

**Bachelorarbeit**

**Untersuchung der Lebensdauern  
von Rydberg-f- und -g-Zuständen  
in Stickstoffmonoxid**

Verfasst von:  
**Meriem Mavlutova**

Vorgelegt an der **Universität Stuttgart**  
5. Physikalisches Institut  
Pfaffenwaldring 57  
70569 Stuttgart

**Geprüft von:** Prof. Dr. Tilman Pfau  
**Betreut von:** Dr. Harald Kübler

29. August 2024



# Ehrenwörtliche Erklärung

Gemäß § 24.7 der Prüfungsordnung 2015 erkläre ich hiermit:

1. Ich habe die vorliegende Arbeit eigenständig angefertigt.
2. Ich habe keine anderen als die angegebenen Quellen verwendet und alle wörtlich oder sinngemäß übernommenen Inhalte als solche kenntlich gemacht.
3. Die eingereichte Arbeit wurde weder vollständig noch in wesentlichen Teilen in einem anderen Prüfungsverfahren vorgelegt.
4. Das eingereichte elektronische Exemplar stimmt mit den gedruckten Exemplaren überein.

Stuttgart, den 29. August 2024

**Meriem Mavlutova**



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Mehrstufige Anregungssysteme</b>	<b>5</b>
2.1	Dreineiveausystem . . . . .	5
2.1.1	Die Drehwellennäherung . . . . .	8
2.1.2	Die Lindblad-Gleichung . . . . .	9
2.2	Vierniveausystem . . . . .	11
<b>3</b>	<b>Linienbreiten und -profile</b>	<b>15</b>
3.1	Natürliche Linienbreite . . . . .	15
3.2	Linienprofil . . . . .	16
3.3	Dopplerverbreiterung . . . . .	17
3.4	Flugzeitverbreiterung . . . . .	17
3.5	Druckverbreiterung . . . . .	18
3.6	Leistungsverbreiterung . . . . .	19
<b>4</b>	<b>Simulationen der Population</b>	<b>21</b>
4.1	Realisierung . . . . .	21
4.2	Dreineiveausystem . . . . .	24
4.2.1	Allgemeines Verhalten . . . . .	24
4.3	Vierniveausystem . . . . .	32
4.3.1	Allgemeines Verhalten . . . . .	32
<b>5</b>	<b>Messungen</b>	<b>41</b>
5.1	$H^2\Sigma^+$ -Zustand . . . . .	42
5.2	$22(0)$ -Rydbergzustand . . . . .	45
5.3	Strahlverlauf . . . . .	50
<b>6</b>	<b>Simulationen und Messungen</b>	<b>55</b>
6.1	Dreineiveausystem — $H^2\Sigma^+$ -Zustand . . . . .	56
6.2	Vierniveausystem — $22(0)$ -Rydbergzustand . . . . .	60
<b>7</b>	<b>Fazit</b>	<b>69</b>
7.1	Zusammenfassung . . . . .	69
7.2	Ausblick . . . . .	70

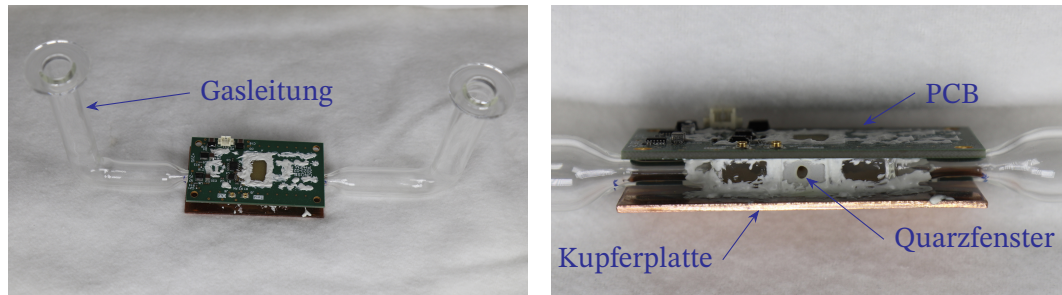


# 1 Einleitung

Diese Arbeit ist im Rahmen des Projekts „QNOSE“, kurz für „quantum nitric oxide sensing experiment“ entstanden. Die Motivation des Projekts ist die Entwicklung eines Spurengassensors für Stickstoffmonoxid zur medizinischen Anwendung. Die Herausforderung besteht darin, ein hochempfindliches Messgerät zu konzipieren, das in der Lage ist, sehr geringe Stickstoffmonoxidkonzentrationen im Teile pro Milliarde (engl.: parts per billion, ppb) Bereich, wie sie in der Atemluft vorkommen zu detektieren. Existierende Methoden zur Detektion von Stickstoffmonoxid benötigen dazu ein relativ großes Gasvolumen von bis zu einem Liter oder haben dabei eine unzureichende Selektivität [1, 2]. Somit sind Untersuchungen von Atemgas zum Beispiel bei Kindern, mit geringem Lungenvolumen nur begrenzt möglich. Auch für die medizinische Forschung ist es wichtig sehr geringe Gasvolumina erfassen zu können [3]. Dabei kann durch die optogalvanische Art der Detektion, wie sie bei diesem Sensor verwendet wird, eine schnelle Auslese bei geringem Gasvolumen ermöglicht werden. Die Stickstoffmonoxidkonzentration in Atemgas kann dabei einen wichtigen Anhaltspunkt als Indikator für Entzündungsprozesse im Körper bei verschiedenen Erkrankungen, wie Asthma oder sogar Krebs bieten [3–5].

Das zu detektierende NO-Gas wird durch die in Abbildung 1.0.1 dargestellte Glaszelle geleitet, sodass sich das Gas im ständigen Durchfluss befindet. Das Kernstück der Zelle in dem die Detektion stattfindet, hat eine Länge von 35 mm, eine Breite von 13,5 mm und eine Höhe von 8,4 mm. Die Ober- und Unterseite der Zelle wurden mit Elektroden versehen, wobei sich auf der oberen Elektrode noch zusätzlich eine gedruckte Schaltung (engl.: Printed Circuit Board, PCB) befindet, am Boden der Glaszelle ist eine Kupferplatte angebracht. Über die angebrachten Elektroden kann ein Potenzial angelegt werden, das ein elektrisches Feld innerhalb der Zelle erzeugt. Seitlich an der Zelle befinden sich Quarzfenster [6].

Die Untersuchungen zur Detektion werden bei Raumtemperatur durchgeführt. Das sich in der Zelle befindliche NO-Gas wird durch drei in der selben Ebene aber orthogonal zum Gasfluss geführte Laserstrahlen in der Zelle angeregt. Die Anregung basiert auf einem Drei-Photonen-Anregungsschema, entsprechend dem in Abbildung 1.0.2 oben links dargestellten Levelschema von NO, wobei die Umsetzung auf drei verschiedenen Dauerstrichlasern (engl.: Continuous Wave, cw-laser) basiert. Die erste Anregung erfolgt vom Grundzustand X- in den A-Zustand durch eine Absorption von Photonen im UV-Bereich, bei einer Wellenlänge  $\lambda_{\text{uv}} \approx 226 \text{ nm}$ . Hier wird die Notwendigkeit der Quarzfenster deutlich, da Borosilikatglas im betrachteten UV-Bereich größtenteils undurchlässig ist. [7] Die Anregung in den H-Zustand wird mit einer Wellenlänge von  $\lambda_{\text{grün}} \approx 540 \text{ nm}$  er-



**Abb. 1.0.1:** Fotografie der Stickstoffmonoxid-Durchflussglaszelle mit PCB und Kupferplatte. Auf der linken Seite ist die Zelle als ganzes, inklusive der Durchflussleitung und auf der rechten Seite ist eine Nahaufnahme der Zelle zu sehen.

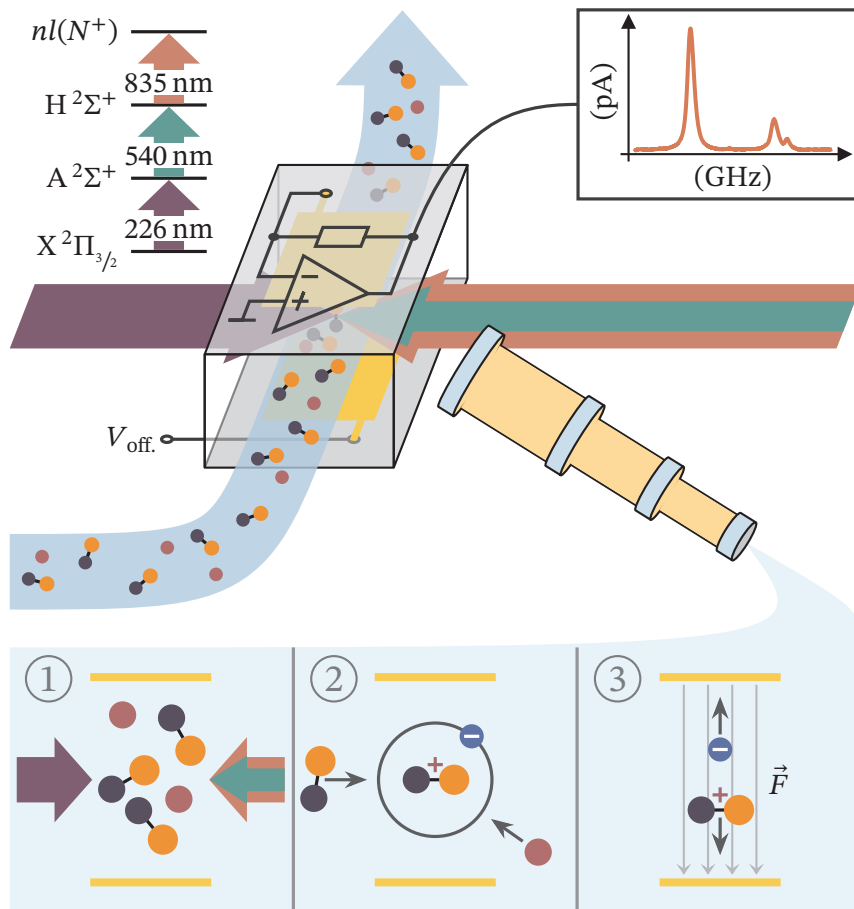
möglichst, und die Anregung vom H- in den Rydbergzustand wird mit einer Wellenlänge von  $\lambda_{\text{ir}} \approx 835 \text{ nm}$  im Infrarotbereich umgesetzt. Der UV-Laserstrahl wird gegenläufig zum grünen- und infraroten Laserstrahl in die Zelle geleitet. Innerhalb des Strahlüberlapps aller drei Laser werden die Moleküle bis in den Rydbergzustand  $nl(N^+)$  angeregt (Abbildung 1.0.2 (1)), wobei  $n$  die Hauptquantenzahl und  $l$  die Drehimpulsquantenzahl des Rydbergelektrons und  $N^+$  die Rotationsquantenzahl des Ions ist.

Absorbiert ein Atom oder Molekül gerade so viel Energie, dass ein Elektron in einen Zustand nahe der Ionisationsgrenze angehoben wird, so spricht man von einem Rydbergzustand. Rydbergzustände besitzen hohe Hauptquantenzahlen  $n$ , so dass das angeregte Elektron als weitgehend unabhängig betrachtet werden kann [8, 9]. Daraus resultieren besondere Eigenschaften, dazu gehören beispielsweise, dass sie über eine geringe Bindungsenergie  $E_n \sim n^{-2}$  verfügen, sodass diese Zustände über Stöße leicht ionisiert werden können. Außerdem skaliert die radiative Lebensdauer  $\tau$  des Zustands mit  $n^5$  und die Übergangsfrequenz  $\omega_{n,n+1}$  mit  $n^{-3}$  [6, 10].

In der Glaszelle werden die in den Rydbergzustand angeregten NO-Moleküle durch Stöße mit anderen Teilchen innerhalb der Zelle ionisiert, siehe Abbildung 1.0.2 (2). Aufgrund des zwischen den Platten anliegenden elektrischen Potentials werden die  $\text{NO}^+$ -Ionen und die Elektronen in entgegengesetzte Richtungen entsprechend der Polung des Potentials beschleunigt, siehe Abbildung 1.0.2 (3). Durch die auftreffenden Ionen und Elektronen entsteht ein Strom in der Größenordnung von Pico- bis Nanoampere. In [1, 11] wurde gezeigt, dass diese Art der Detektion empfindlicher sein kann als eine optische Detektion. Auf dem PCB befindet sich eine Transimpedanzverstärkerschaltung (engl.: transimpedance amplifier, TIA), dieser ermöglicht eine Umwandlung des Stroms im elektrischen Schaltkreis in eine dazu proportionale Spannung in der Größenordnung von Volt, welche über ein Oszilloskop erfasst werden kann.

Die Sensitivität der Detektion wird durch die Anregungseffizienz und damit durch die Linienbreite und die Amplitude des Signals bestimmt. Die Linienbreite und die Amplitude bestimmen die Stärke des Signals. Verschiedene Faktoren, wie zum Beispiel





**Abb. 1.0.2:** Abgebildet ist eine vereinfachte Darstellung der Funktionsweise des Experiments. Durch eine gläserne Zelle wird Stickstoffmonoxid geleitet. Die Moleküle werden beim Passieren der Zelle mit drei orthogonal zur Durchflussrichtung führenden Laserstrahlen angeregt. Der UV-Laserstrahl kommt von der einen und der grüne und der infrarote Laserstrahl von der gegenüberliegenden Zellseite (1). Es geschieht eine Anregung entsprechend dem Anregungsschema des NO-Moleküls oben links. Das in den Rydbergzustand angeregte NO-Molekül wird durch Stöße mit anderen Teilchen ionisiert (2). Über angebrachte Zellelektroden kann ein elektrisches Potential angelegt werden. Die bei der Ionisation entstehenden Ionen und Elektronen werden entsprechend ihrer Ladung zu den Elektroden hin beschleunigt und erzeugen einen Strom im elektrischen Schaltkreis (3). So entsteht ein Messsignal ähnlich zu dem, wie oben rechts abgebildet. Außerdem befindet sich auf der Zelle eine Verstärkerschaltung die das Erfassen des Messsignals erleichtern soll und das Einkoppeln von elektrischem Rauschen reduziert. Die Graphik wurde mit Einverständnis aus [6] entnommen.

das anliegende elektrische Feld haben Einfluss auf diese Größen. Dieser Aspekt wurde bereits in [6, 12] betrachtet. Ebenso beeinflussen Kollisionen mit dem Hintergrundgas in der Zelle und der anliegende Druck die Linienbreite, auch hierzu wurden bereits Untersuchungen in [6, 13] durchgeführt. Darüber hinaus haben die Leistungen der Laser Auswirkungen auf diese Größen.

Die weitere Analyse des Messsignals ist für die spätere Anwendung zur Detektion von Spurengasen relevant. Dafür muss der Einfluss von Verbreiterungseffekten auf Größen wie Linienbreite, Lebensdauer und Amplitude des Signals weiter untersucht werden. Daher sollte das vorliegende Vierniveausystem der Anregungsdynamik näher erforscht werden. Zusätzlich bietet sich das Dreiniveausystem zur Betrachtung an, um die zugrunde liegenden Prozesse besser zu verstehen [14]. Genau diesem Aspekt widmet sich diese Arbeit.

Dafür wird zunächst die Theorie mehrstufiger Anregungssysteme sowie die Grundlagen zu Verbreiterungseffekten eingeführt. Im Rahmen von Simulationen zu einem Drei- und Vierniveausystem wird das allgemeine Verhalten der geschwindigkeitsgemittelten Population im obersten angeregten Zustand und die Breite des Verlaufs in Abhängigkeit der Rabifrequenzen untersucht. Danach folgt die Analyse aufgenommener Leistungsserien bezüglich der im Molekül angeregten Übergänge. Als Letztes werden die experimentellen Daten zusammen mit den aus einer auf das Experiment abgestimmten Simulation gewonnenen Ergebnissen für die Population bei variierender Rabifrequenz verglichen. So kann für die Rabifrequenzen der Übergänge ein Bereich angegeben werden. Die hieraus bestimmbaren Größen, die Linienbreite und die Sättigungsintensität, sind somit in ihrer Genauigkeit durch den Bereich der Rabifrequenzen begrenzt.

## 2 Mehrstufige Anregungssysteme

Bei der Betrachtung von Atom-Licht-Wechselwirkungen bietet das Zweiniveausystem ein einfaches Modell zum Verständnis elementarer Prozesse der Wechselwirkung zwischen elektromagnetischer Strahlung und atomaren Übergängen. Es bietet die Grundlage für das Verständnis höherer Systeme und kann beispielsweise in [15] nachgelesen werden. In der vorliegenden Arbeit ist jedoch das einfache Modell des Zweiniveausystems nicht ausreichend, da die Erkenntnisse später mit den experimentellen Daten zur einer zwei- bzw. drei-photonigen Anregung am Experiment verglichen werden sollen [1, 6]. Daher werden ein Drei- und ein Vierniveausystem betrachtet, wobei die Population des obersten Zustands und die Einflüsse aus der Laserleistung und der Verstimmung auf diese von Interesse sind. Die Vereinfachung auf ein Drei- bzw. Vierniveausystem ist möglich, da der betrachtete Bereich sich in der Größenordnung von MHz bewegt und alle anderen Zustände, Rotations- und Vibrationszustände, verglichen mit der Linienbreite weit entfernt sind und sich im GHz-Bereich bewegen.

Alle in dieser Arbeit bezeichneten Frequenzen  $\omega = 2\pi\nu$  sind Kreisfrequenzen.

### 2.1 Dreiniveausystem

Für die Betrachtung des Dreiniveausystems wird das Zweiniveausystem um einen anregbaren Zustand erweitert, die Behandlung erfolgt analog. Das folgende Unterkapitel orientiert sich in der Herangehensweise an [16].

In Abbildung 2.1.1 wird ein Dreiniveausystem veranschaulicht. Um vom Grundzustand  $|g'\rangle = (1, 0, 0)^T$  in den ersten angeregten Zustand  $|e'\rangle = (0, 1, 0)^T$  zu gelangen, muss eine Energiedifferenz in Form von  $\hbar\omega_{0,g'e'}$  überwunden werden. Dabei gibt  $\omega_{0,ij}$  die notwendige Frequenz an, um vom  $|i\rangle$ -Zustand in den  $|j\rangle$ -Zustand anzuregen. Die Frequenz  $\omega_{L,ij}$  entspricht immer der Laserfrequenz, die den Übergang treiben soll. Die Differenz in den Frequenzen wird mit  $\Delta_{ij} = \omega_{L,ij} - \omega_{0,ij}$  bezeichnet und gibt die Verstimmung gegenüber dem Resonanzfall an. Gleiches gilt für den nächst höheren Zustand  $|s'\rangle = (0, 0, 1)^T$ . Die Zerfallsbreite  $\Gamma_{ji}$  trägt die Einheit einer Frequenz und gibt an, wie schnell ein Übergang aus einem angeregten in das nächst untere Niveau durch spontane Emission geschieht.

Das System kann durch den Hamiltonoperator [16]

$$\mathbf{H}' = \hbar [ |g'\rangle \langle g'| \cdot 0 + |e'\rangle \langle e'| \cdot \omega_{0,g'e'} + |s'\rangle \langle s'| \cdot (\omega_{0,g'e'} + \omega_{0,e's'}) ] \quad (2.1)$$

$$+ \hbar \left[ \omega_{L,g'e'} \cdot \left( \hat{\mathbf{a}}_{g'e'} \hat{\mathbf{a}}_{g'e'}^\dagger + \frac{1}{2} \right) + \omega_{L,e's'} \cdot \left( \hat{\mathbf{a}}_{e's'} \hat{\mathbf{a}}_{e's'}^\dagger + \frac{1}{2} \right) \right] \quad (2.2)$$

$$+ \frac{\hbar}{2} \left[ \Omega_{g'e'} \cdot (|e'\rangle \langle g'| \hat{\mathbf{a}}_{g'e'} + |g'\rangle \langle e'| \hat{\mathbf{a}}_{g'e'}^\dagger) \right. \\ \left. + \Omega_{e's'} \cdot (|s'\rangle \langle e'| \hat{\mathbf{a}}_{e's'} + |e'\rangle \langle s'| \hat{\mathbf{a}}_{e's'}^\dagger) \right] \quad (2.3)$$

beschrieben werden. Dieser setzt sich aus einem atomaren Anteil (Gleichung 2.1), welcher die Energiezustände beschreibt, einem photonischen Anteil (Gleichung 2.2), welcher auf die Energie der Photonen des Lasers im System eingeht und einem Anteil für die Wechselwirkungen (Gleichung 2.3) zwischen dem Atom und den Photonen zusammen. Wobei  $\hat{\mathbf{a}}_{ij}$  und  $\hat{\mathbf{a}}_{ij}^\dagger$  Vernichtungs- und Erzeugungsoperatoren sind. Die möglichen Zerfälle werden zunächst nicht betrachtet, diese werden später eingeführt. Das von den Lasern ausgehende elektrische Feld ist durch [15]

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_{0,ge} \cdot \cos(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega_{L,ge} \cdot t) + \mathbf{E}_{0,es} \cdot \cos(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega_{L,es} \cdot t) \quad (2.4)$$

gegeben, in der folgenden Betrachtung befindet sich das Atom an der Position  $\mathbf{r} = 0$ , so ergibt sich für das einfallende elektrische Feld

$$\mathbf{E}(0, t) = \mathbf{E}_{0,g'e'} \cdot \cos(\omega_{L,g'e'} \cdot t) + \mathbf{E}_{0,e's'} \cdot \cos(\omega_{L,e's'} \cdot t) \quad (2.5)$$

Der Wellenvektor  $\mathbf{k}$  definiert die Ausbreitungsrichtung der Welle und ist nach  $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda$  über die Wellenlänge  $\lambda$  definiert. Mit Hilfe der Definition des elektrischen Feldes kann nun die Rabifrequenz  $\Omega_{ij}$  bestimmt werden. Die Rabifrequenz  $\Omega_{ij}$  gibt dabei diejenige Frequenz an, mit der die Besetzungswahrscheinlichkeit der Zustände oszilliert. Hierbei wird die Rabifrequenz für kleine Verstimmungen  $\Delta_{ij} \rightarrow 0$  betrachtet, so dass

$$\tilde{\Omega}_{ij} = \sqrt{\Omega_{ij}^2 + \Delta_{ij}^2} \approx \Omega_{ij} \quad (2.6)$$

gilt [15]. Das Übergangsdipolmoment  $\mathbf{d}_{ij}$  und die elektrische Feldamplitude  $\mathbf{E}_{0,ij}$  ermöglichen dabei die Berechnung der Rabifrequenz [17]

$$\Omega_{ij} = -\frac{\mathbf{d}_{ij} \cdot \mathbf{E}_{0,ij}}{\hbar} = -\frac{\langle j | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}_{0,ij} | i \rangle}{\hbar} \quad (2.7)$$

zum entsprechenden Übergang.

