/c)}
Rerho31 = Rerho31 /. {omega1 → (omega3 + delta) * (1 + v/c)}
Imrho31 = Imrho31 /. {omega2 → (omega3 + 2 * Pi * c / (408.7 * 10^(-9)))};
Rerho31 = Rerho31 /. {omega2 → (omega3 + 2 * Pi * c / (408.7 * 10^(-9)))};
Imrho31 = Imrho31 /. {gamma2 → (2 * Pi * 4.2 * 10^6),
  gamma3 → (2 * Pi * 8.3 * 10^6), omega3 → (2 * Pi * c / (253.7 * 10^(-9)))};
Rerho31 = Rerho31 /. {gamma2 → (2 * Pi * 4.2 * 10^6), gamma3 → (2 * Pi * 8.3 * 10^6),
  omega3 → (2 * Pi * c / (253.7 * 10^(-9)))};
Imrho31 = Imrho31 /. {c → (2.9979 * 10^8), omega23 → (2 * Pi * omega23),
  omega13 → (2 * Pi * omega13)};
Rerho31 = Rerho31 /. {c → (2.9979 * 10^8), omega23 → (2 * Pi * omega23),
  omega13 → (2 * Pi * omega13)};
Imrho31 = Imrho31 /. {Iso7s → (2 * Pi * Iso7s), Iso6p → (2 * Pi * Iso6p),
  delta → (2 * Pi * delta)};
Rerho31 = Rerho31 /. {Iso7s → (2 * Pi * Iso7s),
  Iso6p → (2 * Pi * Iso6p), delta → (2 * Pi * delta)}
```

```
(* Doppelverbreiterung & Vorfaktoren *)
n = 4.8 * 10^19;
mu = 8.7 * 10^(-31);
eps0 = 8.8542 * 10^(-12);
hquer = 1.0546 * 10^(-34);
faktor = 3 * n * mu^2 / (eps0 * hquer);
alphaFak = 2 * Pi * (2 * Pi / (253.7 * 10^(-9)))};
Imrho31dopp =
  alphaFak * faktor * Imrho31 * 1 / (Sqrt[Pi] * v0) * Exp[-(v/v0)^2] * omega13 /. v0 → 157;
dispFak = 2 * Pi;
rerho31dopp =
  dispFak * faktor * rerho31 * 1 / (Sqrt[Pi] * v0) * Exp[-(v/v0)^2] /. v0 → 157;
Print[delta_] :=
  NIntegrate[Evaluate[Imrho31dopp /. {omega23 → 0, Iso7s → 10^9, Iso6p → 10^9}],
  {v, -500, 0, 500}, MaxRecursion → 10]
Fdiisp[delta_] := NIntegrate[
  Evaluate[rerho31dopp /. {omega23 → 0, Iso7s → 10^9, Iso6p → 10^9}],
  {v, -500, 0, 500}, MaxRecursion → 10]
Abe202[delta, omega23_] :=
  0.29863 * NIntegrate[Evaluate[Imrho31dopp /. {Iso7s → 0, Iso6p → 0}],
  {v, -500, 0, 500}, MaxRecursion → 10]
(* ebenso für alle anderen Isotope *)
Disp202[delta, omega23_] :=
  0.29863 * NIntegrate[Evaluate[rerho31dopp /. {Iso7s → 0, Iso6p → 0}],
  {v, -500, 0, 500}, MaxRecursion → 10]
(* ebenso für alle anderen Isotope *)
abstabs =
  Table[{delta, Abs196[delta, omega23 = 0], Abs198[delta, omega23 = 0], Abs200[
    delta, omega23 = 0], Abs202[delta, omega23 = 0], Abs204[delta, omega23 = 0],
    Abs19912[delta, omega23 = 0], Abs19932[delta, omega23 = 0],
    Abs201R12[delta, omega23 = 0], Abs201R32[delta, omega23 = 0],
    Abs201F52[delta, omega23 = 0]}, {delta, -10 * 10^9, 23 * 10^9, 10^8}];
dlistab = Table[{delta, Disp196[delta, omega23 = 0], Disp198[delta, omega23 = 0],
  Disp200[delta, omega23 = 0], Disp202[delta, omega23 = 0],
  Disp204[delta, omega23 = 0], Disp199R12[delta, omega23 = 0],
  Disp199R32[delta, omega23 = 0], Disp201R12[delta, omega23 = 0],
  Disp201R32[delta, omega23 = 0], Disp201F52[delta, omega23 = 0]},
  {delta, -10 * 10^9, 23 * 10^9, 1 * 10^8}];
Export["C:\VERTDispersions0GHZ.dat", abstabs];
Export["C:\VERTDispersions0GHZ.dat", dlistab];
Clear[abstabs]
Clear[dlistab]
(* selbes für weitere Bestimmungen *)
```

Rechnung zu Kapitel 3.4

2pa Dichtematrix M.nb