Für das weitere Vorgehen wird ein Vektorraum  $\mathbb{A} \times \mathbb{P}^1$  konstruiert, welcher den atomaren Anteil in  $\mathbb{A}$  und den photonischen Anteil in  $\mathbb{P}^1$  verbindet, und eine gemeinsame Basis schafft.

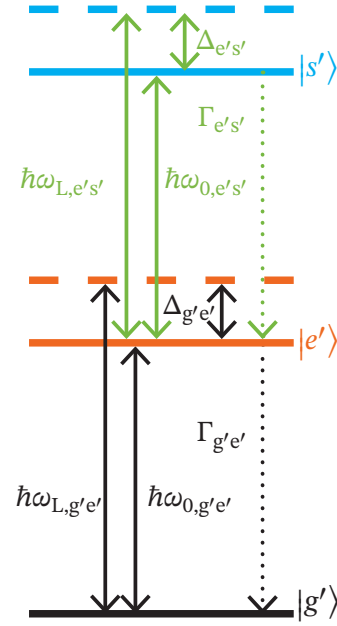
Der Exponent des photonischen Anteils gibt die Anzahl der Laser vor und entspricht in einem Dreineiveausystem  $l = 2$ . Die neuen Zustände sind dann durch  $|g''\rangle = |g', n_{g'e'}, n_{e's'}\rangle$ ,  $|e''\rangle = |e', n_{g'e'} - 1, n_{e's'}\rangle$  und  $|s''\rangle = |s', n_{g'e'} - 1, n_{e's'} - 1\rangle$  gegeben, wobei  $n_{g'e'}, n_{e's'} \in \mathbb{N}$  repräsentativ für die Anzahl der vorhandenen Photonen je Übergang im System stehen. Wird das Atom durch die Absorption eines Photons aus dem Grundzustand in den ersten angeregten Zustand gehoben, so reduziert sich die Anzahl der Photonen  $n_{g'e'}$  zu  $n_{g'e'} - 1$ , gleiches gilt für  $n_{e's'}$  bei einer Anregung in den nächst höheren Zustand. Für  $n_{g'e'}, n_{e's'} \gg 1$  kann eine Änderung um  $\pm 1$  vernachlässigt werden, sodass  $|g', n_{g'e'}, n_{e's'}\rangle = |g', n_{g'e'} \pm 1, n_{e's'} \pm 1\rangle$  gilt. So kann eine halbklassische Beschreibung über das elektrische Feld  $\mathbf{E}$  und die Rabi-Frequenz  $\Omega$  an Stelle von einer Beschreibung über die Leiteroperatoren  $\hat{\mathbf{a}}_{ij}$  und  $\hat{\mathbf{a}}_{ij}^\dagger$  gewählt werden. In der neuen Basis kann der Wechselwirkungsterm

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_{\text{WW}}'' = & -\frac{\mathbf{E}(0, t)}{2} (\mathbf{d}_{e''g''} |e''\rangle \langle g''| \\ & + \mathbf{d}_{g''e''} |g''\rangle \langle e''| + \mathbf{d}_{s''e''} |s''\rangle \langle e''| \\ & + \mathbf{d}_{e''s''} |e''\rangle \langle s''|) \end{aligned} \quad (2.8)$$

nun durch das elektrische Feld beschrieben werden. Unter einer konstanten energetischen Verschiebung um den photonischen Anteil kann der Hamiltonoperator somit zu

$$\mathbf{H}'' = \begin{pmatrix} 0 & \mathbf{d}_{g''e''} \cdot \mathbf{E}_{0,g''e''} / 2 \cdot \cos(\omega_{L,g''e''} \cdot t) & 0 \\ -\mathbf{d}_{e''g''} \cdot \mathbf{E}_{0,g''e''} / 2 \cdot \cos(\omega_{L,g''e''} \cdot t) & \hbar\omega_{g''e''} & \mathbf{d}_{e''s''} \cdot \mathbf{E}_{0,e''s''} / 2 \cdot \cos(\omega_{L,e''s''} \cdot t) \\ 0 & -\mathbf{d}_{s''e''} \cdot \mathbf{E}_{0,e''s''} / 2 \cdot \cos(\omega_{L,e''s''} \cdot t) & \hbar(\omega_{g''e''} + \omega_{e''s''}) \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

umgeschrieben werden.



**Abb. 2.1.1:** Darstellung eines Dreineiveausystem mit dem Grundzustand  $|g'\rangle$ , dem ersten angeregten Zustand  $|e'\rangle$  und dem zweiten angeregten Zustand  $|s'\rangle$ .

Die Betrachtung des Dichteoperators

$$\rho'' = \begin{pmatrix} \rho_{g''g''} & \rho_{g''e''} & \rho_{g''s''} \\ \rho_{e''g''} & \rho_{e''e''} & \rho_{e''s''} \\ \rho_{s''g''} & \rho_{s''e''} & \rho_{s''s''} \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

ermöglicht die Populationen der (reinen) Zustände, also der Hauptdiagonalelemente zu erfassen und auf die zeitliche Entwicklung dieser einzugehen. Die Nebendiagonalelemente werden auch als Kohärenzen zwischen den jeweiligen Zuständen bezeichnet [15–17].

### 2.1.1 Die Drehwellennäherung

Für kleine Verstimmungen kann die Drehwellennäherung angewandt werden [8]. Dafür müssen sowohl der Hamiltonoperator als auch der Dichteoperator unitär transformiert werden. Der transformierte Hamiltonoperator  $\mathbf{H}$  lässt sich mit  $\mathbf{H} = (\mathbf{U}'')^\dagger \mathbf{H}'' \mathbf{U}'' - i\hbar(\mathbf{U}'')^\dagger \frac{\partial \mathbf{U}''}{\partial t}$  bestimmen, wobei

$$\mathbf{U}'' = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-i\omega_{L,g''e''}t} & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\omega_{L,e''s''}t} \end{pmatrix} \quad (\mathbf{U}'')^\dagger = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\omega_{L,g''e''}t} & 0 \\ 0 & 0 & e^{i\omega_{L,e''s''}t} \end{pmatrix} \quad (2.11)$$

die Transformationsmatrizen sind.

Nach Anwendung der Transformation, kann die zuvor erwähnte Näherung auf

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} 0 & -\mathbf{d}_{g''e''} \cdot \mathbf{E}_{0,g''e''} / 2 & 0 \\ \cdot(1 + e^{-i2\omega_{L,g''e''}t}) & -\hbar\Delta_{g''e''} & -\mathbf{d}_{e''s''} \cdot \mathbf{E}_{0,e''s''} / 2 \\ -\mathbf{d}_{e''g''} \cdot \mathbf{E}_{0,g''e''} / 2 & & \cdot(1 + e^{-i2\omega_{L,e''s''}t}) \\ \cdot(1 + e^{i2\omega_{L,g''e''}t}) & & \\ 0 & -\mathbf{d}_{s''e''} \cdot \mathbf{E}_{0,e''s''} / 2 & -\hbar(\Delta_{g''e''} + \Delta_{e''s''}) \\ \cdot(1 + e^{i2\omega_{L,e''s''}t}) & & \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

angewandt werden. Hochfrequente Terme  $e^{\pm i2\omega_{L,ij}t}$  haben nur einen geringen Einfluss auf die Wechselwirkungen, da diese eine schnelle zeitliche Änderung erfahren, somit ist ihr Beitrag im Zeitlichenmittel vernachlässigbar [17]. Durch die Transformation wirkt sich nur eine Änderung auf die Operatoren aus. Die Zustände werden von der Transformation nicht beeinflusst. Somit gilt  $|g''\rangle = |g\rangle$ ,  $|e''\rangle = |e\rangle$  und  $|s''\rangle = |s\rangle$ . Der

genäherte Hamiltonoperator ist somit durch

$$\mathbf{H} = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega_{ge}}{2} & 0 \\ \frac{\Omega_{eg}}{2} & -\Delta_{ge} & \frac{\Omega_{es}}{2} \\ 0 & \frac{\Omega_{se}}{2} & -(\Delta_{ge} + \Delta_{es}) \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

gegeben, dabei wurde erneut die Schreibweise unter Verwendung der Rabi-Frequenz gewählt. Die Transformation für den neuen Dichteoperator  $\rho' = \mathbf{U}^\dagger \rho \mathbf{U}$  wird durch

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{gg} & \rho_{ge} & \rho_{gs} \\ \rho_{eg} & \rho_{ee} & \rho_{es} \\ \rho_{sg} & \rho_{se} & \rho_{ss} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho''_{gg} & \rho''_{ge} \cdot e^{i\omega_{L,ge}t} & \rho''_{gs} \cdot e^{i\omega_{L,ge}t} \cdot e^{i\omega_{L,es}t} \\ \rho''_{eg} \cdot e^{-i\omega_{L,ge}t} & \rho''_{ee} & \rho''_{es} \cdot e^{i\omega_{L,es}t} \\ \rho''_{sg} \cdot e^{-i\omega_{L,ge}t} \cdot e^{-i\omega_{L,es}t} & \rho''_{se} \cdot e^{-i\omega_{L,es}t} & \rho''_{ss} \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

vorgegeben [16, 18].

### 2.1.2 Die Lindblad-Gleichung

Die zeitliche Entwicklung des Dichteoperators ist durch die Lindblad-Gleichung [17]

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\mathbf{H}, \rho] + \mathbf{L} \quad (2.15)$$

gegeben. Durch das Einbringen des Lindbladoperators  $\mathbf{L}$ , werden nun auch die Zerfallsprozesse des Systems mit abgedeckt. Gemäß [17]

$$\mathbf{L} = \sum_{ij} \Gamma_{ji} \left( \mathbf{L}_{ij} \rho \mathbf{L}_{ij}^\dagger - \frac{1}{2} \{ \mathbf{L}_{ij}^\dagger \mathbf{L}_{ij}, \rho \} \right) \quad (2.16)$$

kann der Lindbladoperator  $\mathbf{L}$  konstruiert werden, wobei  $\mathbf{L}_{ij}$  sogenannte „jump“ Operatoren sind, welche alle möglichen Zerfälle eines Systems beschreiben können. Für das Dreiniveausystem ergibt sich

$$\mathbf{L} = \begin{pmatrix} \Gamma_{eg} \rho_{ee} & -\frac{\Gamma_{eg}}{2} \rho_{ge} & -\frac{\Gamma_{se}}{2} \rho_{gs} \\ -\frac{\Gamma_{eg}}{2} \rho_{eg} & -\Gamma_{eg} \rho_{eg} + \Gamma_{se} \rho_{ss} & -\frac{\Gamma_{eg} + \Gamma_{se}}{2} \rho_{es} \\ -\frac{\Gamma_{se}}{2} \rho_{sg} & -\frac{\Gamma_{eg} + \Gamma_{se}}{2} \rho_{se} & -\Gamma_{se} \rho_{ss} \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

für den Fall von endlichen Lebensdauern der angeregten Zustände, und indem nur stufenweise Übergänge betrachtet werden. Wird nun in Gleichung 2.15 der transformierte Hamiltonoperator  $\mathbf{H}$  (Gleichung 2.13) nach der Anwendung der Drehwellennäherung

und der transformierte Dichteoperator  $\rho$  (Gleichung 2.14) eingesetzt, kann die zeitliche Entwicklung der Populationen und der Kohärenzen zwischen den Zuständen zu

$$\begin{aligned}
 \dot{\rho}_{gg} &= \frac{i\Omega_{ge}}{2}(\rho_{ge} - \rho_{eg}) + \Gamma_{eg}\rho_{ee} \quad , \\
 \dot{\rho}_{ge} &= (\dot{\rho}_{eg})^* = \frac{i}{2}(\Omega_{ge}(\rho_{gg} - \rho_{ee}) + \Omega_{es}\rho_{gs}) - i\rho_{ge}\left(\Delta_{ge} - \frac{\Gamma_{eg}}{2}\right) \quad , \\
 \dot{\rho}_{gs} &= (\dot{\rho}_{sg})^* = \frac{i\Omega_{es}}{2}\rho_{ge} - \frac{i\Omega_{ge}}{2}\rho_{es} - \rho_{gs}\left(\Delta_{ge} + \Delta_{es} + \frac{\Gamma_{se}}{2}\right) \quad , \\
 \dot{\rho}_{ee} &= \frac{i}{2}(\Omega_{ge}(\rho_{eg} - \rho_{ge}) + \Omega_{es}(\rho_{es} - \rho_{se})) - \Gamma_{eg}\rho_{ee} + \Gamma_{re}\rho_{ss} \quad , \\
 \dot{\rho}_{es} &= (\dot{\rho}_{se})^* = \frac{i}{2}(\Omega_{es}(\rho_{ee} - \rho_{ss}) - \Omega_{ge}\rho_{gs}) - \rho_{es}\left(\Delta_{es} - \frac{\Gamma_{eg} + \Gamma_{se}}{2}\right) \quad , \\
 \dot{\rho}_{ss} &= \frac{i\Omega_{es}}{2}(\rho_{se} - \rho_{es}) - \Gamma_{se}\rho_{ss}
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

bestimmt werden. Da der Dichteoperator hermitesch ist, ergeben sich anstelle von neun beschreibenden Gleichungen nur sechs.

Für die Betrachtung von Zeiten  $t \gg 1/\Gamma$ , kann aufgrund der spontanen Emission angenommen werden, dass die Terme  $\rho_{ij}$  für  $i \neq j$  sich eingependelt und konstante Werte angenommen haben. Die zeitliche Ableitung dieser Terme  $\dot{\rho}_{ij} = 0$  verschwindet und die Einträge von  $\rho$  können entkoppelt werden. Eine analytische Berechnung der Population  $\rho_{ss}$  des  $|s\rangle$ -Zustands ist theoretisch möglich [17]. Das Ausmaß dieser Rechnung übersteigt den Rahmen dieser Arbeit. Daher erfolgt die Berechnung numerisch im Rahmen einer Simulation, die in Kapitel 4 betrachtet wird, hier wird auch der Dopplereffekt Abschnitt 3.3 mit berücksichtigt, sodass die geschwindigkeitsgemittelte Population  $\bar{\rho}_{ss}$  bestimmt wird.



## 2.2 Vierniveausystem

Das Vierniveausystem lässt sich einfach durch die Erweiterung des Dreiniveausystems um ein Niveau bzw. um einen Zustand  $|r'\rangle$  konstruieren. Die Betrachtung erfolgt analog zum Dreiniveausystem.

Die beschreibenden Zustände sind somit durch  $|g'\rangle = (1, 0, 0, 0)^T$ ,  $|e'\rangle = (0, 1, 0, 0)^T$ ,  $|s'\rangle = (0, 0, 1, 0)^T$  und  $|r'\rangle = (0, 0, 0, 1)^T$  gegeben.

Das System ist in Abbildung 2.2.1 veranschaulicht. Der Hamiltonoperator

$$\mathbf{H}' = \mathbf{H}'_{\text{atom}} + \mathbf{H}'_{\text{ph}} + \mathbf{H}'_{\text{WW}} \quad (2.19)$$

setzt sich auch hier aus drei Anteilen zusammen, dem atomaren Anteil

$$\begin{aligned} \mathbf{H}'_{\text{atom}} = & \hbar [ |g'\rangle \langle g'| \cdot 0 + |e'\rangle \langle e'| \cdot \omega_{0,g'e'} \\ & + |s'\rangle \langle s'| \cdot (\omega_{0,g'e'} + \omega_{0,e's'}) \\ & + |r'\rangle \langle r'| \cdot (\omega_{0,g'e'} + \omega_{0,e's'} + \omega_{0,s'r'}) ], \end{aligned} \quad (2.20)$$

dem photonischen Anteil

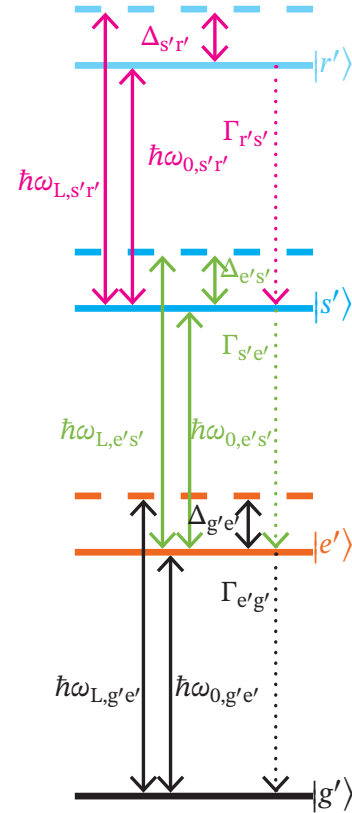
$$\begin{aligned} \mathbf{H}'_{\text{ph}} = & \hbar \left[ \omega_{L,g'e'} \cdot \left( \hat{\mathbf{a}}_{g'e'} \hat{\mathbf{a}}_{g'e'}^\dagger + \frac{1}{2} \right) \right. \\ & + \omega_{L,e's'} \cdot \left( \hat{\mathbf{a}}_{e's'} \hat{\mathbf{a}}_{e's'}^\dagger + \frac{1}{2} \right) \\ & \left. + \omega_{L,s'r'} \cdot \left( \hat{\mathbf{a}}_{s'r'} \hat{\mathbf{a}}_{s'r'}^\dagger + \frac{1}{2} \right) \right] \end{aligned} \quad (2.21)$$

und dem Anteil für die Wechselwirkungen zwischen dem Atom und den Photonen

$$\begin{aligned} \mathbf{H}'_{\text{WW}} = & \frac{\hbar}{2} \left[ \Omega_{g'e'} \cdot (|e'\rangle \langle g'| \hat{\mathbf{a}}_{g'e'} + |g'\rangle \langle e'| \hat{\mathbf{a}}_{g'e'}^\dagger) \right. \\ & + \Omega_{e's'} \cdot (|s'\rangle \langle e'| \hat{\mathbf{a}}_{e's'} + |e'\rangle \langle s'| \hat{\mathbf{a}}_{e's'}^\dagger) \\ & \left. + \Omega_{s'r'} \cdot (|r'\rangle \langle s'| \hat{\mathbf{a}}_{s'r'} + |s'\rangle \langle r'| \hat{\mathbf{a}}_{s'r'}^\dagger) \right]. \end{aligned} \quad (2.22)$$

Für die Betrachtung von vier Niveaus ist das elektrische Feld durch

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(0, t) = & \mathbf{E}_{0,g'e'} \cdot \cos(\omega_{L,g'e'} \cdot t) + \mathbf{E}_{0,e's'} \cdot \cos(\omega_{L,e's'} \cdot t) \\ & + \mathbf{E}_{0,s'r'} \cdot \cos(\omega_{L,s'r'} \cdot t) \end{aligned} \quad (2.23)$$



**Abb. 2.2.1:** Darstellung eines Vierniveausystems mit dem Grundzustand  $|g'\rangle$ , dem ersten angeregten Zustand  $|e'\rangle$ , dem zweiten angeregten Zustand  $|s'\rangle$  und dem Rydbergzustand  $|r'\rangle$ .