```
(* Element M nach Gl. 35 b im PRAVoll1p1641 (1975) *)
(* also mit Lebensdauern T1, T2 und tau2 *)
ClearAll["*"]
<< Algebra`ReIm`
rea /: Im[rea] = 0;
ima /: Im[ima] = 0;
reb /: Im[reb] = 0;
imb /: Im[imb] = 0;
ree /: Im[ree] = 0;
ime /: Im[ime] = 0;

Delta13 /: Im[Delta13] = 0;
Delta23 /: Im[Delta23] = 0;

alpha /: Im[alpha] = 0;
beta /: Im[beta] = 0;

T2 /: Im[T2] = 0;

M1 = (rea - I ima) (reb - I imb) (ree + I ime)
M2 = (rea + I ima) (reb + I imb) (ree - I ime)
M3 = -(2 alpha^2 / T2) / (Delta13^2 + 1 / T2^2)
M4 = (2 beta^2 / T2) / (Delta23^2 + 1 / T2^2)

imM1 = Im[M1]
imM2 = Im[M2]
imM3 = Im[M3]
imM4 = Im[M4]

FullSimplify[imM1 + imM2]

reM1 = Re[M1]
reM2 = Re[M2]
reM3 = Re[M3]
reM4 = Re[M4]

M = reM1 + reM2 + reM3 + reM4
```

2pa Dichtematrix D.nb

```
ClearAll["*"]
<< Algebra`ReIm`
rea /: Im[rea] = 0;
ima /: Im[ima] = 0;
ree /: Im[ree] = 0;
ime /: Im[ime] = 0;

Delta13 /: Im[Delta13] = 0;
Delta23 /: Im[Delta23] = 0;

alpha /: Im[alpha] = 0;
beta /: Im[beta] = 0;

T2 /: Im[T2] = 0;
T1 /: Im[T1] = 0;

D1 = -(D11 + D12)
D11 = (2 alpha^2 / T2) / (Delta13^2 + 1 / T2^2)
D12 = 1 / T1

D2 = ((rea - I ima) (ree + I ime)) / (Delta13 + I / T2)
D3 = ((rea + I ima) (ree - I ime)) / (Delta13 - I / T2)

reD1 = Re[D1]
reD2 = Re[D2]
reD3 = Re[D3]

imD1 = Im[D1]
imD2 = Im[D2]
imD3 = Im[D3]

reDd = FullSimplify[reD1 + reD2 + reD3]
imDd = FullSimplify[imD1 + imD2 + imD3]
```

2pa Dichtematrix Q.nb

```
ClearAll["*"]
<< Algebra`ReIm`
rea /: Im[rea] = 0;
ima /: Im[ima] = 0;
reb /: Im[reb] = 0;
imb /: Im[imb] = 0;
rej /: Im[rej] = 0;
imj /: Im[imj] = 0;

Delta13 /: Im[Delta13] = 0;
Delta23 /: Im[Delta23] = 0;

alpha /: Im[alpha] = 0;
beta /: Im[beta] = 0;

T2 /: Im[T2] = 0;
T1 /: Im[T1] = 0;

Q1 = (rea - I ima) (reb - I imb) (rej + I imj)
Q2 = (rea + I ima) (reb + I imb) (rej - I imj)
Q3 = -(Q31 + Q32 + Q33)
Q31 = (2 alpha^2 / T2) / (Delta13^2 + 1 / T2^2)
Q32 = (4 beta^2 / T2) / (Delta23^2 + 1 / T2^2)
Q33 = 1 / T1

reQ1 = Re[Q1]
reQ2 = Re[Q2]
reQ3 = Re[Q3]

imQ1 = Im[Q1]
imQ2 = Im[Q2]
imQ3 = Im[Q3]

imQ = FullSimplify[imQ1 + imQ2 + imQ3]
reQ = FullSimplify[reQ1 + reQ2 + reQ3]
```

2pa Dichtematrix P.nb

```
ClearAll["*"]
<< Algebra`ReIm`
rea /: Im[rea] = 0;
ima /: Im[ima] = 0;
rej /: Im[rej] = 0;
imj /: Im[imj] = 0;

Delta13 /: Im[Delta13] = 0;
Delta23 /: Im[Delta23] = 0;

alpha /: Im[alpha] = 0;
beta /: Im[beta] = 0;

T2 /: Im[T2] = 0;

P1 = -(2 alpha^2 / T2) / (Delta13^2 + 1 / T2^2)
P2 = ((rea - I ima) (rej + I imj)) / (Delta13 + I / T2)
P3 = ((rea + I ima) (rej - I imj)) / (Delta13 - I / T2)

reP1 = Re[P1]
reP2 = Re[P2]
reP3 = Re[P3]

imP1 = Im[P1]
imP2 = Im[P2]
imP3 = Im[P3]

reP = FullSimplify[reP1 + reP2 + reP3]
imP = FullSimplify[imP1 + imP2 + imP3]
```

Die Aufteilung wurde vorgenommen, da die algebraische Behandlung komplexer Zahlen mit Mathematica sehr viel Rechenzeit benötigt und auf diesem Wege nur einmal erfolgen muß. Man erhält mit M , Q , D und P die Populationsdifferenzen:

```

ClearAll["*"]
<< Algebra Kern
pd13 = pd12 + pd23
pd23 = -P/(r1*(M*P - Dd*Q))
pd12 = Q/(r1*(M*P - Dd*Q))
alpha /: Im[alpha] = 0;
beta /: Im[beta] = 0;
Delta13 /: Im[Delta13] = 0;
Delta23 /: Im[Delta23] = 0;
r1 /: Im[r1] = 0;
r2 /: Im[r2] = 0;
tau2 /: Im[tau2] = 0;
a = alpha*beta/(Delta13+Delta23-I/r2) -
alpha*2/(Delta23-I/r2) - beta*2/(Delta13-I/r2)
acc = Conjugate[a]
rea = Re[a]
ima = Im[a]

e = I*alpha*beta*(-1/(Delta13+I/r2)+1/(Delta23+I/r2))
ecc = Conjugate[e]
ree = Re[e]
ime = Im[e]

b = 1/(Delta13-I/r2)+1/(Delta23-I/r2)
bcc = Conjugate[b]
reb = Re[b]
imb = Im[b]

j = -I*alpha*beta*(2/(Delta23+I/r2)+1/(Delta13+I/r2))
jcc = Conjugate[j]
imj = Im[j]
rej = Re[j]

(* aus: 2 pa Dichtematrix M.nb, M reell *)
M = 2*Im[ime*rea+2*Ima*ime*reb-2*Ima*imb*ree+
2*rea*reb*ree - (Delta13^2 + 1/r2^2)/r2 + (Delta23^2 + 1/r2^2)/r2];

(* aus: 2 pa Dichtematrix Q.nb, Q reell *)
Q = 2*Imb*Imj*rea+2*Ima*Imj*reb-2*Ima*imb*rej+
2*rea*reb*rej - 1/r1 - 2*alpha^2*r2 - 4*beta^2*r2 -
2*rea*reb*rej - 1/r1 - 1+Delta13^2*r2^2 - 1+Delta23^2*r2^2];

(* aus: 2 pa Dichtematrix D.nb, D reell *)
Dd = (-1-2*(alpha^2-Ima*rea+Ima*ree)r1*r2+
Delta13*(-Delta13+2*(Ima*ime+rea*ree)r1*r2^2)/(r1+Delta13^2*r1*r2^2));

(* aus: 2 pa Dichtematrix P.nb, P reell *)
P = (2*r2*(-alpha^2-Ima*rej+Delta13*rea*rej*r2+Imj*(rea+Delta13*Ima*r2)))/(
1+Delta13^2*r2^2);