gegeben. Auch hier kann durch Konstruktion eines Vektorraums  $\mathbb{A} \times \mathbb{P}^1$ , hier mit  $l = 3$  eine gemeinsame Basis zur Beschreibung des Systems geschaffen werden. Die Zustände werden jetzt durch  $|g''\rangle = |g', n_{g'e'}, n_{e's'}, n_{s'r'}\rangle$ ,  $|e''\rangle = |e', n_{g'e'} - 1, n_{e's'}, n_{s'r'}\rangle$ ,  $|s''\rangle = |s', n_{g'e'} - 1, n_{e's'} - 1, n_{s'r'}\rangle$  und  $|r''\rangle = |r', n_{g'e'} - 1, n_{e's'} - 1, n_{s'r'} - 1\rangle$  gegeben, wobei  $n_{g'e'}, n_{e's'}, n_{s'r'} \in \mathbb{N}$  repräsentativ für die Anzahl der Photonen je Übergang im System stehen. Der Hamiltonoperator kann nun in der neuen Basis und unter den gleichen Voraussetzungen, die auch im Dreiniveausystem genutzt werden, mit der Drehwellennäherung ausgedrückt werden. Der Wechselwirkungsterm des Hamiltonoperators ausgedrückt durch das elektrische Feld ist durch

$$\begin{aligned} H''_{\text{WW}} = & -\frac{E(0, t)}{2} (\mathbf{d}_{e''g''} |e''\rangle \langle g''| + \mathbf{d}_{g''e''} |g''\rangle \langle e''| \\ & + \mathbf{d}_{s''e''} |s''\rangle \langle e''| + \mathbf{d}_{e''s''} |e''\rangle \langle s''| + \mathbf{d}_{s''r''} |s''\rangle \langle r''| + \mathbf{d}_{r''s''} |r''\rangle \langle s''|) \end{aligned} \quad (2.24)$$

vorgegeben. Durch die Anwendung der Transformationsmatrizen

$$U'' = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-i\omega_{L,g'e'}t} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\omega_{L,e's'}t} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-i\omega_{L,s'r'}t} \end{pmatrix}, \quad (U'')^\dagger = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\omega_{L,g'e'}t} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{i\omega_{L,e's'}t} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{i\omega_{L,s'r'}t} \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

nach  $H = (U'')^\dagger H'' U'' - i\hbar (U'')^\dagger \frac{\partial U''}{\partial t}$  auf den gesamten Hamiltonoperator, kann dieser zu

$$H = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega_{ge}}{2} & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_{ge}}{2} & -\Delta_{ge} & \frac{\Omega_{es}}{2} & 0 \\ 0 & \frac{\Omega_{es}}{2} & -\Delta_{es} - \Delta_{ge} & \frac{\Omega_{sr}}{2} \\ 0 & 0 & \frac{\Omega_{sr}}{2} & -\Delta_{es} - \Delta_{ge} - \Delta_{sr} \end{pmatrix} \quad (2.26)$$

umgeschrieben werden. Auch der Dichteoperator  $\rho''$  wird mit  $\rho = U'' \rho'' (U'')^\dagger$  zu

$$\begin{aligned} \rho &= \begin{pmatrix} \rho_{gg} & \rho_{ge} & \rho_{gs} & \rho_{gr} \\ \rho_{eg} & \rho_{ee} & \rho_{es} & \rho_{er} \\ \rho_{sg} & \rho_{se} & \rho_{ss} & \rho_{sr} \\ \rho_{rg} & \rho_{re} & \rho_{rs} & \rho_{rr} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \rho''_{gg} & \rho''_{ge} \cdot e^{i\omega_{L,ge}t} & \rho''_{gs} \cdot e^{i\omega_{L,es}t} & \rho''_{gr} \cdot e^{i\omega_{L,sr}t} \\ \rho''_{eg} \cdot e^{-i\omega_{L,ge}t} & \rho''_{ee} & \rho''_{es} \cdot e^{i(\omega_{L,es} - \omega_{L,ge})t} & \rho''_{er} \cdot e^{i(\omega_{L,sr} - \omega_{L,ge})t} \\ \rho''_{sg} \cdot e^{-i\omega_{L,es}t} & \rho''_{se} \cdot e^{i(\omega_{L,ge} - \omega_{L,es})t} & \rho''_{ss} & \rho''_{sr} \cdot e^{i(\omega_{L,sr} - \omega_{L,es})t} \\ \rho''_{rg} \cdot e^{-i\omega_{L,sr}t} & \rho''_{re} \cdot e^{i(\omega_{L,ge} - \omega_{L,sr})t} & \rho''_{rs} \cdot e^{i(\omega_{L,es} - \omega_{L,sr})t} & \rho''_{rr} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.27)$$

transformiert. Entsprechend Gleichung 2.16 wird auch hier der zugehörige Lindbladoperator  $\mathbf{L}$  für den Fall von endlichen Lebensdauern in allen angeregten Zuständen und stufenweisen Übergängen betrachtet. Es ergibt sich

$$\mathbf{L} = \begin{pmatrix} \Gamma_{eg}\rho'_{ee} & -\frac{1}{2}\Gamma_{eg}\rho_{ge} & -\frac{1}{2}\Gamma_{se}\rho_{gs} & -\frac{1}{2}\Gamma_{rs}\rho_{gr} \\ -\frac{1}{2}\Gamma_{eg}\rho_{eg} & \Gamma_{se}\rho_{ss} - \Gamma_{eg}\rho_{ee} & -\frac{1}{2}\Gamma_{eg}\rho_{es} - \frac{1}{2}\Gamma_{se}\rho_{es} & -\frac{1}{2}\Gamma_{eg}\rho_{er} - \frac{1}{2}\Gamma_{rs}\rho_{er} \\ -\frac{1}{2}\Gamma_{se}\rho_{sg} & -\frac{1}{2}\Gamma_{eg}\rho_{se} - \frac{1}{2}\Gamma_{se}\rho_{se} & \Gamma_{rs}\rho_{rr} - \Gamma_{se}\rho_{ss} & -\frac{1}{2}\Gamma_{rs}\rho_{sr} - \frac{1}{2}\Gamma_{se}\rho_{sr} \\ -\frac{1}{2}\Gamma_{rs}\rho_{rg} & -\frac{1}{2}\Gamma_{eg}\rho_{re} - \frac{1}{2}\Gamma_{rs}\rho_{re} & -\frac{1}{2}\Gamma_{rs}\rho_{rs} - \frac{1}{2}\Gamma_{se}\rho_{rs} & -\Gamma_{rs}\rho_{rr} \end{pmatrix} \quad (2.28)$$

für das betrachtete Vierniveausystem. Wird nun der in der Drehwellennäherung betrachtete Hamiltonoperator  $\mathbf{H}$  (Gleichung 2.26), der transformierte Dichteoperator  $\rho$  (Gleichung 2.27) und der Lindbladoperator  $\mathbf{L}$  (Gleichung 2.28) in Gleichung 2.15 eingesetzt, so resultieren die folgenden Gleichungen

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{gg} &= \frac{i\Omega_{ge}}{2} (\rho_{ge} - \rho_{eg}) + \Gamma_{eg}\rho_{ee} \quad , \\ \dot{\rho}_{ge} &= (\dot{\rho}_{eg})^* = \frac{i}{2} (\Omega_{ge} (\rho_{gg} - \rho_{ee}) + \Omega_{es}\rho_{gs}) - \rho_{ge} \left( i\Delta_{ge} + \frac{\Gamma_{eg}}{2} \right) \quad , \\ \dot{\rho}_{gs} &= (\dot{\rho}_{sg})^* = \frac{i}{2} (\Omega_{sr}\rho_{gr} + \Omega_{es}\rho_{ge} - \Omega_{ge}\rho_{es}) - \rho_{gs} \left( i(\Delta_{es} + \Delta_{ge}) + \frac{\Gamma_{se}}{2} \right) \quad , \\ \dot{\rho}_{gr} &= (\dot{\rho}_{rg})^* = \frac{i}{2} (\Omega_{sr}\rho_{gs} - \Omega_{ge}\rho_{er}) - \rho_{gr} \left( i(\Delta_{es} + \Delta_{ge} + \Delta_{sr}) + \frac{\Gamma_{rs}}{2} \right) \quad , \\ \dot{\rho}_{ee} &= \frac{i\Omega_{ge}}{2} (\rho_{eg} - \rho_{ge}) + \frac{i\Omega_{es}}{2} (\rho_{es} - \rho_{se}) + \Gamma_{se}\rho_{ss} - \Gamma_{eg}\rho_{ee} \quad , \\ \dot{\rho}_{es} &= (\dot{\rho}_{se})^* = \frac{i}{2} (\Omega_{es} (\Omega_{sr}\rho_{er} + \rho_{ee} - \rho_{ss}) - \Omega_{ge}\rho_{gs}) - \rho_{es} \left( i\Delta_{es} + \frac{\Gamma_{eg} + \Gamma_{se}}{2} \right) \quad , \\ \dot{\rho}_{er} &= (\dot{\rho}_{re})^* = \frac{i}{2} (\Omega_{sr}\rho_{es} - \Omega_{es}\rho_{sr} - \Omega_{ge}\rho_{gr}) - \rho_{er} \left( i(\Delta_{es} + \Delta_{sr}) + \frac{\Gamma_{ge} + \Gamma_{rs}}{2} \right) \quad , \\ \dot{\rho}_{ss} &= \frac{i}{2} (\Omega_{es} (\rho_{se} - \rho_{es}) + \Omega_{sr} (\rho_{sr} - \rho_{rs})) + \Gamma_{rs}\rho_{rr} - \Gamma_{se}\rho_{ss} \quad , \\ \dot{\rho}_{sr} &= (\dot{\rho}_{rs})^* = \frac{i}{2} (\Omega_{sr} (\rho_{ss} - \rho_{rr}) - \Omega_{es}\rho_{er}) - \rho_{sr} \left( i\Delta_{sr} + \frac{\Gamma_{rs} + \Gamma_{se}}{2} \right) \quad , \\ \dot{\rho}_{rr} &= \frac{i\Omega_{sr}}{2} (\rho_{rs} - \rho_{sr}) - \Gamma_{rs}\rho_{rr} \end{aligned} \quad (2.29)$$

für die zeitliche Entwicklung der Populationen und der Kohärenzen zwischen den Zuständen. Auch hier reduziert sich die Anzahl der notwendigen Gleichungen zur Beschreibung des Systems aufgrund der Hermitizität des Dichteoperators. Genauso wie im Dreiniveausystem kann für eine zeitliche Skala  $t \gg 1/\Gamma$  ein Ansatz zur Berechnung

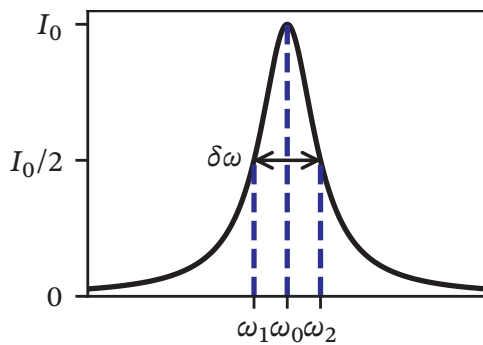
der Population im  $|r\rangle$  - Zustand gemacht werden. Durch das zusätzliche Niveau steigt die Komplexität des Problems deutlich und wird deshalb ebenfalls im Rahmen einer Simulation numerisch behandelt. Näheres ist in Kapitel 4 zu finden. Auch hier wird der Dopplereffekt Abschnitt 3.3 berücksichtigt und die geschwindigkeitsgemittelte Population  $\tilde{\rho}_{rr}$  bestimmt.

## 3 Linienbreiten und -profile

Bei der Betrachtung atomarer Übergänge können selbst in einem einfachen Zweiniveausystem verschiedene Verbreiterungsmechanismen der Linienbreite auftreten, diese werden nachfolgend eingeführt.

### 3.1 Natürliche Linienbreite

Die Intensitätsverteilung einer solchen spontanen Emission zeigt dabei ein Verhalten, wie in Abbildung 3.1.1 gezeigt. Die Linienbreite oder auch Halbwertsbreite wird auf halber Höhe des Intensitätsmaxima ausgelesen (engl.: full width at half maximum, FWHM).



**Abb. 3.1.1:** Das Linienprofil einer Spektrallinie bei spontaner Emission, wobei  $I_0$  die Intensität und Amplitude des Signals bei der Frequenz  $\omega_0$  angibt, und  $\omega_1$  sowie  $\omega_2$  die Grenzfrequenzen auf halber Höhe des Maximums sind, definiert mit  $\delta\omega = \omega_2 - \omega_1$  die Breite des Profils.

Geschieht der Übergang aus einem energetisch höher liegenden Niveau ohne äußere Einflüsse und somit durch eine spontane Emission, ist also nur durch die endliche Abstrahldauer des Atoms begrenzt, so wird die dabei entstehende Linienbreite als natürliche Linienbreite bezeichnet. Tritt ein spontaner Übergang zwischen verschiedenen Niveaus ein, so ist die natürliche Linienbreite durch die Lebensdauern dieser Zustände bestimmt. Wird die Heisenbergsche Unschärferelation für Energie und Zeit

$$\Delta E \Delta \tau \geq \frac{h}{2\pi} \quad (3.1)$$

betrachtet, so kann also für eine bestimmte Lebensdauer  $\tau_i$  eines Zustandes die entsprechende Energie nur nach  $\Delta E_i = h/(2\pi\tau_i)$  bestimmt werden [19].

Nach  $\Delta\omega = \Delta E/h = 1/\tau$  wird die Unschärfe der Frequenz für einen Übergang definiert, sodass entsprechend die natürliche Linienbreite bei einer spontanen Emission zwischen

zwei angeregten Zuständen, von  $|j\rangle$  nach  $|i\rangle$  durch [19]

$$\delta\omega_{n,ji} = \left( \frac{1}{\tau_j} + \frac{1}{\tau_i} \right) \quad (3.2)$$

ausgedrückt werden kann.

### 3.2 Linienprofil

Das Intensitätsprofil der natürlichen Linienbreite entspricht einem Lorentzprofil nach [19, 20]

$$f_{\text{Lorentz}}(\omega, \omega_0, \gamma) = \frac{C}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma/2)^2}, \quad C = \left( \frac{\gamma}{2} \right)^2, \quad (3.3)$$

da bei einer spontanen Emission die Wahrscheinlichkeit der Emission für alle Teilchen im gleichen Zustand gleich ist. Somit ergibt sich ein homogenes Spektralprofil mit einem homogenen Verbreiterungseffekt. Ist die Wahrscheinlichkeit geschwindigkeitsabhängig, so liegt ein inhomogener Fall vor und die Beschreibung wird über ein Gaußprofil nach [19]

$$f_{\text{Gauß}}(\omega, \omega_0, \sigma) = C \cdot \exp\left( \frac{-(\omega - \omega_0)^2}{2\sigma^2} \right), \quad C = 1 \quad (3.4)$$

vorgenommen, wobei  $C$  in beiden Fällen die Normierung in der Amplitude vorgibt. Um homogene und inhomogene Verbreiterungseffekte zu berücksichtigen wird eine Faltung eines Lorentzprofils mit einem Gaußprofil betrachtet [20, 21]

$$f_{\text{Voigt}}(\omega, \omega_0, \sigma, \gamma) = (f_{\text{Gauß}} * f_{\text{Lorentz}})(\omega, \omega_0, \sigma, \gamma) \quad (3.5)$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} f_{\text{Gauß}}(\omega', \sigma) f_{\text{Lorentz}}(\omega, \omega_0, \omega', \gamma) d\omega', \quad (3.6)$$

hierraus ergibt sich das sogenannte Voigt-Profil. Die Breite des Voigt-Profiles setzt sich nach [21]

$$\delta\omega_V = 0,535 \cdot \delta\omega_L + \sqrt{0,2166 \cdot \delta\omega_L^2 + \delta\omega_G^2} \quad (3.7)$$

zusammen aus der Breite des Lorentzprofils  $\delta\omega_L = \gamma$  und aus der Breite des Gaußprofils  $\delta\omega_G = \sqrt{8 \ln(2)}\sigma$

### 3.3 Dopplerverbreiterung

Bewegen sich Moleküle bei ihrer Anregung mit einer Geschwindigkeit  $\mathbf{v} = (v_x, v_y, v_z)^T$ , so muss der Dopplereffekt berücksichtigt werden. Der Dopplereffekt beschreibt eine Verschiebung in der Frequenz. So wird die Frequenz  $\omega$ , ausgehend vom Laborsystem, einer sich in  $\mathbf{k}$ -Richtung ausbreitenden Welle zu  $\omega' = \omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$ . Trifft nun solch eine Welle mit der Frequenz  $\omega$  und dem Wellenvektor  $\mathbf{k}$  auf ein Atom, so kann nur dann eine Anregung stattfinden, wenn die durch den Dopplereffekt verschobene Frequenz  $\omega'$  der Resonanzfrequenz  $\omega_0$  des anzuregenden Zustands, im Ruhesystem des Atoms entspricht. Somit muss  $\omega = \omega_0 + \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$  gelten. Durch das Skalarprodukt werden nur noch Geschwindigkeiten parallel zum Laserstrahl berücksichtigt. Wird das System im thermischen Gleichgewicht betrachtet, so kann eine Maxwell-Boltzmann Geschwindigkeitsverteilung

$$p(v_z) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \cdot v_w} \exp\left(-\frac{v_z^2}{v_w^2}\right), \quad v_w = (2k_B T/m)^{1/2} \quad (3.8)$$

[22] für Atome mit der Masse  $m$  angenommen werden,  $k_B$  gibt die Boltzmann-Konstante und  $T$  die Temperatur an. Über das Linienprofil einer Gaußfunktion

$$I(\omega) = I(\omega_0) \cdot \exp\left[-\left(\frac{\omega - \omega_0}{\omega_0 v_w/c}\right)^2\right] \quad (3.9)$$

erschließt sich über die Bedingung  $f_{\text{Gauß}}(\omega_1) = f_{\text{Gauß}}(\omega_2) = f_{\text{Gauß}}(\omega_0)/2$  eine Dopplerverbreiterung von

$$\delta\omega_{\text{Doppler}} = \omega_0 \cdot 2\sqrt{\ln(2)} \cdot v_w/c. \quad (3.10)$$

Dabei ist  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $v_w$  beschreibt die wahrscheinlichste Geschwindigkeit der Atome, wird diese in Gleichung 3.10 eingesetzt, so ergibt sich

$$\delta\omega_{\text{Doppler}} = \frac{\omega_0}{c} \sqrt{\frac{8k_B T \ln(2)}{m}} \quad (3.11)$$

für die Dopplerverbreiterung [19, 21].

### 3.4 Flugzeitverbreiterung

Wenn keine konstante Anregung der Atome oder Moleküle stattfindet, sondern diese den Laserstrahl durchqueren, so kann die Flugzeitverbreiterung relevant werden. Diese Art der Verbreiterung tritt dann ein, wenn die Zeit, in der das Atom oder Molekül mit dem Laserfeld wechselwirkt, geringer ausfällt, als die Lebensdauer des angeregten Zustands. Für

eine allgemeine Betrachtung, in der berücksichtigt wird, dass in der Bewegung der Atome eine Geschwindigkeitsverteilung vorliegt, wird die Maxwell-Boltzmann-Verteilung aus Gleichung 3.8 angenommen. Auch diese Art der Verbreiterung kann durch ein Gaußprofil

$$I(\omega) = I(\omega_0) \cdot \exp \left[ - \left( \frac{d(\omega - \omega_0)}{2v\sqrt{2}} \right)^2 \right] \quad (3.12)$$

[21] beschrieben werden, wobei  $v$  die Geschwindigkeit des Teilchens senkrecht zum Laserstrahl ist und  $d$  den durchsetzten Strahldurchmesser angibt. So ergibt sich für die Flugzeit mit der mittleren Geschwindigkeit  $\bar{v}$  eine Verbreiterung nach [21]

$$\delta\omega_{\text{Flugzeit}} = \frac{4\bar{v}\sqrt{2\ln(2)}}{d}, \quad \bar{v} = \sqrt{\frac{8k_B T}{m\pi}}. \quad (3.13)$$

### 3.5 Druckverbreiterung

Werden mehrere Teilchen und nicht nur ein einzelnes Atom oder Molekül betrachtet, so muss auch die hierdurch entstehende Stoß- bzw. Druckverbreiterung berücksichtigt werden. Durch die Anwesenheit weiterer Teilchen in einem bestimmten Abstand  $R$  zueinander, finden Verschiebungen der internen Energieniveaus je nach Struktur der betreffenden Teilchen statt. Die Richtung der Verschiebung ist von dem durch den Abstand  $R$  hervorgerufenem Potential zwischen den Teilchen abhängig. Die Verschiebung ist positiv für ein repulsives Potential und negativ für ein attraktives Potential zwischen den den Teilchen. Sowohl der Abstand  $R$  als auch die dadurch hervorgerufene Frequenzverschiebung  $\omega'_0 = \omega_0 + N\bar{v}\sigma^s$  der Niveaus unterliegen einer statistischen Verteilung. Zwischen den Teilchen treten elastische und auch inelastische Stöße auf, welche Einfluss auf die Lebensdauer angeregter Zustände haben. Für diese Art der Verbreiterung ergibt sich ein Lorentzprofil [19, 23]

$$I(\omega) = I_0 \cdot \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0 - N\bar{v}\sigma_s)^2 + (N\bar{v}\sigma^b)^2}. \quad (3.14)$$

Der Stoßquerschnitt  $\sigma_s = \sigma_{\text{el}}^s + \sigma_{\text{ion}}^s$  berücksichtigt die Verschiebung in der Frequenz, mit einem elastischen Stoßanteil des Rydbergelektrons und dem Stoßanteil des Rydbergions [23]. Der andere Stoßquerschnitt  $\sigma_b = 1/2(\sigma_{\text{el}}^b + \sigma_{\text{inel}} + \sigma_{\text{ion}}^b)$  berücksichtigt sowohl den elastischen als auch den inelastischen Stoßanteil des Rydbergelektrons und dem Stoßanteil des Rydbergions [23]. Die Druckverbreiterung

$$\delta\omega_{\text{Druck}} = 2N\bar{v}\sigma^b \quad (3.15)$$

setzt sich zusammen aus der Dichte der miteinander stoßenden Teilchen  $N$ , der mittleren Geschwindigkeit  $\bar{v}$  und dem Stoßquerschnitt  $\sigma^s$ .



### 3.6 Leistungsverbreiterung

Die Leistungsverbreiterung leistet einen signifikanten Beitrag ab Intensitäten  $I$  nahe der Sättigungintensität  $I_{\text{sat}}$ . Die Sättigungintensität  $I_{\text{sat}}$  ist diejenige Intensität, bei der in der Absorption eine Sättigung beginnt einzutreten. Der Absorptionskoeffizient

$$\kappa(\omega, I) = N\sigma_0 \frac{\Gamma^2/4}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{4}\Gamma^2(1 + I/I_{\text{sat}})} \quad (3.16)$$

mit der Besetzungsdichte  $N$  verhält sich entsprechend einem Lorentzprofil womit die Leistungsverbreiterung zu den homogenen Verbreiterungsarten gehört. Die Größe  $\sigma_0$  definiert den Resonanzquerschnitt. Dieser beschreibt die maximale Absorption bei der Resonanzfrequenz  $\omega_0$ . Demnach ergibt sich

$$\delta\omega_{\text{Leistung}} = \Gamma \sqrt{1 + \frac{I}{I_{\text{sat}}}} \quad , \quad I_{\text{sat}} = \Gamma \cdot \frac{\pi\hbar c}{3\lambda^3} \quad (3.17)$$

für die Leistungsverbreiterung der Spektrallinie, mit der Wellenlänge  $\lambda = 2\pi c/\omega_0$ . Für  $I = I_{\text{sat}}$  ergibt sich also ein Faktor von  $\sqrt{2}$  für die Verbreiterung. Für die Sättigungsintensität kann außerdem über

$$\frac{I}{I_{\text{sat}}} = 2 \left( \frac{\Omega}{\Gamma} \right)^2 \quad (3.18)$$

ein Zusammenhang zur Rabi-Frequenz hergestellt werden [8].



## 4 Simulationen der Population

In diesem Kapitel geht es um die Simulation der zuvor in Kapitel 2 beschriebenen Drei- und Vierniveausysteme und die Bestimmung der geschwindigkeitsgemittelten Populationen  $\tilde{\rho}_{ss}$  im Dreiniveau- und  $\tilde{\rho}_{rr}$  im Vierniveausystem, abhängig von verschiedenen Rabi-Frequenzen der einzelnen Übergänge. Diese wurden in der Programmiersprache Python mit dem Paket QuTiP („Quantum Toolbox in Python“), über einen numerischen Ansatz betrachtet [24, 25].

### 4.1 Realisierung

Zur Umsetzung wird QuTiP verwendet, dieses Paket bietet eine frei zugängliche Möglichkeit zur Simulation von dynamischen quantenmechanischen Systemen. Das Paket nutzt dabei andere bereits existierende Python-Pakete wie Numpy, Scipy und Cython [24, 25].

Die Simulation wird zunächst für einen allgemeineren Fall betrachtet, um ein weiter gefasstes Verständnis für die Dynamik der betrachteten Systeme zu erlangen. In der Simulation werden sowohl Leistungsverbreiterungseffekte als auch die Dopplerverbreiterung berücksichtigt.

Zunächst werden dafür die Zustände der Niveaus entsprechend wie in Abschnitt 2.1 und Abschnitt 2.2 zu Beginn eingeführt definiert. Feste Größen welche vorgegeben werden müssen, sind die Linienbreiten  $\Gamma_{ge} = 6$  MHz,  $\Gamma_{es} = 0,1$  MHz und  $\Gamma_{sr} = 3$  MHz, sowie die Beträge der Wellenvektoren  $|\mathbf{k}|$  der Laserstrahlen über die entsprechenden Wellenlängen  $\lambda_{uv} \approx 226$  nm,  $\lambda_{grün} \approx 540$  nm und  $\lambda_{ir} \approx 835$  nm. Außerdem muss für die Verstimmung, die Rabi-Frequenzen sowie für die Geschwindigkeiten ein Bereich definiert werden.

Für Stickstoffmonoxid sind in der Literatur keine eindeutigen Werte zur Linienbreite bekannt, sodass hier ein System konstruiert wird, das die Möglichkeit eröffnet verschiedene Effekte zu beobachten. Außerdem sind Untersuchungen zu NO im Allgemeinen hauptsächlich unter der Verwendung von gepulsten Lasersystemen vorliegend [14]. Wie in Kapitel 1 beschrieben, werden in dem betrachteten Kontext dieser Arbeit ausschließlich CW-Laser verwendet. Für die erste Linienbreite  $\Gamma_{ge}$  wurde aus [18] die Linienbreite für Rubidium entnommen. Für den nächsten Übergang wurde die angenommene Linienbreite  $\Gamma_{es}$  stark reduziert. Der  $H^2\Sigma^+$  besitzt sowohl s-Charakter (38 %) und d-Charakter (62 %) [26] und ist somit aus atomarer Sicht „doppelt“ dipolverboten, da auch der  $A^2\Sigma^+$  s- und d-Charakter hat. Dies wird außerdem durch Beobachtungen aus dem Experiment

gestützt [6]. Für die dritte Linienbreite  $\Gamma_{sr}$  wurde ein Wert zwischen den anderen beiden Linienbreiten in der selben Größenordnung von MHz gewählt. Der Zerfall aus dem Rydbergzustand  $|r\rangle$  wird dabei nicht durch sponatane Emission, sondern durch die Prädissoziation des Moleküls bestimmt [12].

Die Verstimmung wurde so variiert, dass die simulierten geschwindigkeitsgemittelten Populationskurven zu  $\tilde{\rho}_{ii}$ ,  $i \in \{s, r\}$ , möglichst vollständig bis zur Abflachung abgebildet werden, sodass eine Voigt-Fitfunktion angelegt werden kann. Die Rabifrequenzen der Übergänge werden so verteilt, dass bei einer Darstellung des Verhaltens der Breiten und Amplituden in den Übergängen über die entsprechenden Rabifrequenzen der Kurvenverlauf deutlich wird. In der Simulation werden die Berechnungen für jede mögliche Kombination der definierten Rabifrequenzen durchgeführt. Die Rabifrequenzen werden entsprechend der Größenordnung der jeweiligen Linienbreiten gewählt.

Für die Betrachtung des Dopplereffekts werden die Projektion der Geschwindigkeiten  $\mathbf{v}$  entlang der der Wellenvektoren  $\mathbf{k}$  der Laserstrahlen betrachtet. Die Auswahl der Geschwindigkeitsklassen wurde unter zwei Aspekten getroffen, einerseits durch die Selektivität der Laser und andererseits durch die Notwendigkeit die Rechenkomplexität und somit die Rechendauer zu reduzieren. Bei mehrfacher Wiederholung zur besseren Erfassung und Anpassung der Systeme wurde ein Kompromiss zwischen vertretbaren Rechenzeiten und gerade so vielen Geschwindigkeitsklassen, wie nötig, um eine hinreichend genaue Beschreibung des Systems zu gewährleisten geschlossen. Durch den Dopplereffekt und die Selektivität der Laser können wie in Abschnitt 3.3 erklärt nur Teilchen angeregt werden, die sich mit einer Geschwindigkeit  $\mathbf{v}$  bewegen, sodass die Frequenz des Lasers als resonant wahrgenommen wird. Daher ist die Anzahl der Geschwindigkeitsklassen, die signifikant zur Anregung beitragen, begrenzt. Die Rechnung selbst wurde ähnlich wie in Abschnitt 2.1 und Abschnitt 2.2 beschrieben auch in der Simulation eingeführt, wobei zusätzlich der Dopplereffekt mit einbezogen wurde. Da im Experiment nur jeweils der oberste Laser, also im Dreiniveausystem der Laser mit der Wellenlänge im grünen Bereich und im Vierniveausystem der Laser mit der Wellenlänge im infraroten Bereich, gescannt wird, wurde auch in der Simulation berücksichtigt, nur für diesen Übergang eine Verstimmung in der Frequenz einzuführen.

Zur Bestimmung der Population im obersten angeregten Zustand wird die von QuTiP bereitgestellte „steadystate“ Funktion mit der „direct“ Methode zur Lösung des linearen Gleichungssystems über eine „LU-Zerlegung“ verwendet [25]. Diese Funktion löst für  $t \rightarrow \infty$  den stationären Zustand,

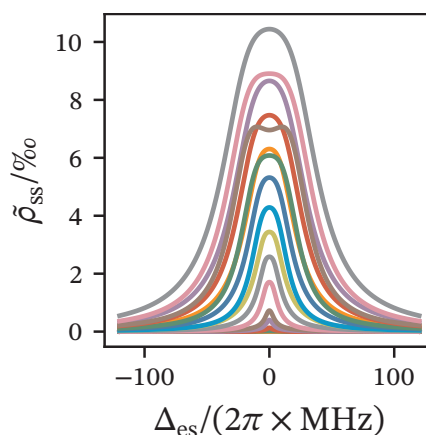
$$\frac{d\rho}{dt} = 0 \quad , \quad (4.1)$$

der in Gleichung 2.15 beschriebenen Lindblad-Gleichung. Der Funktion wird der Hamiltonoperator des System zusammen mit einer Liste aller möglichen Zerfallsprozesse, stellvertretend für den Lindbladoperator übergeben. Aus der Lösung dieser Funktion wurde der Erwartungswert für  $\rho_{ss}$  im Dreiniveau- und für  $\rho_{rr}$  im Vierniveausystem bestimmt, dieser wurde dann für die vollständige Berücksichtigung des Dopplereffekts mit der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung (Gleichung 3.8) für die Projektion in eine Richtung multipliziert. Der Realteil des Ergebnisses für jede Kombination von vorge-

gebenen Rabifrequenzen bildet mit der geschwindigkeitsgemittelten Population  $\tilde{\rho}_{ii}$  das Resultat der Simulation. Der Aufbau des Rechenprozesses, welcher durchlaufen wird, erfolgt über mehrere separate Funktionen, diese werden über das multiprocessing-Modul [27] für Python aufgerufen. Die Berechnung erfolgt in einer Schleife über ein Array aus allen möglichen Kombinationen von vorgegebenen Rabifrequenzen für die unterschiedlichen Übergänge. Die Simulation wird unter Zuhilfenahme des multiprocessing-Moduls in Python parallelisiert. Im Laufe der Untersuchungen der Simulationsergebnisse wurden in beiden System verschiedene Effekte beobachtet. Einer der auftretenden Effekte ist die elektromagnetisch induzierte Transparenz (engl.: Electromagnetically Induced Transparency, EIT). Auch der Autler-Townes-Effekt (engl.: Autler-Townes Splitting, AT) wurde beobachtet. Für das Auftreten beider Effekte sind sowohl ein sogenannter „Probe“-Laser mit einem schwachen Feld als auch ein „Coupling“-Laser mit einem stärkeren Feld erforderlich. Der EIT-Effekt zeigt sich durch eine Reduktion oder das Verschwinden des erwarteten Absorptionsmaxima einer Kurve, während der AT-Effekt ein ähnliches Verhalten aufweist, bei dem sich zwei gespaltene Linien im Spektrum bilden [28]. Beide Effekte sind von Interesse und Gegenstand der Forschung. Diese Arbeit zielt allerdings darauf ab eine Beschreibung zum NO-Sensor zu liefern, daher liegt der Fokus auf im Experiment vorkommenden Effekten. Beide der beschriebenen Effekte treten in dem betrachteten Regime des Experiments nicht auf und werden deshalb nicht weiter betrachtet.

## 4.2 Dreiniveausystem

Wird nun das Dreiniveausystem betrachtet und hier die zuvor erwähnte „steadystate“ Gleichung (Gleichung 4.1) für den  $|s\rangle$ -Zustand in der Simulation gelöst, so ergeben sich Kurven zum Verlauf der geschwindigkeitsgemittelten Population  $\tilde{\rho}_{ss}$  über die Verstimmung im grünen Laser, wie in Abbildung 4.2.1 zu sehen ist. Jede der Kurven hat eine andere Kombination von Rabifrequenzen für die entsprechenden Übergänge im Niveausystem. Durch das Anfitzen einer Voigt-Funktion (Gleichung 3.6) an diese Kurven kann sowohl die Amplitude als auch die Breite ausgelesen werden. Diese ausgelesenen Breiten und Amplituden werden nun im folgenden Abschnitt näher auf ihr Verhalten abhängig von den eingestellten Rabifrequenzen der Übergänge untersucht. Eine der Kurven in Abbildung 4.2.1 zeigt den zuvor in Abschnitt 4.1 erwähnten EIT-Effekt. Durch das Auftreten dieses Effekts werden die extrahierten Breiten und Amplituden verfälscht, da der EIT-Effekt zu einer Verringerung des Maxima führt.



**Abb. 4.2.1:** Abbildung der geschwindigkeitsgemittelten Population  $\tilde{\rho}_{ss}$ , im Dreiniveausystem über die Verstimmung  $\Delta_{es}$ , wobei jede Kurve verschiedene Kombinationen von Rabifrequenzen besitzt.

### 4.2.1 Allgemeines Verhalten

In Abbildung 4.2.3 wird der Verlauf der Amplitude  $A$  und der Breite  $B$  der geschwindigkeitsgemittelten Population  $\tilde{\rho}_{ss}$  des  $|s\rangle$ -Zustands in Einheiten von  $\Gamma_{ge}$ , für feste Rabifrequenzen  $\Omega_{es}$  im Übergang von  $|e\rangle$  nach  $|s\rangle$  und für durchlaufende Rabifrequenzen  $\Omega_{ge}$ , ebenfalls in Einheiten von  $\Gamma_{ge}$  im Übergang von  $|g\rangle$  nach  $|e\rangle$  der simulierten geschwindigkeitsgemittelten Populationskurven aufgezeigt. Dabei ist links der allgemeine Kurvenverlauf und rechts eine Detailansicht abgebildet.

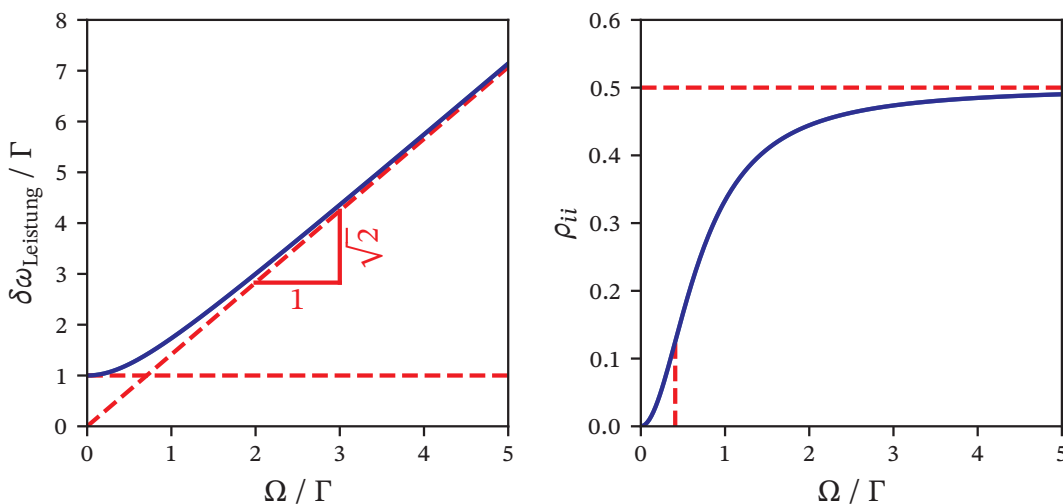
Jede der abgebildeten Kurven hat eine andere Kombination von Rabifrequenzen. Wird die Breite  $B/\Gamma_{ge}$  betrachtet, so ist zunächst mit anwachsender Rabifrequenz über die Linienbreite  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge}$  ein linearer Anstieg zu verzeichnen. Die Breite ist somit direkt proportional zu  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge}$ . Der Proportionalitätsfaktor lässt sich dabei auf  $\sim \sqrt{2}$  bestimmen. Hier ist der Effekt der Leistungsverbreiterung (Gleichung 3.17) durch den Anstieg und eine Ähnlichkeit zum Zweiniveausystem gut sichtbar. Wird Gleichung 3.18 in Gleichung 3.17 eingesetzt so ergibt sich

$$\frac{\delta\omega_{\text{Leistung}}}{\Gamma} = \sqrt{1 + 2 \left(\frac{\Omega}{\Gamma}\right)^2} \quad (4.2)$$

ebenfalls für eine Skalierung über  $\Gamma$ . Auch für die Population

$$\rho_{ii} = \frac{(\Omega/\Gamma)^2}{1 + 2(\Omega/\Gamma)^2} \quad (4.3)$$

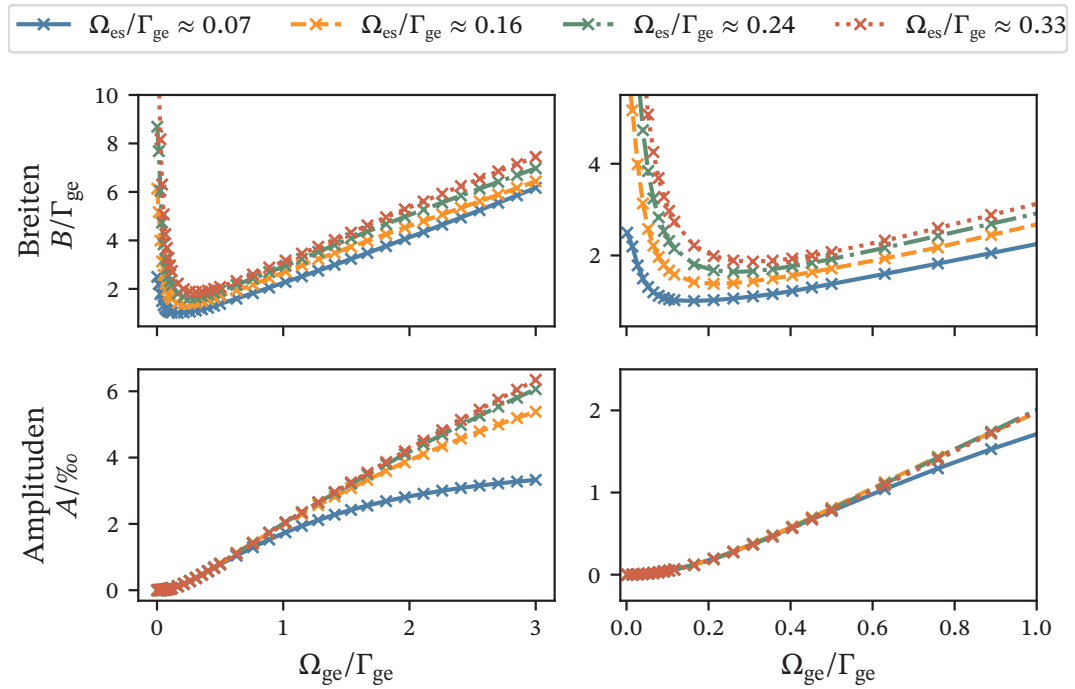
kann durch Lösen der Blochgleichungen im Zweiniveausystem eine Gleichung aufgestellt werden [15]. In Abbildung 4.2.2 sind die beiden Gleichungen zur Beschreibung der Breite in Abhängigkeit von  $\Gamma$  (Gleichung 4.2) und der Population (Gleichung 4.3) im Zweiniveausystem veranschaulicht. Es kann also festgestellt werden, dass sich das



**Abb. 4.2.2:** Veranschaulichung des Verhaltens der Breite  $\delta\omega_{\text{Leistung}}$  in Einheiten von  $\Gamma$  links und rechts der Population  $\rho_{ii}$ . Beide Größen sind über  $(\Omega/\Gamma)$  aufgetragen.

Dreiniveausystem in diesem Regime, und vor allem für die blaue Kurve, bei kleinen  $\Omega_{\text{es}}$ , analog zu einem Zweiniveausystem verhält. Die Krümmung und der steile Anstieg in der Breite für kleine Rabi-Frequenzen  $\Omega_{\text{ge}}$  tritt hier aufgrund von numerischen Fehlern aus der Simulation und daraus resultierenden Fitfehlern auf.

In Abbildung 4.2.4 sind diese Fehler beispielhaft dargestellt. Gezeigt sind für die blaue Kurve aus Abbildung 4.2.3, bei fester Rabi-Frequenz  $\Omega_{\text{es}}$  und drei verschiedenen Werten für  $\Omega_{\text{ge}}$  die drei entsprechenden Kurven für  $\tilde{\rho}_{\text{ss}}$ . In der Graphik ganz links ist es nicht möglich, eine Voigt-Funktion (Gleichung 3.6) sinnvoll an die Daten anzupassen, die geschwindigkeitsgemittelte Population  $\tilde{\rho}_{\text{ss}}$ , erfährt bei  $\Delta_{\text{es}} = 0$  eine Verringerung gegenüber umliegenden Werten in der Verstimmung, außerdem ist die Größenordnung von  $\tilde{\rho}_{\text{ss}}$  mit  $10^{-15}$  äußerst gering. Für die mittlere Graphik kann trotz auftretender numerischer Problematiken ein Voigt-Fit an die Kurve angelegt werden, wobei die Kurve durch den Fit aber nicht vollständig erfasst wird. In der Graphik ganz rechts liegt der Fit auf der Kurve, erfasst die Amplitude vollständig und kann somit auch an der passenden Stelle die Breite auslesen. Zur Umsetzung der Fits wird die „curve\_fit“ Funktion aus dem Python-Paket `scipy` mit dem Levenberg–Marquardt Algorithmus verwendet [29]. Vermutlich findet hier eine Einschränkung der Simulation durch numerischer Präzi-



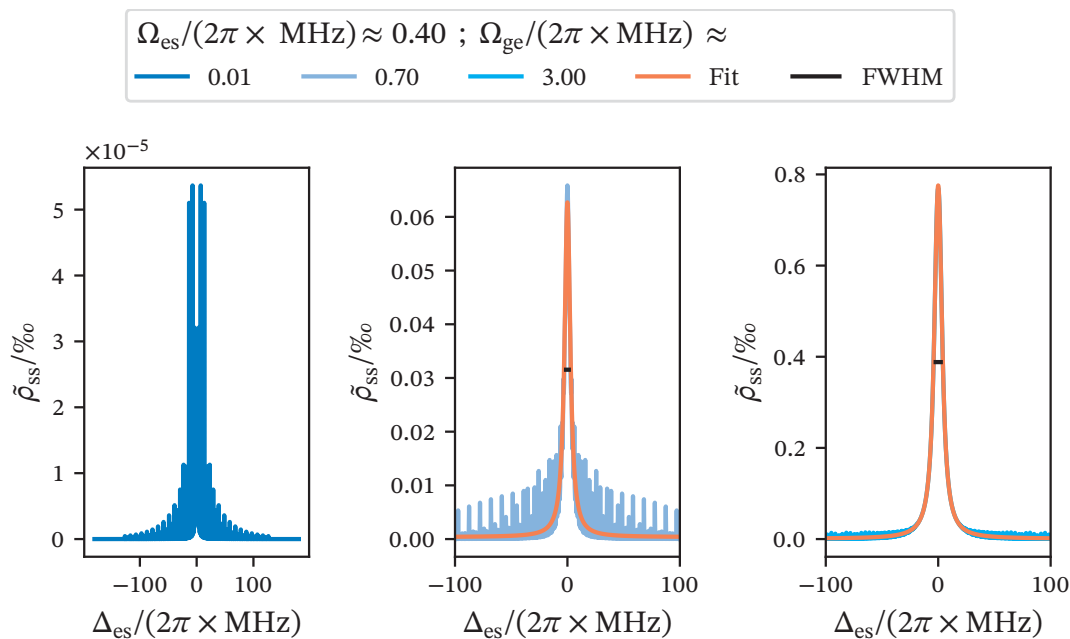
**Abb. 4.2.3:** Abbildung des Amplituden- und Breitenverlaufs der geschwindigkeitsgemittelten Population im  $|s\rangle$ -Zustand eines Dreinevensystems bei durchgeführter Rabi-Frequenz  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang und fest gewählten Rabi-Frequenzen  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang. Die Amplituden und Breiten sind aus Voigt-Fits extrahiert.

sion und numerische Auflösung für sehr kleine Werte statt, mit anwachsendem  $\Omega_{ge}$  verschwinden diese Effekte und die den Fits entnommenen Amplituden und Breiten werden zuverlässiger. Für  $\Omega_{es}/\Gamma_{ge} \approx 0,07$  ist es entsprechend der Qualität der mittleren Graphik aus Abbildung 4.2.4 ab  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge} \approx 0,08$  möglich die Daten zu fiten. Für  $\Omega_{es}/\Gamma_{ge} \approx 0,16$  ist es ab  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge} \approx 0,1$ , für  $\Omega_{es}/\Gamma_{ge} \approx 0,24$  und  $\Omega_{es}/\Gamma_{ge} \approx 0,33$  ist es ab  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge} \approx 0,26$  möglich. Entsprechend kann nur für größere  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge}$  sinnvoll das Verhalten beschrieben werden.

Zu erwarten wäre für die Breiten, für kleiner werdende Rabi-Frequenzen, ein sich fortsetzender flacher Verlauf bis zu einer festen Breite, der natürlichen Linienbreite, wie links in Abbildung 4.2.2 gezeigt. Wird der Verlauf der Kurven im dargestellten Bereich genauer betrachtet, so ist zu erkennen, dass für die Breite die Rabi-Frequenz  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang einen nur sehr geringen Einfluss auf die Form der Kurve hat, sondern hauptsächlich eine Verschiebung in dieser vorgibt. Dies deutet darauf hin, dass die Beiträge durch die beiden Rabi-Frequenzen zur Breite unabhängig voneinander sind.