pd23 = FullSimplify[pd23]
pd12 = FullSimplify[pd12]
pd13 = FullSimplify[pd13]

```

Aus den Populationsdifferenzen kann man wiederum mit den Gleichungen (3.43), (3.44) und (3.45) die Populationen, mit Gleichungen (3.54), (3.55) und (3.56) die Kohärenzen berechnen. Die numerische Berücksichtigung der Dopplerverbreiterung ist nicht abgebildet, da sie aus der vorherigen Rechnung übernommen werden kann.

Literaturverzeichnis

- [Alam, 1999] Alam, S. (1999). *Lasers without Inversion and Electromagnetically Induced Transparency*. SPIE Optical Engineering Press.
- [Alford and Smith, 1987] Alford, W. J. and Smith, A. V. (1987). Measured third-order susceptibility and excited-state oscillator strengths for atomic mercury. *Physical Review A*, 36(2):641–648.
- [Alnis et al., 2000] Alnis, J., Gustafsson, U., Somesfalean, G., and Svanberg, S. (2000). Sum-frequency generation with a blue diode laser for mercury spectroscopy at 254 nm. *Applied Physics Letters*, 76(10):1234–1236.
- [Alzetta et al., 1976] Alzetta, G., Gozzini, A., Moi, L., and Orriols, G. (1976). Experimental-Method for Observation of RF Transitions and Laser Beat Resonances in oriented Na Vapor. *Nuovo Cimento Della Societa Italiana Di Fisica B*, 36:5–20.
- [Amoretti et al., 2002] Amoretti, M., Amsler, C., Bonomi, G., Bouchta, A., Bowe, P., Carraro, C., Cesar, C. L., Charlton, M., Collier, M. J. T., Doser, M., Filippini, V., Fine, K. S., Fontana, A., Fujiwara, M. C., Funakoshi, R., Genova, P., Hangst, J. S., Hayano, R. S., Holzscheiter, M. H., Jorgensen, L. V., Lagomarsino, V., Landua, R., Lindelof, D., Rizzini, E. L., Macri, M., Madsen, N., Manuzio, G., Marchesotti, M., Montagna, P., Pruys, H., Regenfus, C., Riedler, P., Rochet, J., Rotondi, A., Rouleau, G., Testera, G., Variola, A., Watson, T. L., and van der Werf, D. P. (2002). Production and detection of cold antihydrogen atoms. *Nature*, 419:456–459.
- [Autler and Townes, 1955] Autler, S. H. and Townes, C. H. (1955). Stark Effect in Rapidly Varying Fields. *Physical Review*, 100(2):703–722.
- [Babin et al., 2001] Babin, S. A., Kablukov, S. I., Hinze, U., Tiemann, E., and Wellegehausen, B. (2001). Level-splitting effects in resonant four-wave mixing. *Optics Letters*, 26(2):81–83.
- [Babin et al., 1999] Babin, S. A., Podivilov, E. V., Shapiro, D. A., Hinze, U., Tiemann, E., and Wellegehausen, B. (1999). Effects of strong driving fields in resonant four-wave mixing schemes with down-conversion. *Physical Review A*, 59(2):1355–1366.
- [Baur et al., 1996] Baur, G., Boero, G., Brauksiepe, S., Buzzo, A., Eyrich, W., Geyer, R., Grzonka, D., Hauffe, J., Kilian, K., LoVetere, M., Macri, M., Moosburger, M., Nellen, R., Oelert, W., Passaggio, S., Pozzo, A., Rohrich, K., Sachs, K., Schepers, G., Sefzick, T., Simon, R. S., Stratmann, R., Stinzinger, F., and Wolke, M. (1996). Production of antihydrogen. *Physical Letters B*, 368(3):251–258.

- [Benck et al., 1989] Benck, E. C., Lawler, J. E., and Dakin, J. T. (1989). Lifetimes, branching ratios, and absolute transition probabilities in Hg I. *Journal of the Optical Society of America B*, 6(1):11–22.
- [Berman and Saloman, 1982] Berman, P. R. and Saloman, R. (1982). Comparison between dressed-atom and bare-atom in laser spectroscopy. *Physical Review A*, 25(5):2667.
- [Bloembergen and Levenson, 1976] Bloembergen and Levenson (1976). *Topics in Laser Spectroscopy*, volume 13, chapter Doppler-Free Two-Photon Absorption Spectroscopy, pages 315–369. Springer-Verlag. Bemerkungen: (1) Druckfehler: In Gleichung 8.32c muß $+i/T_2$ durch $-i/T_2$ ersetzt werden und in Gleichung 8.33f ist im ersten Nenner $\Delta^2 + i/T_2$ durch $\Delta^2 + 1/T_2$ zu ersetzen. (2) Rabifrequenzen in dieser Referenz sind per Def. um einen Faktor 2 größer als in der vorliegenden Arbeit.
- [Bluhm et al., 1999] Bluhm, R., Kosteletzky, V. A., and Russell, N. (1999). Cpt and lorentz tests in hydrogen and antihydrogen. *Physical Review Letters*, 82:2254.
- [Boller et al., 1991] Boller, K.-J., Imamoglu, A., and Harris, S. E. (1991). Observation of Electromagnetically Induced Transparency. *Physical Review Letters*, 66(20):2593–2596.
- [Boyd, 1992] Boyd, R. W. (1992). *Nonlinear Optics*. Academic Press.