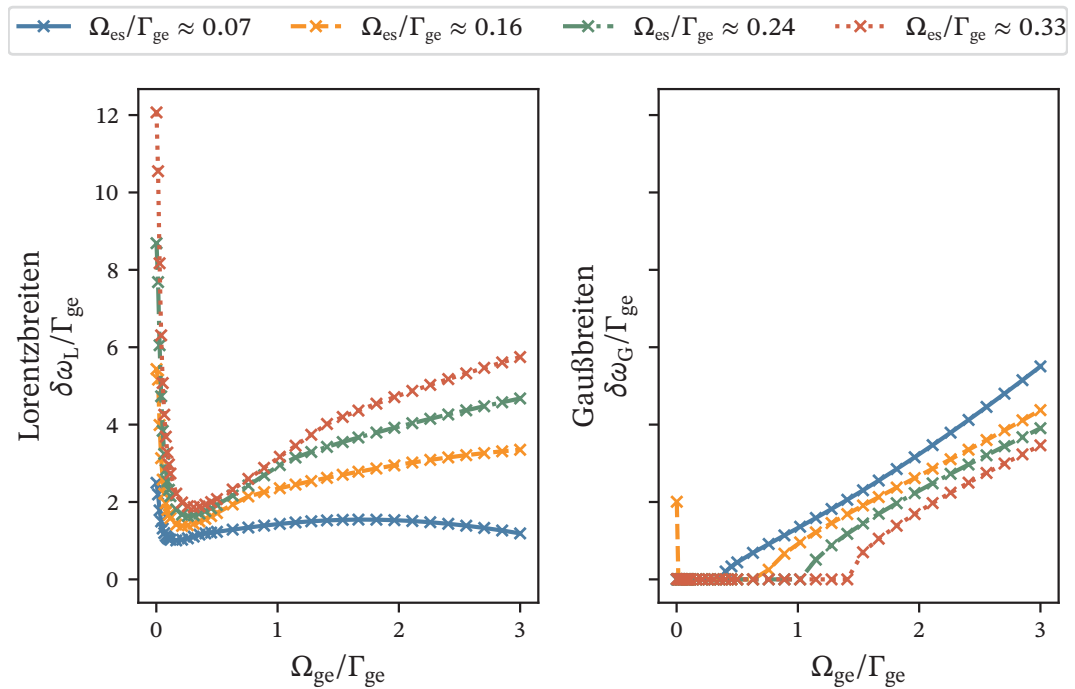
Wird nun Abbildung 4.2.5 betrachtet, so kann besser differenziert werden, wie die beiden hier berücksichtigten Verbreiterungsmechanismen ihren Beitrag zur Breite leisten. Abgebildet sind die Lorentzbreite  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreite  $\delta\omega_G$ , die ebenfalls über die Parameter  $\gamma$  und  $\sigma$  aus dem Voigt-Fit ausgelesen werden können. Allgemein ist sichtbar,





**Abb. 4.2.4:** Darstellung von drei simulierten Kurven der geschwindigkeitsgemittelten Population im  $|s\rangle$ -Zustand in einem Dreiniveausystem bei fest gewählter Rabi­frequenz  $\Omega_{es} = 2\pi \times 0,4 \text{ MHz}$  im zweiten Übergang und drei verschiedenen Rabi­frequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang über die Verstimmung  $\Delta_{es}$  im oberen Übergang. Über den angelegten Voigt-Fit wird die Amplitude und die Breite der Kurve extrahiert.

dass die Lorentzbreiten mit einer Verschiebung aus der natürlichen Linienbreiten und die Gaußbreiten ohne eine Verschiebung starten. Hier gilt gleiches bezüglich der Qualität der Fits wie zuvor im Bezug auf Abbildung 4.2.3 erwähnt. Für kleine Rabi­frequenzen, überwiegt zunächst die Lorentzbreite, somit dominiert die Leistungs­verbreiterung über die Dopplerverbreiterung, da die Gaußbreiten zunächst keinen Beitrag liefern. Die Leistungs­verbreiterung nimmt linear zu, bis die Dopplerverbreiterung einsetzt, dort erfährt die Lorentzbreite in ihrem Verlauf einen Knick. Danach steigt die Lorentzbreite weiter an, allerdings bei einer geringeren Steigung, der Einfluss der Leistungs­verbreiterung nimmt also bei ansteigender Leistung weniger stark zu. Die Gaußbreite startet mit einer konkaven Krümmung und entwickelt sich dann scheinbar, bis auf die blaue Kurve, linear weiter. Es könnte für die anderen Kurven, für den weiteren Verlauf zunächst ein scheinbar paralleles Verhalten mit einer Verschiebung zueinander vermutet werden. Die blaue Kurve zeigt ein leicht abweichendes Verhalten. Dies liegt daran, dass hier der EIT-Effekt auftritt, wie in einer der Kurven in Abbildung 4.2.1 zu sehen ist. Dieser Effekt führt zu einer Absenkung der Amplitude, wodurch der Fit eine abnehmende Amplitude verzeichnet und auch die extrahierten Breiten nicht mehr korrekt sind. Für die Kombinationen von Rabi­frequenzen verhalten sich die Kurven für die Größe ihrer Beiträge, der Lorentzbreiten und der Gaußbreiten untereinander genau umgekehrt. Für größere  $\Omega_{es}$



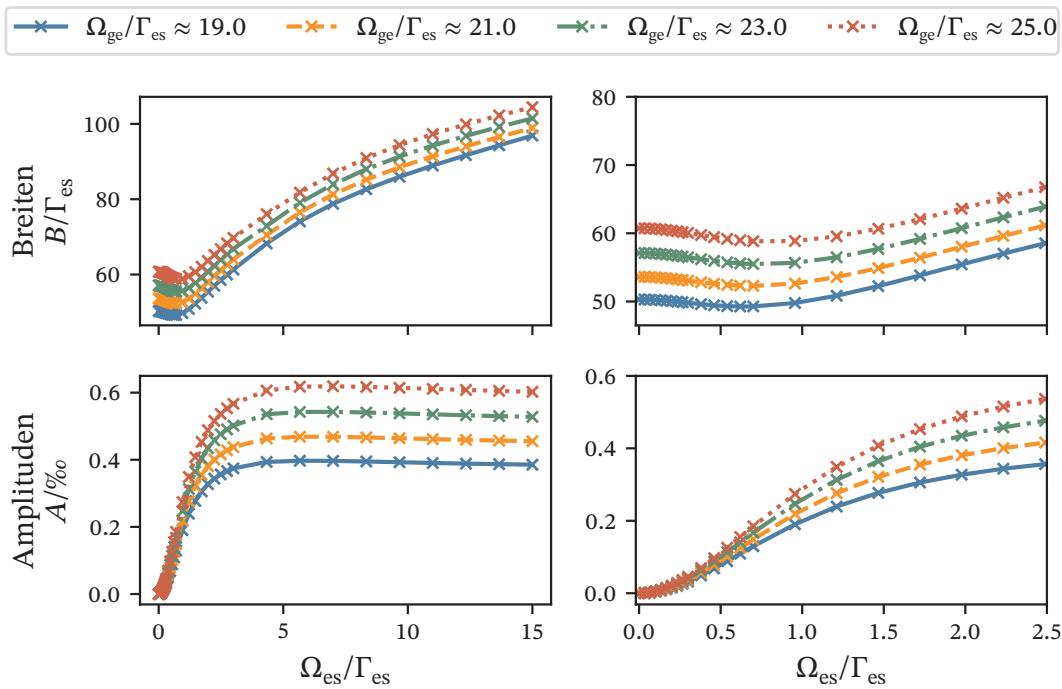
**Abb. 4.2.5:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreite in einem Dreineveausystem bei durchgeführter Rabi-Frequenz  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang und festgewählten Rabi-Frequenzen  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang. Die Lorentzbreite  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreite  $\delta\omega_G$  sind als Parameter aus Voigt-Fits bestimmt.

erreicht auch die Lorentzbreite früher höhere Werte, während die Gaußbreite geringere Werte für höhere  $\Omega_{es}$  annimmt. Für eine geringere Kopplung für den zweiten Übergang gibt es einen geringeren Beitrag zu gesamt Breite  $B$  aus der Leistungsverbreiterung und dafür einen höheren aus der Dopplerverbreiterung, die Geschwindigkeitsklassen liefern hier einen größeren Beitrag. Für stärkere Kopplungen dreht sich der Effekt um: Die Leistungsverbreiterung dominiert, die Verbreiterung aus dem Doppler-Effekt setzt erst später ein.

Die Amplitude  $A$  in Abbildung 4.2.3 gibt das Maximum der geschwindigkeitsgemittelten Population des obersten Zustands, hier  $|s\rangle$  an und zeigt ein leicht anderes Verhalten im Vergleich zur Breite. Zu Beginn liegt ein parabelförmiger Anstieg vor, wobei auch hier zu beachten ist, dass wie zuvor angegeben, die Werte erst ab einem bestimmten Bereich für  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge}$  je nach Kurve verlässlich werden. Der parabelförmige Anstieg könnte also auch nur ein Effekt der unzureichenden Möglichkeiten der Erfassung der Parameter sein. Andererseits ist ein ähnlicher Verlauf der Amplitude wie später zu sehen sein wird in Abbildung 4.2.6 zu finden, wobei dort die Erfassung der Parameter auch für geringe Werte in  $\Omega_{es}/\Gamma_{es}$  möglich ist, außerdem ist nach Gleichung 4.3 und Abbildung 4.2.2 solch ein Verlauf zu erwarten.

Je nach Größe von  $\Omega_{es}$  verläuft die entsprechende Kurve bis hin zu größeren  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge}$

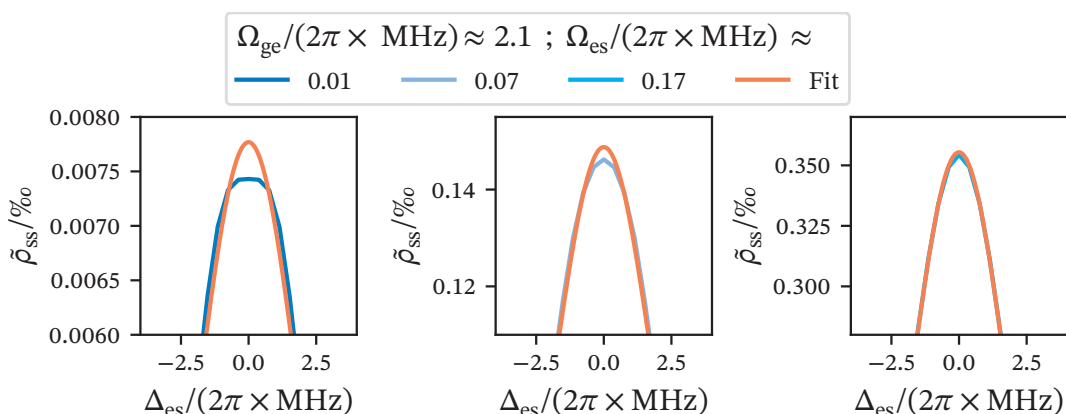
ein Stück weit linear. Im weiteren Verlauf stellt sich eine negative Krümmung und ein Sättigungsverhalten ein. Wird das Verhalten der Amplitude näher betrachtet, so ist zu erkennen, dass  $\Omega_{es}$  zunächst keinen oder einen nur sehr geringen Einfluss auf das Verhalten hat. Bis zu dem Punkt, an dem  $\Omega_{ge} > (1/2)\Gamma_{ge}$  gilt, verlaufen alle Kurven gleich. Danach ist ein deutlicher Unterschied im Verlauf der Kurven zu erkennen: Für kleinere Rabifrequenzen  $\Omega_{es}$  tritt ein früheres Abflachen der Kurve ein, wobei sich eine Sättigung in der Amplitude einstellt. Hier sollte berücksichtigt werden, dass für  $\Omega_{ge} > 2\pi \times 10$  MHz bzw.  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge} \approx 1,6$  bei  $\Omega_{es}/\Gamma_{ge} \approx 0,07$  das Auftreten des EIT-Effekts die Werte verfälscht. Trotzdem kann allgemein gesagt werden, dass für eine geringe Kopplung in den zweiten angeregten Zustand  $|s\rangle$  eine Sättigung dieses Zustands somit früher eintritt, die Betrachtung ähnelt dabei einem Zweiniveausystem.



**Abb. 4.2.6:** Abbildung des Amplituden- und Breitenverlaufs der geschwindigkeitsgemittelten Population im  $|s\rangle$ -Zustand eines Dreiniveausystems bei durchgefahrener Rabifrequenz  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang und fest gewählten Rabifrequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang. Die Amplituden und Breiten sind aus Voigt-Fits extrahiert.

Wird nun das Verhalten von Amplituden  $A$  und Breiten  $B$  in Einheiten von  $\Gamma_{es}$  in Abbildung 4.2.6 betrachtet, bei fest gewählten Rabifrequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang und durchlaufender Rabifrequenz  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang, ebenfalls in Einheiten von  $\Gamma_{es}$ , so kann teilweise ein ähnliches Verhalten zu den Kurven in Abbildung 4.2.3 festgestellt werden. Auch in dieser Graphik ist links der allgemeine Kurvenverlauf und rechts eine Detailansicht abgebildet. Auch hier kann bereits für beide Größen Ähnlichkeit zu den in Abbildung 4.2.2 gezeigten Kurven erkannt werden.

Auffällig ist, dass vor allem in den Breiten, aber bei größeren  $\Omega_{\text{es}}/\Gamma_{\text{es}}$  auch die Amplituden ein äquidistantes Verhalten bei äquidistant gewählten Rabifrequenzen zeigen. Für kleine  $\Omega_{\text{es}}$  kann die zuvor beschriebene erwartungsgemäße Entwicklung der Breite nach Gleichung 4.2 beobachtet werden. Wobei allerdings eine abnehmende Steigung der Breiten zu erkennen ist, bis zu  $\Omega_{\text{es}}/\Gamma_{\text{es}} \approx 0,7$  nimmt die Breite weiter ab. Dieser Effekt ist über die Anschauung der Verbreiterungsmechanismen aus dem Zweiniveausystem nicht erklärbar. Werden die Fits in diesem Bereich in Abbildung 4.2.7 betrachtet, so fällt auf, dass die Amplitude der Fit-Funktion tendenziell höher ausfällt was auch eine Verschiebung zu etwas kleineren Breiten hin bedingt. Dies könnte eine mögliche Erklärung für die Abnahme der Breite zu Beginn liefern. Das Verhalten setzt sich mit

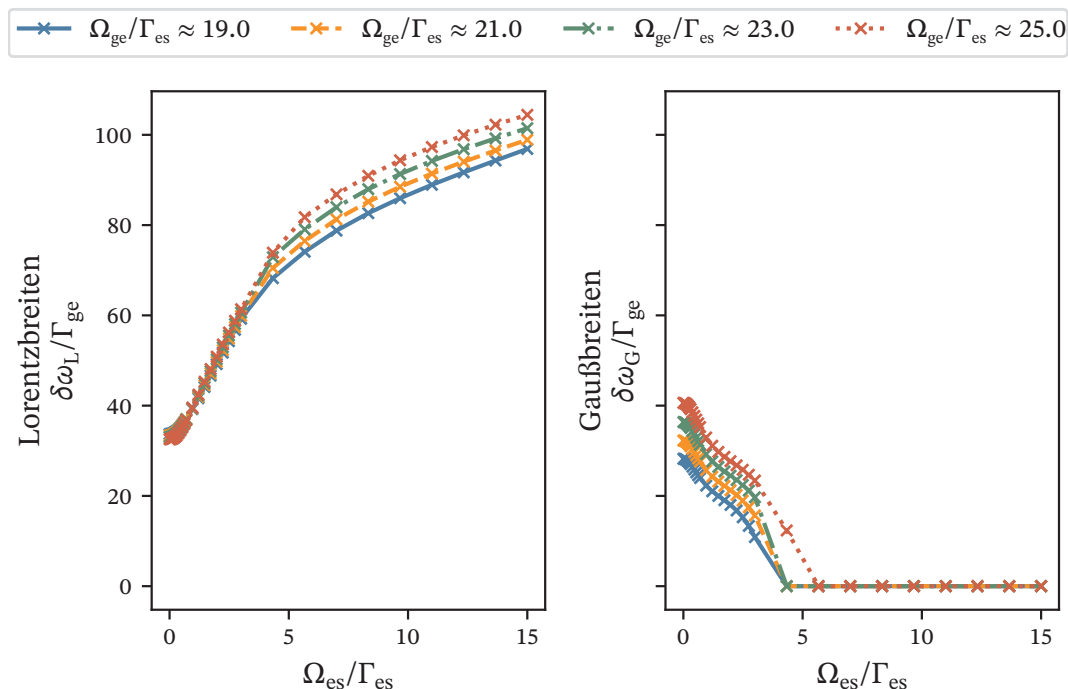


**Abb. 4.2.7:** Darstellung von drei simulierten Kurven der geschwindigkeitsgemittelten Population im  $|s\rangle$ -Zustand in einem Dreiniveausystem bei fest gewählter Rabifrequenz  $\Omega_{\text{ge}} = 2\pi \times 2,1$  MHz im ersten Übergang und drei verschiedenen Rabifrequenzen  $\Omega_{\text{es}}$  im zweiten Übergang über die Verstimmung  $\Delta_{\text{es}}$  im oberen Übergang. Über den angelagerten Voigt-Fit wird die Amplitude der Kurve extrahiert.

einem kurzen linearen Anstieg fort, bis sich die Krümmung umkehrt, dies entspricht dem für eine Leistungsverbreiterung nach Gleichung 4.2 zu erwartenden Verhalten für die Breite. Analog zur Abbildung 4.2.3 ist auch hier zu erkennen, dass die Beiträge der unterschiedlichen Rabifrequenzen zur Breite unabhängig voneinander sind, da die Kurven bei gleichem Verlauf nur eine Verschiebung durch eine andere Rabifrequenz  $\Omega_{\text{ge}}$  im ersten Übergang erhalten.

Durch Betrachtung der Abbildung 4.2.8 kann bestätigt werden, dass Verlauf Gleichung 4.2 entsprechend aus der Leistungsverbreiterung kommt. Für  $\Omega_{\text{es}}/\Gamma_{\text{es}} > 5$  trägt nur noch die Leistungsverbreiterung signifikant zur Breite bei, da die Beiträge aus der Gaußbreite vollständig abklingen. An dem Punkt, an dem der lineare Verlauf im Lorentzanteil deutlich in einen konkaven Verlauf übergeht ist passend ein steiler Abfall im Gaußanteil bemerkbar. Die durch den oberen Laser gelieferte Leistungsverbreiterung unterdrückt mit steigendem  $\Omega_{\text{es}}/\Gamma_{\text{es}}$  weitere Beiträge aus dem Dopplereffekt. Der Beitrag aus der Dopplerverbreiterung zu Beginn rührt daher, dass sich die Dopplerverbreiterung des ersten Übergangs im zweiten Übergang fortsetzt. Es findet eine Überlagerung der Ver-

breiterungen durch die Geschwindigkeitsklassen statt. Je größer das Verhältnis  $\Omega_{ge}/\Gamma_{es}$



**Abb. 4.2.8:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreite in einem Dreiniveausystem bei durchgeführter Rabi-Frequenz  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang und festgewählten Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang. Die Lorentzbreite  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreite  $\delta\omega_G$  sind als Parameter aus Voigt-Fits bestimmt.

aus dem ersten Übergang ist, desto größer ist auch der Beitrag aus der Lorentz- und Gaußbreite für den zweiten Übergang. Für größere Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  tragen mehr Geschwindigkeitsklassen zur Gaußbreite bei. Unterschiedliche Rabi-Frequenzen modifizieren also die Resonanzbedingungen für verschiedene Geschwindigkeitsklassen, sodass in der Gaußbreite unterschiedliche Verschiebungen zustande kommen.

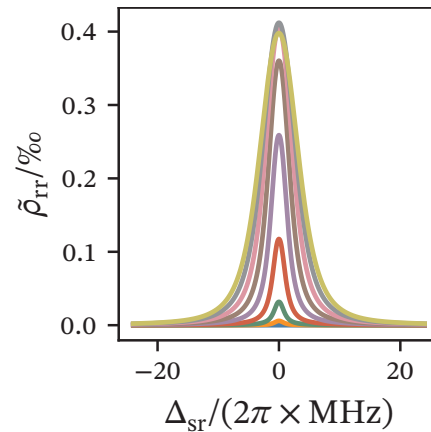
Wird die Amplitude betrachtet, so ist ein analoges Verhalten zu Abbildung 4.2.3 zu erkennen. Zunächst gibt es einen parabelförmigen Anstieg, wobei die Kurven alle bis zu  $\Omega_{es}/\Gamma_{es} \approx 1/5$  sehr nah aneinander liegen,  $\Omega_{ge}$  hat hier also noch einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Amplitude. Ab  $\Omega_{es} > (1/5)\Gamma_{es}$  trennen sich die Kurven auf und auch hier ist für kleinere Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  ein früheres Abflachen der Kurven zu beobachten. Für die blaue Kurve tritt etwa ab  $\Omega_{es} \approx 3\Gamma_{es}$  die Sättigung ein. Auch hier kann also bestätigt werden, dass für eine kleine Kopplung in den zweiten angeregten Zustand  $|s\rangle$  ähnliches Verhalten zum Zweiniveausystem beobachtet werden kann und somit eine frühere Sättigung auftritt.

Für das Dreiniveausystem kann also beobachtet werden, dass bei sehr geringen Kopplungen Ähnlichkeiten zum Zweiniveausystem, mit dem Eintritt der Sättigung in der Amplitude festgestellt werden können. Auch gilt, dass die Übergänge untereinander

Ähnlichkeiten in ihrem Verhalten für die Breite und Amplitude aufweisen, wobei allerdings in den Übergängen die Beiträge der Breiten aus Lorentz- und Gaußbreite variieren. Außerdem konnte im Verhalten der Breite der Einfluss aus der Leistungsverbreiterung analog zum Zweiniveausystem wiedererkannt werden.