- [Boyd and Dodd, 1980] Boyd, R. W. and Dodd, J. G. (1980). Analysis of the pressure, density, and velocity distributions in a spectroscopic heat-pipe oven and the resulting limitations on device performance. *Journal of Applied Physics*, 51(12):6058–6061.
- [Brackmann, 2000] Brackmann, U. (2000). *Lambdachrome Laser Dyes*. Lambda Physik.
- [Braje et al., 2004] Braje, D. A., Balic, V., Goda, S., Gin, G. Y., and Harris, S. E. (2004). Frequency Mixing Using Electromagnetically Induced Transparency in Cold Atoms. *Physical Review Letters*, 93(18):183601.
- [Brewer and Hahn, 1975] Brewer, R. G. and Hahn, E. L. (1975). Coherent 2-Photon Processes - Transient and Steady-State Cases. *Physical Review A*, 11(5):1641–1649.
- [Chamberlain et al., 1955] Chamberlain, O., Segrè, E., Wiegand, C., and Ypsilantis, T. (1955). Observation of Antiprotons. *Physical Review*, 100:947–950.
- [Cohen-Tannoudji et al., 1992] Cohen-Tannoudji, C., Dupont-Roc, J., and Grynberg, G. (1992). *Atom-Photon Interactions, Basic Processes and Applications*. John Wiley & Sons.
- [Darling et al., 1992] Darling, T. W., Rossi, F., Opat, G. I., and Moorhead, G. F. (1992). The fall of charges particles under gravity: A study of experimental problems. *Review of Modern Physics*, 64(1):237–257.
- [Eikema et al., 1999] Eikema, K. S. E., Walz, J., and Hänsch, T. W. (1999). Continuous wave coherent Lyman- α radiation. *Physical Review Letters*, 83(19):3828–3831.

- [Eikema et al., 2001] Eikema, K. S. E., Walz, J., and Hänsch, T. W. (2001). Continuous Coherent Lyman- α Excitation of Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 86(25):5679–5682.
- [Fedotov et al., 2001] Fedotov, A. B., Giammanco, F., Naumov, A. N., Marsili, P., Riffini, A., Sidorov-Biryukov, D. A., and Zheltikov, A. M. (2001). VWM in gefüllter Hohlaser. *Appl. Phys. Lett.*, 72:575.
- [Fischer et al., 2004] Fischer, M., Kolachevsky, N., Zimmermann, M., Holzwarth, R., Udem, T., Hänsch, T. W., Abgrall, M., Grunert, J., Maksimovic, I., Bize, S., Marion, H., Dos Santos, F. P., Lemonde, P., Santarelli, G., Laurent, P., Clairon, A., Salomon, C., Haas, M., Jentschura, U. D., and Keitel, C. H. (2004). New limits on the drift of fundamental constants from laboratory measurements. *Physical Review Letters*, 92(23):230802.
- [Fleischhauer et al., 1992] Fleischhauer, M., Keitel, C. H., and Scully, M. O. (1992). Resonantly enhanced refractive index without absorption via atomic coherence. *Physical Review A*, 46(3):1468–1487.
- [Fliessbach, 1995] Fliessbach, T. (1995). *Quantenmechanik*. Spektrum Akad. Verl.
- [Forward and Joel, 1988] Forward, R. L. and Joel, D. (1988). *Mirror Matter – Pioneering Antimatter Physics*. Wiley.
- [Fraser, 2000] Fraser, G. (2000). *Antimatter – The ultimate mirror*. Cambridge University Press.
- [Gabrielse et al., 2002a] Gabrielse, G., Bowden, N. S., Oxley, P., Speck, A., Storry, C. H., Tan, J. N., Wessels, M., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Pittner, H., Walz, J., Hänsch, T. W., and Hessels, E. A. (2002a). Background-Free Observation of Cold Antihydrogen with Field-Ionization Analysis of Its States. *Physical Review Letters*, 89:213401.
- [Gabrielse et al., 2002b] Gabrielse, G., Bowden, N. S., Oxley, P., Speck, A., Storry, C. H., Tan, J. N., Wessels, M., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Pittner, H., Walz, J., Hänsch, T. W., and Hessels, E. A. (2002b). Driven Production of Cold Antihydrogen and the First Measured Distribution of Antihydrogen States. *Physical Review Letters*, 89:233401.
- [Gabrielse et al., 2004a] Gabrielse, G., Speck, A., Storry, C., Le Sage, D., Guise, N., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Pittner, H., Herrmann, M., Walz, J., Hänsch, T. W., Comeau, D., and Hessels, E. A. (2004a). First Laser-Controlled Antihydrogen Production. *Physical Review Letters*, 93:263401.
- [Gabrielse et al., 2004b] Gabrielse, G., Speck, A., Storry, C. H., Le Sage, D., Guise, N., Grzonka, D., Oelert, W., Schepers, G., Sefzick, T., Pittner, H., Walz, J., Hänsch, T. W., Comeau, D., and Hessels, E. A. (2004b). First Measurement of the Velocity of Slow Antihydrogen Atoms. *Physical Review Letters*, 93:073401.
- [Garrett, 1932] Garrett, P. H. (1932). Mean Lives of Mercury Lines $\lambda 2537$ and $\lambda 1849$. *Physical Review*, 40:779–790.

- [Harber and Romalis, 2001] Harber, D. M. and Romalis, M. V. (2001). Measurement of the scalar Stark shift of the $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$ transition in Hg. *Physical Review A*, 63(1):013402.
- [Harris, 1997] Harris, S. E. (1997). Electromagnetically Induced Transparency. *Physics Today*, 50(7):36–42.
- [Harris et al., 1990] Harris, S. E., Field, J. E., and Imamoglu, A. (1990). Nonlinear Optical Processes Using Electromagnetically Induced Transparency. *Physical Review Letters*, 64(10):1107–1111.
- [Harris and Hau, 1999] Harris, S. E. and Hau, L. V. (1999). Nonlinear Optics at Low Light Levels. *Physical Review Letters*, 82(23):4611–4614.
- [Hau et al., 1999] Hau, L. V., Harris, S. E., Dutton, Z., and Behroozi, C. H. (1999). Light speed reduction to 17 meters per second in an ultracold atomic gas. *Nature*, 397:594–598.
- [Hess et al., 1987] Hess, H. F., Kochanski, G. P., Doyle, J. M., Masuhara, N., Kleppner, D., and Greytak, T. J. (1987). Magnetic trapping of spin-polarized atomic hydrogen. *Physical Review Letters*, 59:672–675.
- [Hilborn, 1982] Hilborn, R. C. (1982). Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that. *American Journal of Physics*, 50(11):982–986. Erratum Am. J. Phys. 51(5) May 1983 on Page 471.
- [Hinze et al., 2000] Hinze, U., Chichikov, B. N., Tiemann, E., and Wellegehausen, B. (2000). Resonant continuous four-wave mixing and parametric amplification. *Journal of the Optical Society of America B*, 17(12):2001–2010.
- [Hänsch and Toschek, 1970] Hänsch, T. and Toschek, P. (1970). Theory of a Three-Level Gas Laser Amplifier. *Zeitschrift für Physik*, 236:213–244. Bemerkung: In Gleichung (30) auf Seite 226 ist im Vorfaktor für $|\beta|^2$ im Nenner ein Indexfehler: Statt $\rho_{aa} - \rho_{cc}$ muß es $\rho_{aa} - \rho_{bb}$ heißen.
- [Hänsch and Couillaud, 1980] Hänsch, T. W. and Couillaud, B. (1980). Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Optics Communications*, 35(3):441–444.
- [Holzwarth et al., 2000] Holzwarth, R., Udem, T., Hänsch, T. W., Knight, J. C., Wadsworth, W. J., and Russell, P. S. J. (2000). Optical Frequency Synthesizer for Precision Spectroscopy. *Physical Review Letters*, 85:2264–2267.
- [Huss et al., 2002] Huss, A. F., Korsunsky, E. A., and Windholz, L. (2002). Phase control of electromagnetically induced transparency in a double-Lambda system. *Journal of Modern Optics*, 49(1-2):141–155.
- [Jain et al., 1993] Jain, M., Yin, G. Y., Field, J. E., and Harris, S. E. (1993). Observation of electromagnetically induced phase matching. *Optics Letters*, 18(12):998–1000.
- [Kang et al., 2004] Kang, H., Hernandez, G., and Zhu, Y. (2004). Slow-Light Six-Wave Mixing at Low Light Intensities. *Physical Review Letters*, 93(7):073601.

- [König, 2003] König, M. (2003). *Ein dichter Überschall-Quecksilber-Atomstrahl für die Erzeugung von VUV-Strahlung durch Vier-Wellen-Mischung*. Diplomarbeit, LMU München, Max-Planck-Institut für Quantenoptik.
- [Kolachevsky et al., 2004] Kolachevsky, N., Fischer, M., Karshenboim, S. G., and Hänsch, T. W. (2004). High-precision optical measurement of the 2S hyperfine interval in atomic hydrogen. *Physical Review Letters*, 92(3):033003.
- [Korsunsky and Kosachiov, 1999] Korsunsky, E. A. and Kosachiov, D. V. (1999). Phase-dependent nonlinear optics with double- Λ atoms. *Physical Review A*, 60(6):4996–5009.
- [Korsunsky et al., 1999] Korsunsky, E. A., Leinfellner, N., Huss, A., Balushev, S., and Windholz, L. (1999). Phase-dependent electromagnetically induced transparency. *Physical Review A*, 59(3):2302–2305.
- [Kosachiov and Korsunsky, 2000] Kosachiov, D. V. and Korsunsky, E. A. (2000). Efficient microwave-induced optical frequency conversion. *European Physical Journal D*, 11:457–463.
- [Litvak and Tokman, 2002] Litvak, A. G. and Tokman, M. D. (2002). Electromagnetically Induced Transparency in Ensembles of Classical Oscillators. *Physical Review Letters*, 88(9):095003.
- [Loudon, 1973] Loudon, R. (1973). *The quantum theory of light*. Oxford Science Publications.