### 4.3 Vierniveausystem

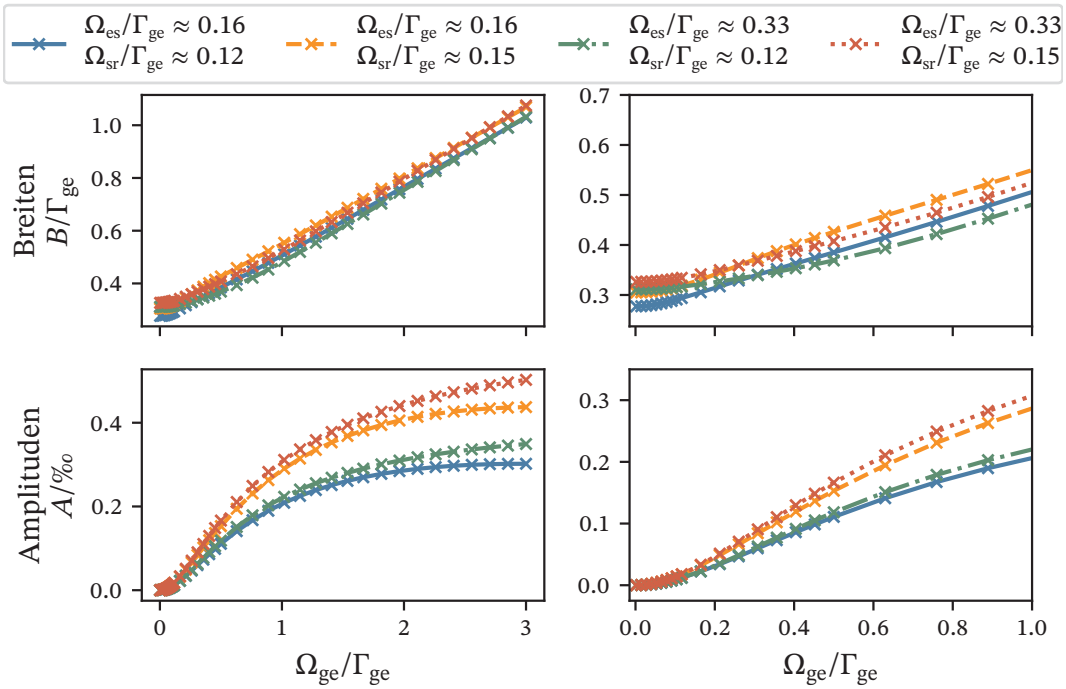
Analog zur Betrachtung des Dreiniveausystems können auch die Ergebnisse zum Vierniveausystem aus der „steadystate“-Gleichung (Gleichung 4.1) der Simulation über die Verstimmung  $\Delta_{sr}$  im infraroten Laser ausgewertet werden. Einige der resultierenden Kurven zur geschwindigkeitsgemittelten Population  $\tilde{\rho}_{rr}$  im  $|r\rangle$ -Zustand sind beispielhaft in Abbildung 4.3.1 gezeigt. Jede der Kurven besitzt eine andere Kombination von Rabi-frequenzen für die einzelnen Übergänge. Auch hier werden die Kurven über eine Voigt-Funktion (Gleichung 3.6) gefittet, um die Breiten und Amplituden zu erhalten. Diese werden, ebenso wie im Unterabschnitt 4.2.1, auf ihr Verhalten in den Übergängen für verschiedene Kombinationen von Rabi-frequenzen untersucht.



**Abb. 4.3.1:** Abbildung der geschwindigkeitsgemittelten Population  $\tilde{\rho}_{rr}$  im Vierniveausystem über die Verstimmung  $\Delta_{sr}$ , wobei jede Kurve verschiedene Kombinationen von Rabi-frequenzen besitzt.

#### 4.3.1 Allgemeines Verhalten

In Abbildung 4.3.2 wird der Verlauf der Breite und Amplitude der geschwindigkeitsgemittelten Population  $\tilde{\rho}_{rr}$  im  $|r\rangle$ -Zustand, links in einem größer gefassten Bereich und rechts in einer detaillierteren Ansicht für eine Variation der Rabi-frequenz  $\Omega_{ge}$  zum ersten Übergang in einem Vierniveausystem, von  $|g\rangle$  nach  $|e\rangle$  in Einheiten von  $\Gamma_{ge}$  gezeigt. Die beiden Rabi-frequenzen der anderen Übergänge,  $\Omega_{es}$  und  $\Omega_{sr}$ , werden für je zwei feste Werte in allen Möglichkeiten miteinander kombiniert. Auch die Rabi-frequenzen sind alle in Einheiten von  $\Gamma_{ge}$  angegeben. Sowohl die Breiten als auch die Amplituden zeigen im Vierniveausystem ein komplexeres Verhalten als im Dreiniveausystem. Zunächst werden die Breiten betrachtet. Für  $\Omega_{es} \gg \Omega_{sr}$  ist eher ein parabelförmiges Verhalten der Breiten zu erkennen, wobei für  $\Omega_{es} \approx \Omega_{sr}$  ein lineares Verhalten den



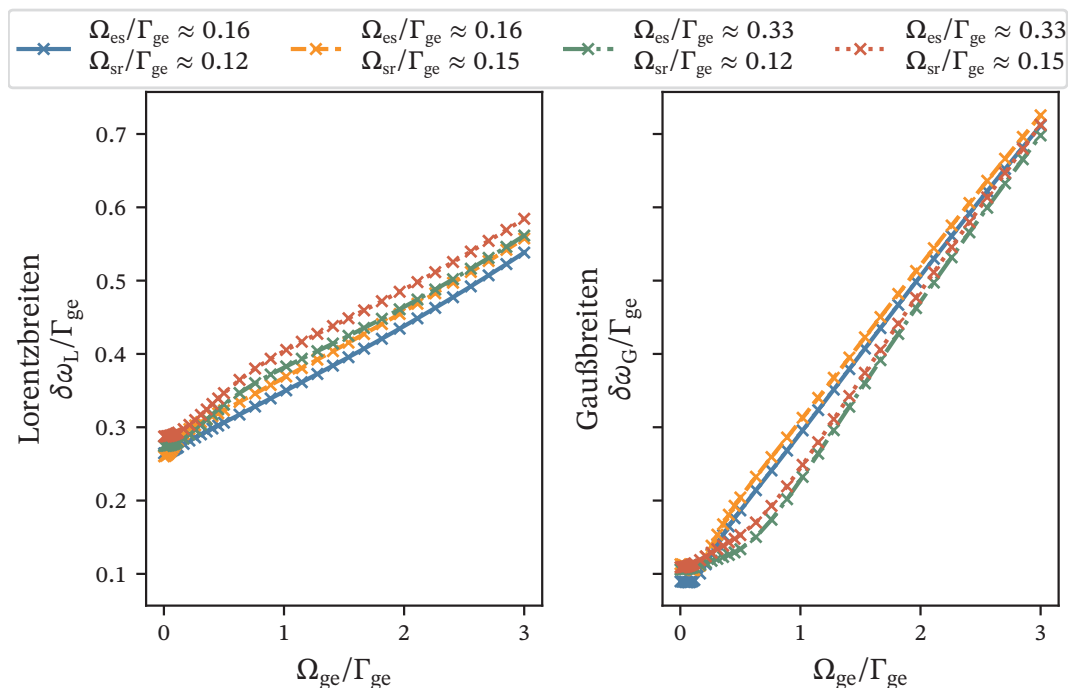
**Abb. 4.3.2:** Abbildung des Amplituden- und Breitenverlaufs der geschwindigkeitsgemittelten Population im  $|r\rangle$ -Zustand eines Vierniveausystems bei durchgeführter Rabi-Frequenz  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang und variierenden Rabi-Frequenzen  $\Omega_{es}$  im zweiten und  $\Omega_{sr}$  im dritten Übergang. Die Amplituden und Breiten sind aus Voigt-Fits extrahiert.

Verlauf besser beschreibt, trotzdem ist auch für diese Kurven zu Beginn ein sehr kurzer Abschnitt mit einer positiven Krümmung zu erkennen. Bei dem parabelförmigen Verhalten ist die Krümmung dann stärker ausgeprägt, wenn auch der Unterschied in der Rabi-Frequenz größer ist. Durch das unterschiedliche Verhalten der Kurven treten zwei Schnittpunkte zwischen der grünen mit der blauen und der roten mit der orangenen Kurve auf. Die ersten Schnittpunkte der beiden Kurvenkombinationen liegen für grün und blau bei  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge} \approx 0,33$ , was genau  $\Omega_{es}/\Gamma_{ge}$  entspricht, und für rot und orange bei  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge} \approx 0,26$ .

Wird Abbildung 4.3.3 betrachtet, so ist auch für die Lorentzbreiten  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreiten  $\delta\omega_G$ , welche als Parameter aus dem Voigt-Fit ausgelesen werden können, eine Ähnlichkeit im Verhalten der Kurven untereinander zu erkennen. Die blaue und orangene Kurve und die grüne und rote Kurve zeigen ein zueinander ähnliches Verhalten, wie auch schon in Abbildung 4.3.2 beobachtet. Es findet, wie im Dreiniveausystem, bereits im ersten Übergang eine Modifikation der Resonanzbedingungen für die Geschwindigkeitsklassen statt, und für sehr geringe Rabi-Frequenzen gibt es einen geringeren Beitrag aus der Gaußbreite. Die Lorentzbreite startet auch hier mit einer Verschiebung aufgrund der natürlichen Linienbreite und zeigt relativ schnell ein annähernd lineares Verhalten.



Für die Lorentzbreite gilt: je größer die Rabifrequenz  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang, desto größer auch der Beitrag aus der Lorentzbreite für alle Rabifrequenzen  $\Omega_{ge}$ . Zunächst zeigt sich für die Gaußbreite ein abweichendes Verhalten, wobei sich für  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge} > 3$  eine andere Reihenfolge in der Größe der Beiträge einzustellen scheint, sodass auch hier gilt, dass für größere Rabifrequenzen  $\Omega_{es}$  auch größere Beiträge zur Breite resultieren. Für beide Breiten ist für ein anwachsendes Verhältnis  $\Omega_{ge}/\Gamma_{es}$  ein Anstieg deutlich,



**Abb. 4.3.3:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreite in einem Vierniveausystem bei durchgeführter Rabifrequenz  $\Omega_{ge}$  im ersten Übergang und variierenden Rabifrequenzen  $\Omega_{es}$  im zweiten und  $\Omega_{sr}$  im dritten Übergang. Die Lorentzbreite  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreite  $\delta\omega_G$  sind als Parameter aus Voigt-Fits bestimmt.

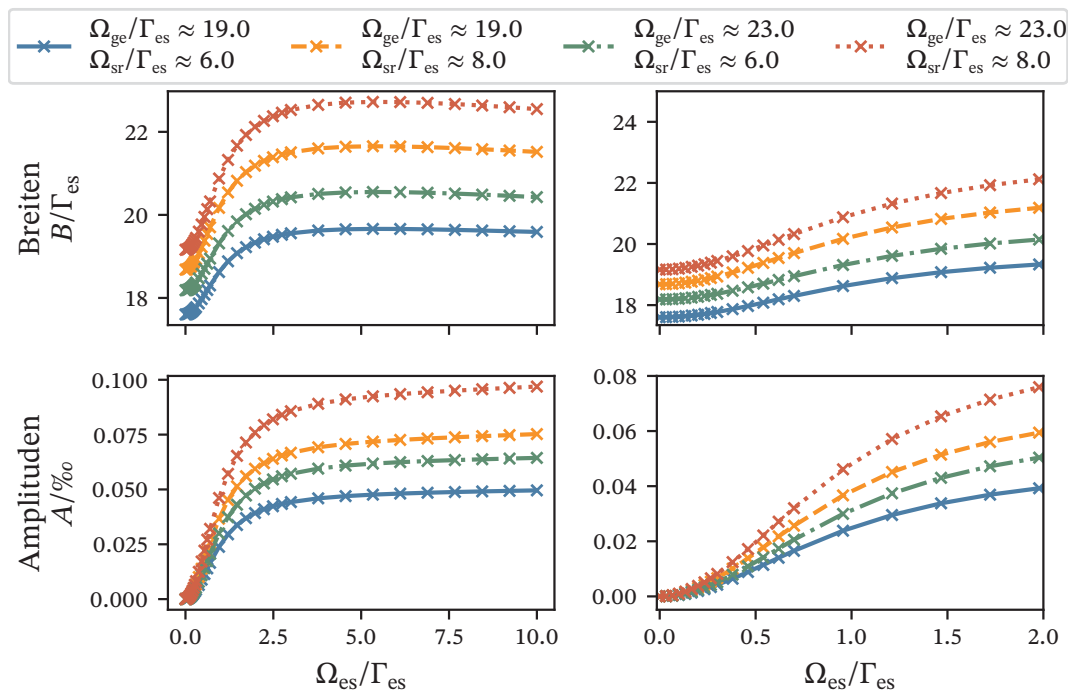
somit sind die Leistungs- und die Dopplerverbreiterung wie auch im Dreiniveausystem für den ersten Übergang relevant.

Wird nun in Abbildung 4.3.2 das Verhalten der Amplitude betrachtet, so kann wie bereits im Dreiniveausystem beobachtet wurde Ähnlichkeit im Verhalten zu der in Abbildung 4.2.2 dargestellten Kurve zur Population erkannt werden. Analog zum Dreiniveausystem gibt es auch in diesem Fall zunächst einen Bereich, in dem die anderen Rabifrequenzen einen vernachlässigbaren Einfluss haben, da alle Kurven annähernd aufeinanderliegen. Dieser Bereich erstreckt sich bis zu dem Punkt, an dem  $\Omega_{ge} \approx 0,1\Gamma_{ge}$  gilt. Danach wird der Einfluss der anderen Rabifrequenzen deutlich. Die Kurven beginnen sich paarweise abzuspalten. Die grüne und blaue Kurve, bei gleicher Rabifrequenz im obersten Übergang  $\Omega_{sr}$ , trennen sich in ihrem Verlauf erst später, so wird deutlich, dass für den Bereich von  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge}$ : 0,1 bis  $\sim 0,26$  die Rabifrequenz  $\Omega_{sr}$  das Verhalten



dominiert. Gleiches gilt für die rote und orangene Kurve, auch hier gibt es einen Bereich  $\Omega_{ge}/\Gamma_{ge}$ : 0,1 bis  $\sim 0,2$ , in dem  $\Omega_{sr}$  das Verhalten vorgibt. Auch im Vierniveausystem gilt, dass für kleinere Kopplungen die Sättigung des obersten Zustands, hier  $|r\rangle$ , bereits früher eintritt, das heißt, auch für kleinere Kopplung vom Grundzustand in den ersten angeregten Zustand. Dies gilt sowohl für  $\Omega_{es}$  als auch für  $\Omega_{sr}$ , wobei bei genauerer Betrachtung auffällt, dass  $\Omega_{sr}$  einen stärkeren Einfluss auf den Eintritt der Sättigung hat. Für kleinere  $\Omega_{sr}$  flacht die Kurve früher in die Sättigung ab, was für die orangene und blaue Kurve gut zu sehen ist. Allgemein kann hier noch gesagt werden, dass mit steigender Rabi-Frequenz  $\Omega_{es}$  und  $\Omega_{sr}$  und somit stärkerer Kopplung größere Werte für die Breite und auch für die Population im obersten Zustand  $|r\rangle$  erzielt werden.

Nun wird das Verhalten der Amplituden und Breiten in Abbildung 4.3.4 betrachtet. Auch hier ist links ein weiter gefasster Verlauf und rechts eine Detailansicht abgebildet. Dieses Mal wird der Übergang vom ersten angeregten Zustand  $|e\rangle$  in den zweiten angeregten Zustand  $|s\rangle$  betrachtet, sodass die Rabi-Frequenz  $\Omega_{es}$  durchgeföhren und die beiden Rabi-Frequenzen der anderen Übergänge  $\Omega_{ge}$  und  $\Omega_{sr}$  auch hier für je zwei Werte in allen Möglichkeiten miteinander kombiniert werden. Wieder wird zunächst das



**Abb. 4.3.4:** Abbildung des Amplituden- und Breitenverlaufs der geschwindigkeitsgemittelten Population im  $|r\rangle$ -Zustand eines Vierniveausystems bei durchgeföhrener Rabi-Frequenz  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang variierenden Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten und  $\Omega_{sr}$  im dritten Übergang. Die Amplituden und Breiten sind aus Voigt-Fits extrahiert.

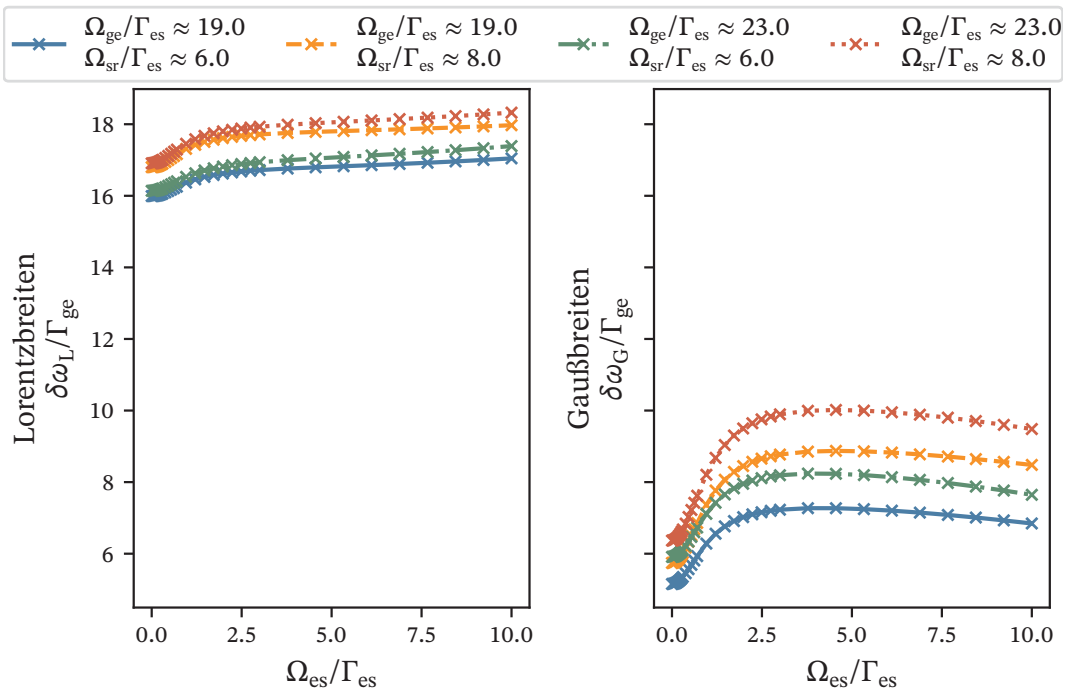
Verhalten der Breite betrachtet. Der Verlauf für kleine  $\Omega_{es}/\Gamma_{es}$  ähnelt dem Verlauf aus

Abbildung 4.2.6 für das Dreiniveausystem. Zunächst wird ein annähernd linearer Verlauf beobachtet, wobei hier auch ein parabelförmiger Verlauf zu Beginn vermutet werden könnte. Etwa ab  $\Omega_{es} \approx (1/2)\Gamma_{es}$  setzt eine negative Krümmung der Kurve ein, wobei für  $\Omega_{es} > 2\Gamma_{es}$  eine Art Sättigung für die Breite einzutreten scheint. Außerdem ist für noch größere Werte von  $\Omega_{es}/\Gamma_{es}$  sogar eine Abnahme in der Breite zu erkennen. Dies könnte ähnlich wie im Dreiniveausystem anhand von Abbildung 4.2.7 gezeigt durch eine begrenzte Genauigkeit der Fit-Funktionen für die Amplitude folgen für die Entwicklung in der Breite haben. Es ist nicht klar ob der Effekt der abnehmenden Breite vollständig dadurch erklärt wird. Allgemein kann dieses Verhalten nicht mit der Theorie aus einem Zweiniveausystem erklärt werden, da hier ein linearer Anstieg für eine Leistungsverbreiterung entsprechend Gleichung 4.2 zu erwarten wäre. Die Kurven zeigen alle das gleiche Verhalten und verlaufen nach Eintreten des Sättigungseffekts parallel zueinander, wobei für die betrachteten Kurven  $\Omega_{ge}/\Gamma_{es}$  deutlich größer ist als  $\Omega_{sr}/\Gamma_{es}$ . Ebenso wie zuvor im Dreiniveausystem, sind die Beiträge der unterschiedlichen Rabifrequenzen zur Breite weitestgehend unabhängig voneinander, da die Kurven bei annähernd gleichem Verlauf nur eine Verschiebung erfahren.

Wird nun Abbildung 4.3.5 betrachtet, so ist auch hier ein abflachendes Verhalten für beide Breiten zu erkennen, wobei die Lorentzbreite für große  $\Omega_{es}/\Gamma_{es}$  noch weiter ansteigt und die Gaußbreite abnimmt. Die ausschließliche Abnahme in der Gaußbreite für größere  $\Omega_{ge}/\Gamma_{es}$  könnte die Abnahme in der Gesamtbreite verantworten, wenn die Abnahme der Gaußbreite die Zunahme der Lorentzbreite in ihren Beiträgen zur Gesamtbreite (Gleichung 3.7) überwiegt. Eine Abnahme in der Gaußbreite spricht dafür, dass die Leistungsverbreiterung die Verbreiterung aus dem Dopplereffekt mit wachsendem  $\Omega_{es}/\Gamma_{es}$  unterdrückt. Ein ähnliches Verhalten ist im Dreiniveausystem in Abbildung 4.2.8 für den zweiten Übergang für zu sehen. Mit steigender Rabifrequenz  $\Omega_{sr}$  im letzten Übergang gibt es, wie bereits in Abbildung 4.3.4 zu sehen ist, einen größeren Beitrag zur Lorentz- bzw. Gaußbreite. Bei gleicher Rabifrequenz  $\Omega_{sr}$  entscheidet die Rabifrequenz  $\Omega_{ge}$  des ersten Übergangs, welche Kurve einen größeren Beitrag liefert. Gleiches gilt für den Beitrag zur Amplitude. Für die Lorentzbreite verlaufen die Kurven mit gleicher Rabifrequenz  $\Omega_{sr}$  zunächst sehr nah beieinander und trennen sich dann für größer werdende  $\Omega_{es}/\Gamma_{es}$  auf. Für die Verschiebung der Kurven der Lorentz- und Gaußbreite gilt das Gleiche wie zuvor für den ersten Übergang beschrieben.

Wird nun die Amplitude in Abbildung 4.3.4 betrachtet, so wird auch hier im Vergleich zu anderen Übergängen ein ähnliches Verhalten festgestellt. Zunächst gibt es auch hier einen parabelförmigen Anstieg. Die Kurven trennen sich in diesem Fall direkt zu Beginn, was darauf hindeutet, dass der Einfluss von  $\Omega_{es}$  im Vergleich zum Einfluss der anderen Rabifrequenzen auf das Verhalten deutlich geringer ist. Der Wendepunkt für die Krümmung liegt beispielsweise für die blaue Kurve bei  $\Omega_{es} \approx (3/4)\Gamma_{es}$ . Die Amplitude ist für die gleiche Kurve für  $\Omega_{es} > 2,5\Gamma_{es}$  bereits gesättigt und erfährt keinen signifikanten Anstieg mehr. Nach dem Eintreten der Sättigung für alle Kurven verlaufen auch diese parallel zueinander. Auch hier gilt, dass für geringere Kopplungen der Sättigungseffekt früher eintritt.