- [Luiten et al., 1993] Luiten, O. J., Werij, H. G. C., Setija, I. D., Reynolds, M. W., Hijmans, T. W., and Walraven, J. T. M. (1993). Lyman- α Spectroscopy of Magnetically Trapped Atomic Hydrogen. *Physical Review Letters*, 70(5):544–547.
- [Maichen et al., 1995] Maichen, W., Gaggl, R., Korsunsky, E., and Windholz, L. (1995). Observation of Phase-Dependent Coherent Population Trapping in Optically Closed Atomic Systems. *Europhysics Letters*, 31(4):189–194.
- [Marks, 2000] Marks, P. (2000). Bold enterprise – Antimatter could carry us to the edges of the Solar System. *New Sci.*, 168:6.
- [Melles Griot, 2005] Melles Griot (2005). Material properties: Synthetic fused silica. Website. http://optics.mellesgriot.com/opguide/mp_3_2.htm.
- [Metcalf and van der Straten, 1999] Metcalf, H. J. and van der Straten, P. (1999). *Laser Cooling and Trapping*. Springer-Verlag.
- [Meystre and Sargent III, 1990] Meystre, P. and Sargent III, M. (1990). *Elements of Quantum Optics*. Springer-Verlag.
- [Migdall et al., 1985] Migdall, A. L., Prodan, J. V., Philips, W. D., Bergeman, T. H., and Metcalf, H. J. (1985). First observation of magnetically trapped neutral atoms. *Physical Review Letters*, 54(24):2596–2599.
- [Mitchell and Zemansky, 1971] Mitchell and Zemansky (1971). *Resonance Radiation and Excited Atoms*. Cambridge.

- [Mollow, 1969] Mollow, B. R. (1969). Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems. *Physical Review, second Series*, 188(5):1969–1975.
- [Morigi et al., 2002] Morigi, G., Franke-Arnold, S., and Oppo, G.-L. (2002). Phase-dependent interaction in a four-level atomic configuration. *Physical Review A*, 66(5):053409.
- [Moseley et al., 1995] Moseley, R. R., Shepherd, S., Fulton, D. J., Sinclair, B. D., and Dunn, M. H. (1995). Two-Photon Effects in continuous-wave electromagnetically-induced-transparency. *Optics Communications*, 119:61–68.
- [Moseley et al., 1993] Moseley, R. R., Sinclair, B. D., and Dunn, M. H. (1993). Enhanced conversion efficiency in three-wave mixing via electromagnetically reduced fundamental wave absorption. *Optics Communications*, 101:139–143.
- [Murakawa, 1959] Murakawa, K. (1959). Multiplet structure and hyperfine structure of the spectrum of mercury. *Journal of the Physical Society of Japan*, 14:1624.
- [Naumov et al., 2001] Naumov, A. N., Giammanco, F., Sidorov-Biryukov, D. A., Fedotov, A. B., Marsili, P., Riffini, A., and Zheltikov, A. M. (2001). The influence of Higher Order Waveguide Modes on Coherent Four-Wave mixing in Hollow Fibers. *JETP Letters*, 73(6):263–267.
- [Padmabandu et al., 1996] Padmabandu, G. G., Welch, G. R., Shubin, I. N., Fry, E. S., Nikonov, D. E., Lukin, M. D., and Scully, M. O. (1996). Laser oscillation without population inversion in a sodium atomic beam. *Physical Review Letters*, 76(12):2053.
- [Pahl, 2003] Pahl, A. (2003). *Erzeugung von kontinuierlicher kohärenter Lyman- α -Strahlung zur 1S-2P-Spektroskopie an Antiwasserstoff*. Doktorarbeit, LMU München, Max-Planck-Institut für Quantenoptik.
- [Rathe et al., 1993] Rathe, U., Fleischhauer, M., Zhu, S.-Y., Hänsch, T. W., and Scully, M. O. (1993). Nonlinear theory of index enhancement via quantum coherence and interference. *Physical Review A*, 47(6):4994–5002.
- [Scheingraber and Vidal, 1981] Scheingraber, H. and Vidal, C. R. (1981). Heat pipe oven of well-defined column density. *Review of Scientific Instruments*, 52(7):1010–1012.
- [Setija et al., 1993] Setija, I. D., Werij, H. G. C., Luiten, O. J., Reynolds, M. W., Hijmans, T. W., and Walraven, J. T. M. (1993). Optical cooling of atomic hydrogen in a magnetic trap. *Physical Review Letters*, 70:2257–2260.
- [Shore, 1990] Shore, B. W. (1990). *The Theory of Coherent Atomic Excitation*, volume 1. John Wiley & Sons.
- [Siegman, 1986] Siegman, A. E. (1986). *Lasers*. University Science Books.
- [Smith and Alford, 1986] Smith, A. V. and Alford, W. J. (1986). Vacuum ultraviolet oscillator strengths of Hg measured by sum-frequency mixing. *Physical Review A*, 33(5):3172–3180.

- [Steffes et al., 1996] Steffes, B., Li, X., Mellinger, A., and Vidal, C. R. (1996). Heat-pipe oven for large column densities with a well-defined optical path length. *Appl. Phys. B-Lasers Opt.*, 62(1):87–90.
- [Umemura and Kato, 1997] Umemura, N. and Kato, K. (1997). Ultraviolet generation tunable to 0.185 μm in CsLiB₆O₁₀. *Applied Optics*, 36(27):6794–6796.
- [Verdeyen, 1981] Verdeyen, J. T. (1981). *Laser Electronics*. Prentice-Hall.
- [Vidal, 1987] Vidal, C. R. (1987). *Tunable Lasers*, volume 59, chapter Four-Wave Frequency Mixing in Gases, pages 57–113. Springer-Verlag.
- [Vidal and Cooper, 1969] Vidal, C. R. and Cooper, J. (1969). Heat-pipe oven - a new, well-defined metal vapor device for spectroscopic measurements. *Journal of Applied Physics*, 40(8):3370.
- [Wallenstein and Hänsch, 1976] Wallenstein, R. and Hänsch, T. W. (1976). Powerful Dye Laser Oscillator-Amplifier System for High Resolution Spectroscopy. *Optics Communications*, 14(3):353–357.
- [Walther, 2002] Walther, T. (2002). Prospects of trapping neutral mercury: Formation of vibrationally cold molecules and entanglement of atoms. Website. http://www.physik.tu-darmstadt.de/lqo/projects/poster/mol_hd_2002.jpg.
- [Wielandy and Gaeta, 1998] Wielandy, S. and Gaeta, A. L. (1998). Investigation of electromagnetically induced transparency in the strong probe regime. *Physical Review A*, 58(3):2500–2505.
- [Wu et al., 2003] Wu, Y., Saldana, J., and Zhu, Y. (2003). Large enhancement of four-wave mixing by suppression of photon absorption from electromagnetically induced transparency. *Physical Review A*, 67(1):013811.
- [Ye and Shen, 1982] Ye, P. and Shen, Y. R. (1982). Transient four-wave mixing and coherent transient optical phenomena. *Physical Review A*, 25(4):2183–2199.
- [Yu et al., 1997] Yu, C. C., Bochinski, J. R., Kordich, T. M. V., Mossberg, T. W., and Ficek, Z. (1997). Driving the driven atom: Spectral signatures. *Physical Review A*, 56(6):R4381.

Danksagung

Am Ende dieser Arbeit möchte ich all jenen, die zu ihrem Entstehen beigetragen haben, herzlich danken:

Herrn Prof. Dr. T. W. Hänsch und Prof. Dr. Jochen Walz, die mir die Möglichkeit gaben, eine von vielen interessanten Aufgabenstellungen innerhalb eines einzigartigen Projekts zu bearbeiten.

Herrn Prof. Dr. L. Windholz von der TU Graz für die Einweisung in die Geheimnisse von Farbstofflasern, insbesondere des Justierens des Ethalon-Blocks.

Dr. Kjeld S. E. Eikema für die „Fernbetreuung“ und seine hilfreichen Besuche am MPQ vor allem in der Anfangsphase der Doktorarbeit.

Dr. Giovanna Morigi für die Diskussionen über den Einfluß von Dämpfungen und der globalen Phase bei EIT in Quecksilber.

Dr. Anette Pahl, die selbst nach ihrem Ausscheiden aus der Arbeitsgruppe ein offenes Ohr für das Projekt hatte und mit ihren Korrekturen und Fragen eine große Hilfe beim Schreiben dieser Arbeit war. Können wir uns jetzt, wo das Werk vollbracht ist, in aller Ruhe über Strickmuster und Kuchenrezepte unterhalten?

Peter Fendel, ohne den diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre: Ich hätte sie verschlafen. Er war außerdem mein Lieblingsopfer für grundlegende dumme Fragen – wobei ihm hoch anzurechnen ist, daß er nie gelacht hat – und Testkritiker für Erklärungs- oder Interpretationsversuche so manch seltsamer Modellvorstellungen.

Dr. Domagoj Pavicic, der es drei Jahre lang klaglos mit mir in einem Büro ausgehalten hat. Seit seinem Umzug nach Ottawa fehlt mir das interaktive Mathematica-Manual und mein gutes Vorbild in Sachen Ruhe und Geduld.

Dr. Marc Fischer, der mich nie daran zweifeln ließ, daß mein Farbstofflaser ein viel größeres Monster war als seiner.

Wolfgang Simon und Karl Linner – mit ein klein wenig Glück will nie wieder jemand eine ganze Sammlung von Quecksilberzellen abgescholzen haben. . .

Helmut Brückner, dem Retter von Controlboxen und Turbopumpen.

Rosemarie Lechner und Gabi Gschwendtner, die beide ihrer Aufgabe sehr sorgsam nachgehen. Ich werde aufpassen müssen, am Ende der Promotion keinen „ERLEDIGT“-Stempel auf die Stirn zu bekommen. . .

Der ganzen Arbeitsgruppe, mit der es sich gut arbeiten und gut Kaffeetrinken läßt. Manchmal sogar beides gleichzeitig.

Meiner Familie, die keine Gelegenheit ausläßt, mich seelisch, moralisch und regelmäßig auch kulinarisch zu unterstützen.

Meinem Mann Stefan, der nicht nur meine eigenwillige Kommasetzung zensiert hat, sondern auch das nötige Feingefühl besaß, im richtigen Moment *nicht* zu erwähnen, daß andere Textbearbeitungsprogramme durchaus auch Vorteile haben.