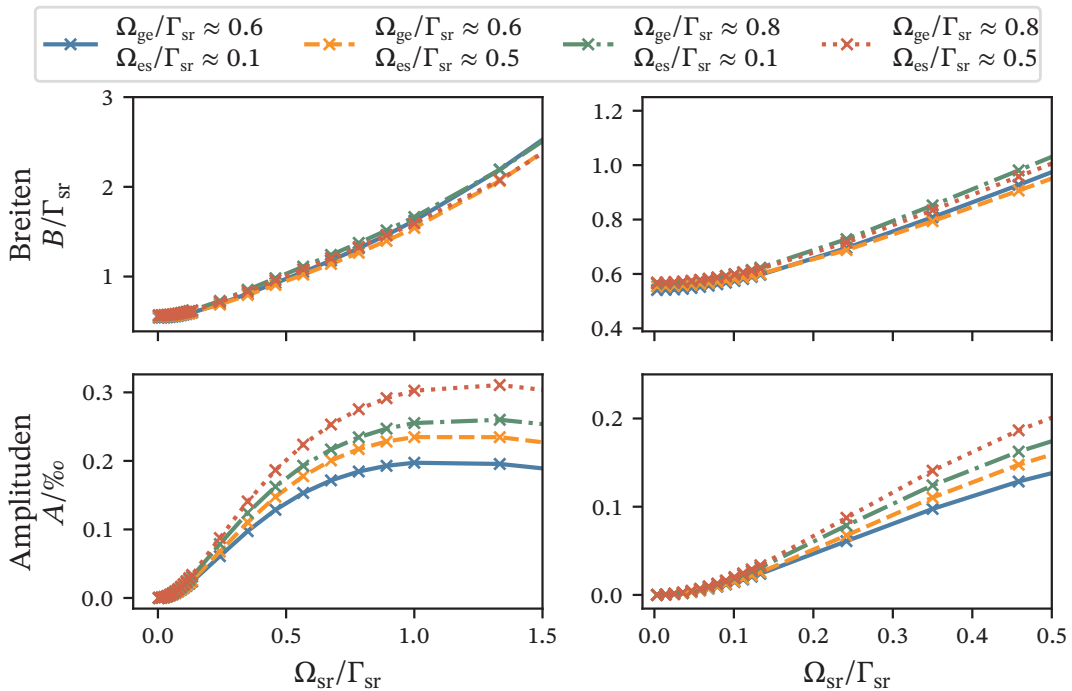
Als Letztes wir das Verhalten der Breiten und Amplituden bezüglich des Übergangs von



**Abb. 4.3.5:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreite in einem Vierniveausystem bei durchgeführter Rabi-Frequenz  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang und variierenden Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten und  $\Omega_{sr}$  im dritten Übergang. Die Lorentzbreite  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreite  $\delta\omega_G$  sind als Parameter aus Voigt-Fits bestimmt.

$|s\rangle$  nach  $|r\rangle$  in Abbildung 4.3.6 betrachtet. Auch hier ist links ein größer gefasster Verlauf und rechts eine Detailansicht zusehen. Zu Beginn, für sehr kleine  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr}$  entwickelt sich ein parabelförmiger Verlauf. Ähnlich zu dem ersten betrachteten Übergang in Abbildung 4.3.2, gibt es auch hier Überschneidungen zwischen den Kurven für verschiedene Kombinationen von Rabi-Frequenzen. Die Kurven verlaufen alle sehr nah beieinander, somit haben die anderen Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  und  $\Omega_{es}$  in diesem Bereich noch einen sehr geringen Einfluss auf die Gesamtbreite.

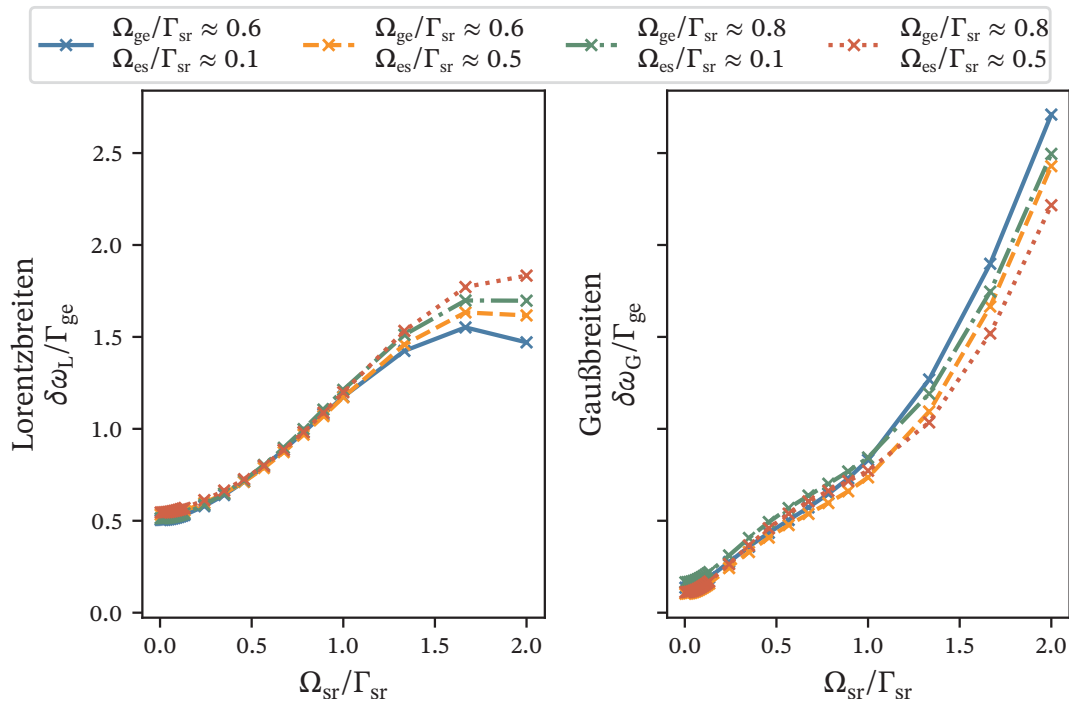
Wird Abbildung 4.3.7 betrachtet, kann etwas differenzierter auf die unterschiedlichen Beiträge aus der Lorentz- und Gaußbreite eingegangen werden. Die Leistungsverbreiterung für den letzten Übergang wird bis zu  $\Omega_{sr} \approx \Gamma_{sr}$  ausschließlich von  $\Omega_{sr}$  dominiert. Danach zeigt sich eine Aufspaltung, wobei für kleinere Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  und  $\Omega_{es}$  auch entsprechend kleinere Beiträge in der Breite resultieren. Zu beachten ist, dass ab etwa  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr} \approx 1,3$  für die Kurven der EIT-Effekt auftritt und somit die Werte für die Breiten verfälscht sind. Wird die Entwicklung der Gaußbreite betrachtet, so kann auch hier ab  $\Omega_{sr} \approx \Gamma_{sr}$  eine Änderung im Verhalten festgestellt werden. Der Beitrag aus der Dopplerverbreiterung erfährt hier durch eine Art Knick im Kurvenverlauf der Gaußbreite einen größeren Anstieg. Außerdem ist die Reihenfolge der Rabi-Frequenzen für deren Beiträge unterschiedlich: kleinere Rabi-Frequenzen  $\Omega_{es}$  liefern größere Beiträge



**Abb. 4.3.6:** Abbildung des Amplituden- und Breitenverlaufs der geschwindigkeitsgemittelten Population im  $|r\rangle$ -Zustand eines Vierniveausystems bei durchgeführter Rabi-Frequenz  $\Omega_{sr}$  im dritten Übergang variierenden Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten und  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang. Die Amplituden und Breiten sind aus Voigt-Fits extrahiert.

zur Breite, und auch kleinere Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  liefern größere Beiträge, wobei  $\Omega_{es}$  dominiert. Die Verbreiterungseffekte konkurrieren, die Reihenfolge der Kurven ist für die Beiträge zu den verschiedenen Breiten gegenläufig.

Das Verhalten der Amplituden aus Abbildung 4.3.6 zeigt große Ähnlichkeit zu den anderen Übergängen, sowohl innerhalb des Vierniveausystems als auch zum Dreiniveausystem. Zunächst liegt eine positive Krümmung mit einem parabolischen Verlauf vor. Bei  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr} \approx 0,3$  liegt der Wendepunkt, die Krümmung wird negativ, und ab  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr} \approx 0,8$  beginnt sich für die ersten Kurven eine Sättigung, für die ein weiterer Anstieg von  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr}$  zu keiner signifikanten Änderung der Amplitude mehr führt, einzustellen. Für  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr} > 1,3$  tritt der EIT-Effekt auf, was eine Abnahme in der Amplitude erklärt. Es gilt weiterhin, dass größere Rabi-Frequenzen auch größere Beiträge zur Amplitude erbringen. Zu Beginn, für sehr kleine  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr} < 0,01$ , verlaufen die Kurven alle noch zusammen und  $\Omega_{sr}$  dominiert das Verhalten. Danach wird der Einfluss aus dem untersten Übergang deutlich. Die Kurven mit gleichem  $\Omega_{ge}$  verlaufen für  $\Omega_{ge}/\Gamma_{sr} \approx 0,6$  noch bis  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr} \approx 0,1$  und für  $\Omega_{ge}/\Gamma_{sr} \approx 0,8$  noch bis  $\Omega_{sr}/\Gamma_{sr} \approx 0,08$  zusammen. In diesen Bereichen bestimmt also  $\Omega_{ge}$  das Verhalten. Je größer  $\Omega_{ge}$ , desto früher tritt eine Separation der Kurven ein.



**Abb. 4.3.7:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreite in einem Vierniveausystem bei durchgeführter Rabi-Frequenz  $\Omega_{sr}$  im dritten Übergang und variierenden Rabi-Frequenzen  $\Omega_{ge}$  im ersten und  $\Omega_{es}$  im zweiten Übergang. Die Lorentzbreite  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreite  $\delta\omega_G$  sind als Parameter aus Voigt-Fits bestimmt.

Allgemein kann sowohl für die Übergänge innerhalb des Vierniveausystems Ähnlichkeit im Verhalten vor allem für die Amplitude festgestellt werden als auch für das Verhalten der Übergänge zwischen dem Drei- und Vierniveausystem. Dies wurde an den entsprechenden Stellen bereits hervorgehoben. Durch eine zusätzlich das Verhalten mitbestimmende Rabi-Frequenz im Vierniveausystem treten komplexere Verhaltensmuster im Vergleich zum Dreiniveausystem auf. Die Amplitude zeigt für jeden Übergang zunächst ein parabelförmiges und dann ein sich einer Sättigung annäherndes Verhalten, wobei die unterschiedlichen Rabi-Frequenzen nacheinander den Verlauf mit beeinflussen. Genauso wie auch im Dreiniveausystem festgestellt wurde tritt auch im Vierniveausystem für geringe Kopplungen der Sättigungseffekt der Amplitude früher ein und lässt somit eine Analogie zum Zweiniveausystem (Abbildung 4.2.2) zu. Die Entwicklung der Breite wird in allen Übergängen sowohl von der Leistungsverbreiterung als auch von der Dopplerverbreiterung mitbestimmt.



## 5 Messungen

In diesem Abschnitt werden die Messungen zur Untersuchung des Einflusses der Leistungsverbreiterung zum in Kapitel 1 eingeführten Aufbau dargelegt. Untersucht wurde der  $H^2\Sigma^+$ -Zustand im Dreiniveausystem und der  $22(0)$ -Rydbergzustand im Vierniveausystem in NO.

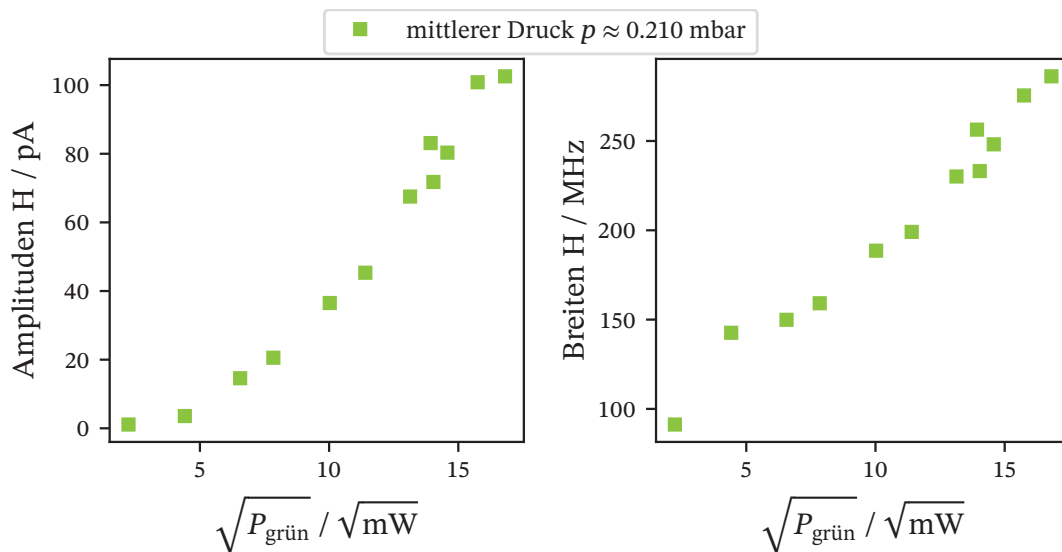
Für eine Anregung vom Grundzustand  $X^2\Pi_{3/2}$  in den  $H^2\Sigma^+$ -Zustand werden zwei der CW-Laser entsprechend dem Anregungsschema in Abbildung 1.0.2 benötigt, die Laserstrahlen werden durch Vervierfachung bzw. Verdopplung der Frequenz auf die passenden Wellenlängen von  $\lambda_{uv} \approx 226$  nm und  $\lambda_{grün} \approx 540$  nm erzeugt. Für eine Anregung in den  $22(0)$ -Rydbergzustand wird ein weiterer Laserstrahl mit einer Wellenlänge  $\lambda_{ir} \approx 848$  nm gebraucht. Damit die Laser in ihrer Wellenlänge im Laufe der Messung stabil bleiben, werden diese bis auf den jeweils für die letzte Anregung ins höchste Niveau, für den  $H^2\Sigma^+$ -Zustand, der im grünen Wellenlängenbereich und für den Rydbergzustand der im infraroten Wellenlängenbereich liegt, in ihrer Emissionsfrequenz auf die Übergangsfrequenz stabilisiert. Hierzu wird das Pound-Drever-Hall-Verfahren genutzt, um die Frequenz der Laser auf einem Fabry-Perot-Resonator zu stabilisieren [6]. Der Laserstrahl verantwortlich für den letzten Übergang wird in seiner Emissionsfrequenz periodisch in einem bestimmten Bereich um den Übergang verstimmt, für den  $H^2\Sigma^+$ -Zustand wird der Laser im grünen Bereich über etwa 4 GHz und für den Rydbergzustand wird der Laser im infraroten Bereich über etwa 18 GHz periodisch verstimmt. Für die Laserstrahlen im grünen und im infraroten Wellenlängenbereich findet eine Leistungsstabilisierung jeweils mittels eines akustooptischen Modulators (AOM) statt. Für jede Messung müssen Parameter, wie der Druck  $p$ , das elektrische Feld  $E$  in der Messzelle und je nach anzuregendem Zustand auch die Wellenlängen der Laser eingestellt und angepasst werden. Die Temperatur  $T$  liegt konstant bei etwa 293 K bzw. etwa 20 °C.

Für die Messungen, welche später mit den aus der Simulation erfassten Daten verglichen werden, wird der Druck möglichst klein gewählt, um Effekte aus der Druckverbreiterung zu minimieren und trotzdem noch ein ausreichendes Messsignal zu erhalten [13]. Das effektiv anliegende elektrische Feld wird ebenfalls möglichst klein eingestellt, um den Stark-Effekt gering zu halten, und dabei trotzdem den f- und g-Zustand noch möglichst ohne Verschiebungen und ohne das Beimischen anderer Zustände auflösen zu können. Die Auswertung der Messwerte erfolgt ähnlich zur in Kapitel 4 beschriebenen Auswertung der Simulationsergebnisse. Die Messwerte werden mit einem Savitzky-Golay-Filter gefiltert und dann ebenfalls mit einer Voigt-Funktion (Gleichung 3.6), hier aber noch zusätzlich unter der Verwendung eines Polynoms dritten Grades gefittet, um die Ausgangslage des Messsignals zu kompensieren [12]. Aus der Voigt-Fit-Funktion kann die

Amplitude, die Signalbreite, hier als Breite bezeichnet, sowie die Lorentzbreite  $\delta\omega_L$  und die Gaußbreite  $\delta\omega_G$  auslesen werden. In den folgenden Abschnitten werden die bereits aus dem Voigt-Fit extrahierten Daten gezeigt.

## 5.1 $H^2\Sigma^+$ -Zustand

Bei der Untersuchung des  $H^2\Sigma^+$ -Zustands, werden Messungen bei variierender Leistung des grünen Laserstrahls, in Abbildung 5.1.1 bei niedrigerem Druck  $p \approx 0,210$  mbar und in Abbildung 5.1.2 bei höherem Druck  $p \approx 1,36$  mbar gezeigt. In Abbildung 5.1.1 ist



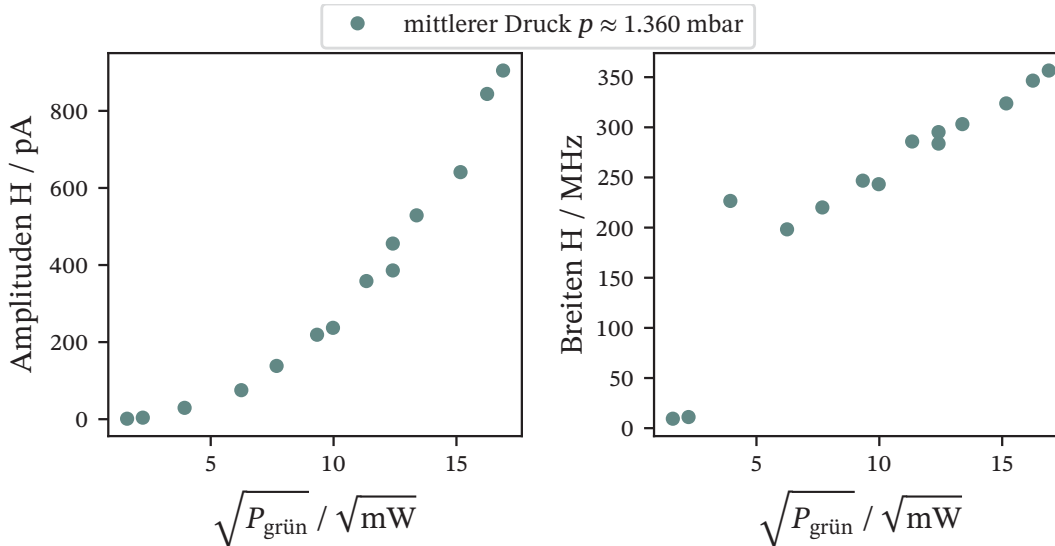
**Abb. 5.1.1:** Darstellung des Amplituden- und Breiten-Verlaufs des  $H^2\Sigma^+$ -Zustands, extrahiert aus einem Voigt-Fit, über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{grün}}}$  des Lasers im grünen Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{grün}} \approx 540$  nm), bei einem mittleren Druck  $p$  von 0,210 mbar.

sowohl in der Amplitude als auch in der Breite des Messsignals ein ähnliches Verhalten zu den in Abbildung 4.2.6 gezeigten, aus der Simulation extrahierten Daten zu erkennen. Die Amplitude des Messsignals zeigt einen parabelförmigen Anstieg über die Wurzel der Leistung im grünen Laserstrahl. Bis auf den ersten extrahierten Wert der Breite für sehr geringe Leistungen, ist das Verhalten erwartungsgemäß. Die Breite hat einen kurzen parabelförmigen Anstieg und entwickelt dann ein lineares Verhalten. Für sehr kleine Leistungen flacht das Messsignal immer weiter ab und das Signal-Rausch-Verhältnis nimmt weiter ab, sodass auch das Anlegen von Fit-Funktionen erschwert wird.

In Abbildung 5.1.2 ist der gleiche Fall, bei sieben Mal höherem Druck in der Zelle gezeigt, die Amplitude behält ihr Verhalten bei, erreicht aber aufgrund der größeren Teilchendichte in der Zelle entsprechend größere absolut Werte. Für die Breite gibt es bei kleinen Leistungen im grünen Laserstrahl erneut Unstimmigkeiten, wie auch bei geringerem



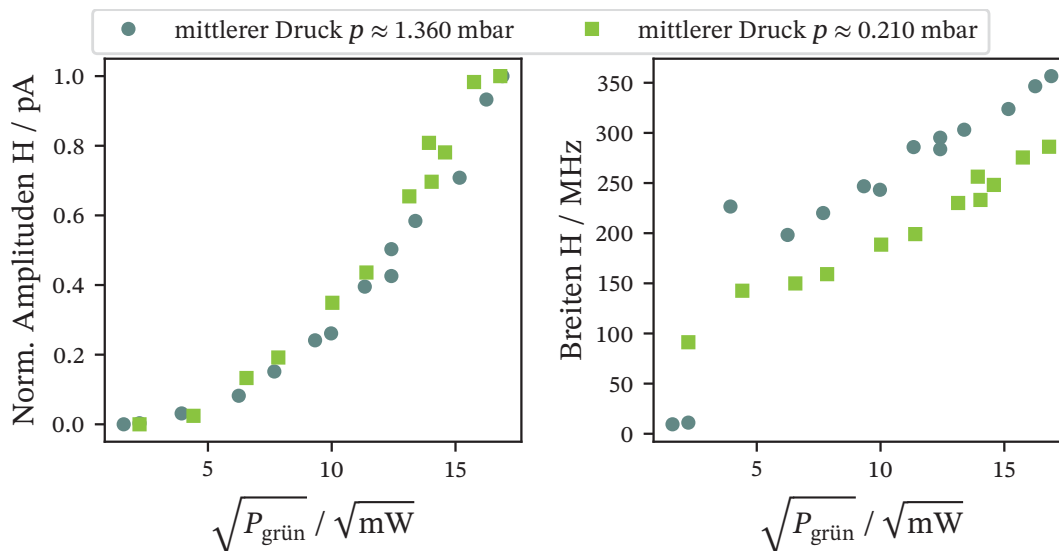
Druck. Dies kann wie bereits erwähnt eine Folge des Signal-Rausch-Verhältnisses sein, aber auch durch Fluktuationen in den Messwerten mit bedingt werden. Für eine bessere Vergleichbarkeit der Daten sind diese, bei Normierung der Amplitude auf das jeweilige Maximum in Abbildung 5.1.3 zusammen dargestellt. Hier wird nochmal deutlich,



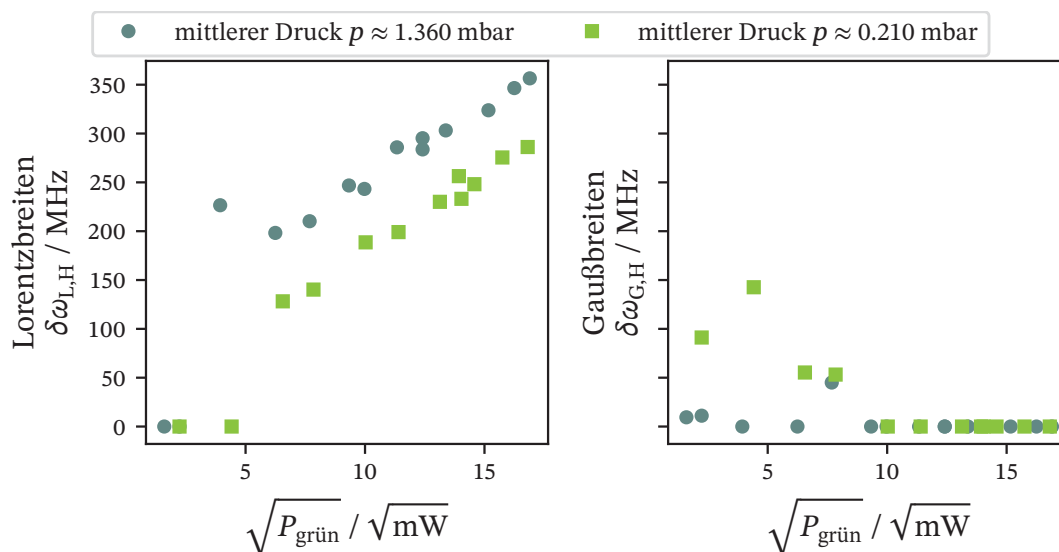
**Abb. 5.1.2:** Darstellung des Amplituden- und Breiten-Verlaufs des  $H^2\Sigma^+$ -Zustands, extrahiert aus einem Voigt-Fit, über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{grün}}}$  des Lasers im grünen Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{grün}} \approx 540$  nm), bei einem mittleren Druck  $p$  von 1,360 mbar.

dass der allgemeine Kurvenverlauf der Amplitude auch bei siebenmal höherem Druck erhalten bleibt und in der Breite durch den höheren Druck eine Verschiebung hin zu größeren Werten erfolgt.

In Abbildung 5.1.4 sind die Lorentz- und Gaußbreiten welche nach Gleichung 3.7 die Gesamtbreite des Signals bilden gezeigt. Auch hier lässt sich Ähnlichkeit zum Verhalten der Gauß- und Lorentzbreiten zu dem Verhalten der simulierten Daten in Abbildung 4.2.8 feststellen. Die Lorentzbreite nimmt mit anwachsender Leistung im grünen Laserstrahl zu und die Gaußbreite nimmt ab. So wird auch hier sichtbar, dass die Effekte aus der Leistungs- und Druckverbreiterung die Doppler- und Flugzeitverbreiterung dominieren. Der anfängliche Beitrag in der Gaußbreite kann auch hier, wie bereits für die simulierten Daten beschrieben durch eine Überlagerung der Verbreiterungen durch die Geschwindigkeitsklassen erklärt werden.



**Abb. 5.1.3:** Vergleich des Amplituden- und Breiten-Verlaufs des  $\text{H}^2\Sigma^+$ -Zustands, extrahiert aus einem Voigt-Fit, für zwei Messreihen bei unterschiedlichem mittleren Druck  $p$ . Die Daten sind über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{grün}}}$  des Lasers im grünen Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{grün}} \approx 540$  nm) dargestellt. Die Amplituden sind zur besseren Vergleichbarkeit auf ihr Maximum normiert.

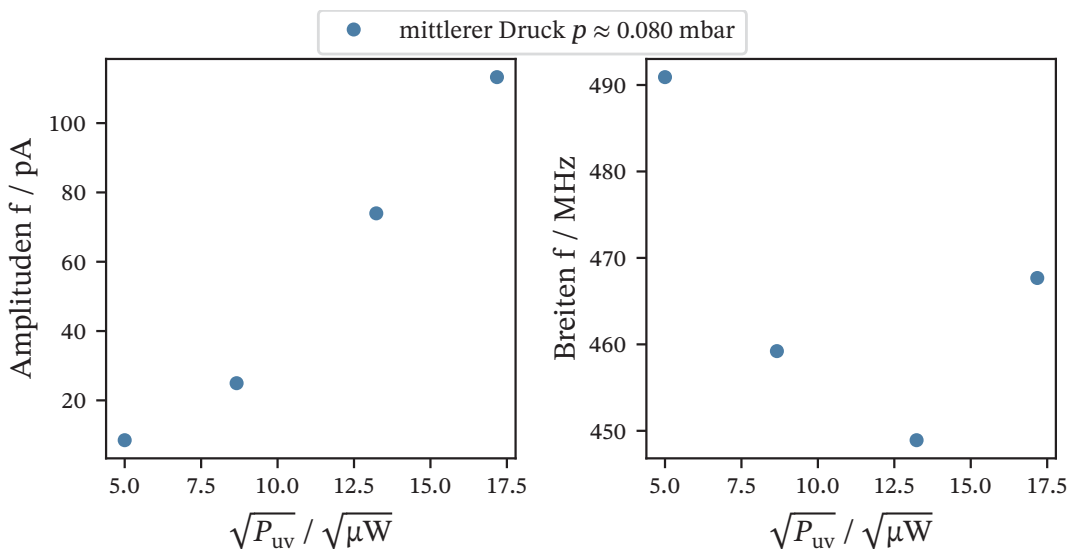


**Abb. 5.1.4:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreiten des  $\text{H}^2\Sigma^+$ -Zustands über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{grün}}}$  des Lasers im grünen Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{grün}} \approx 540$  nm) dargestellt.

## 5.2 22(0)-Rydbergzustand

Für den Rydbergzustand sind die aus den Leistungsserien zu den Laserstrahlen im grünen und infraroten Wellenlängenbereich extrahierten Daten zur Amplitude und Breite des f- und g-Zustands, sowie die Lorentz- und Gaußbreiten im Folgenden gezeigt. Für den Laserstrahl im ultravioletten Wellenlängenbereich wird nur der f-Zustand betrachtet. Aufgrund technischer Einschränkungen und sehr geringer Leistung, bei optimalen Bedingungen im Bereich um 0,5 mW im Laserstrahl im ultravioletten Wellenlängenbereich, werden hier lediglich extrahierte Daten einer Messreihe mit vier Punkten zur Vollständigkeit aufgeführt. Zu berücksichtigen ist außerdem, dass diese Messung für eine zu den anderen Messungen verschiedenen Linsenkonfiguration im experimentellen Aufbau und somit auch bei anders liegenden Foki der Laserstrahlen in der Zelle durchgeführt wurde.

In Abbildung 5.2.1 sind für vier verschiedene Leistungen  $P_{uv}$  die Amplituden und Breiten des f-Zustands aufgeführt. Für die Amplitude ist ein anwachsender Verlauf zu erkennen, für die Breite kann kein Verhalten aus den Daten geschlossen werden, da diese zu große Fluktuationen aufweisen.



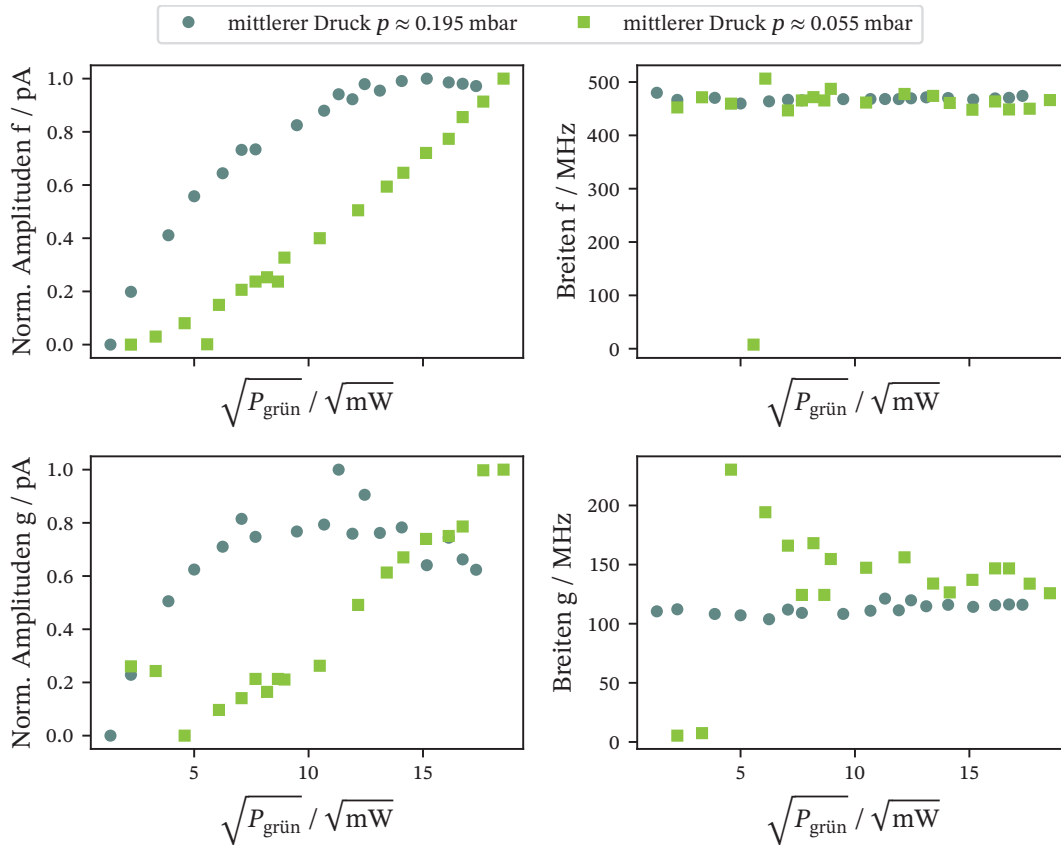
**Abb. 5.2.1:** Darstellung des Amplituden- und Breiten-Verlaufs des 22(0)-Rydbergzustands, extrahiert aus einem Voigt-Fit, über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{uv}}$  des Lasers im ultravioletten Wellenlängenbereich ( $\lambda_{uv} \approx 226$  nm), bei einem mittleren Druck  $p \approx 0,080$  mbar.

In Abbildung 5.2.2 sind für verschiedene Leistungen im grünen Laserstrahl bei geringerem Druck  $p = 0,055$  mbar und bei  $\sim 3,5$  Mal höherem Druck  $p = 0,195$  mbar die Amplituden und Breiten des f- und g-Zustands gezeigt. Die Amplituden sind für eine

bessere Vergleichbarkeit auf ihr Maximum normiert. Bei geringerem Druck zeigt der Verlauf der Amplitude im f-Zustand trotz kleinerer Fluktuationen einen deutlichen parabelförmigen Anstieg. In den Werten zur Amplitude des g-Zustands sind die Fluktuationen größer, trotzdem ist zu erkennen, dass die Amplitude mit größer werdender Leistung anwächst. Für sehr kleine Leistungen treten auch hier wieder Schwierigkeiten in der Erfassung der Messkurve durch den Voigt-Fit aufgrund von Abflachung des Messsignals und des kleiner werdenden Signal-Rausch-Verhältnisses auf. Dies hat sowohl auf die extrahierte Amplitude, als auch die Breite Einfluss. Für den f-Zustand ist bis auf kleine Fluktuationen keine Verbreiterung zu erkennen. Somit spielt in diesem Regime die Leistungsverbreiterung noch keine Rolle. Die Breite im g-Zustand zeigt ebenso wie in der Amplitude größere Fluktuationen als im f-Zustand, für größere Leistungen  $P_{\text{grün}}$  bleibt die Breite im Wesentlichen konstant.

Bei höherem Druck zeigt die Amplitude beider Zustände ein völlig anderes Verhalten, die Krümmung der Kurve ist negativ und es lässt sich für den f-Zustand das Eintreten einer Sättigung vermuten. Für den g-Zustand kann aufgrund von Fluktuationen der Datenpunkte nicht eindeutig gesagt werden, ob auch ein Effekt der Sättigung eintritt oder die Amplitude eine Abnahme erfährt. Bei höherem Druck treten vermehrt Kollisionen und die damit verbundenen Effekte auf, mehr Moleküle werden aus dem Rydbergzustand ionisiert und es kann mehr Ladung detektiert werden. Diese Ladungen führen zu Raumladungseffekten, sodass eine Abschwächung des elektrischen Felds durch die Ansammlung von Ladungen eintritt. Dies führt zu einer Art Sättigung, da weniger Ladungen detektiert werden können. Trotzdem kann dieses Verhalten nicht mit dem vereinfachten Vierniveausystem beschrieben werden und bietet Spielraum für weitere Untersuchungen. Die Breite im f-Zustand wird hier vom Druck scheinbar nicht beeinflusst, die Breite des g-Zustands allerdings fällt für den höheren Druck geringer aus und zeigt bei geringeren Fluktuationen als bei niedrigerem Druck ein gleichbleibendes Verhalten.

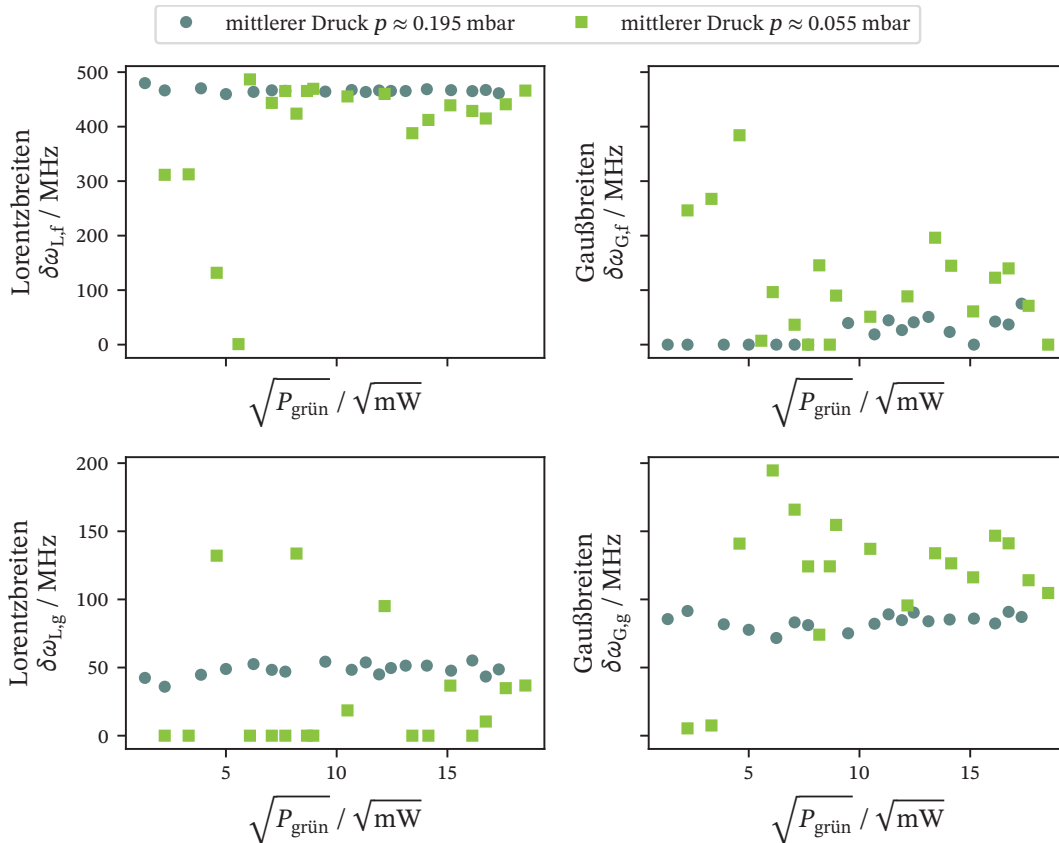
In Abbildung 5.2.3 sind die Lorentz- und Gaußbreiten beider Zustände für beide Drücke gezeigt. Beide Zustände zeigen für unterschiedlichen Druck ein ähnliches konstantes Verhalten. Die Lorentzbreite hat für den f-Zustand für beide Drücke etwa die gleiche Verschiebung, durch die Prädissoziation des Moleküls ([12]) und aus der natürlichen Linienbreite, wobei die Werte für den geringeren Druck tendenziell geringer sind, als die für den höheren Druck. Die Lorentzbreite für den g-Zustand hat eine vergleichsweise zum f-Zustand viel geringere Verschiebung, auch hier trägt die Prädissoziation des Moleküls, allerdings in geringerem Maße als für den f-Zustand und die natürlichen Linienbreite bei. Die Verschiebung ist auch hier größer bei höherem Druck. In der Gaußbreite zeigt sich ein anderes Verhalten, im f-Zustand für einen kleinen Druck gibt es größere Fluktuationen, im Mittel ist trotzdem eher ein konstantes Verhalten zu erkennen. Für einen höheren Druck fallen die Gaußbreiten für den f-Zustand zunächst geringer aus. Durch den höheren Druck, stoßen die Moleküle untereinander mehr, was insgesamt ihre Geschwindigkeit reduziert, sodass eine Verbreiterung aus dem Doppellereffekt abgeschwächt wird. Mit steigender Leistung  $P_{\text{grün}}$  sieht es so aus als würde für den höheren Druck eine Verbreiterung eintreten. Mit steigender Leistung können mehr Moleküle angeregt werden, sodass auch bei höherem Druck mehr Stoßprozesse



**Abb. 5.2.2:** Vergleich des Amplituden und Breiten Verlaufs des 22(0)-Rydbergzustands, extrahiert aus einem Voigt-Fit, für zwei Messreihen bei unterschiedlichem mittlerem Druck  $p$ . Die Daten sind über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{grün}}}$  des Lasers im grünen Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{grün}} \approx 540$  nm) dargestellt. Die Amplituden sind zur besseren Vergleichbarkeit auf ihr Maximum normiert.

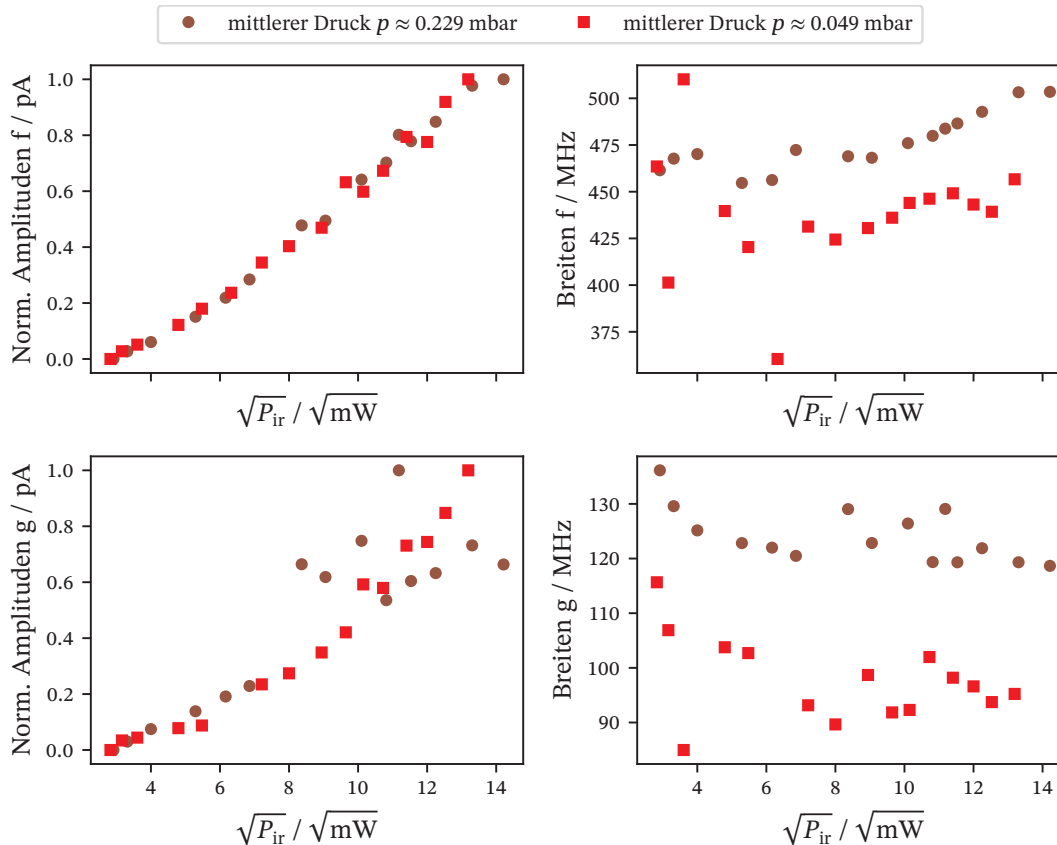
zur Ionisation und somit Detektionsmöglichkeiten beitragen. Ein solcher Effekt müsste anhand der Entwicklung der Lorentzbreite erkannt werden, erklärt aber nicht die Zunahme in der Gaußbreite. Durch den höheren Druck in der Zelle können die zur Gaußbreite beitragenden Flugzeit- und Dopplereffekte allerdings mitbeeinflusst werden. Mit steigendem Druck trägt die Druckverbreiterung durch Erhöhung der verfügbaren Geschwindigkeitsklassen auch zur Gaußbreite bei [13]. Die Gaußbreite im g-Zustand verhält sich für beide Druckeinstellungen konstant, wobei der geringere Druck in Absolutwerten mehr Gaußbreite liefert als der höhere Druck.

In Abbildung 5.2.4 sind für den f- und g-Zustand die aus dem Voigt-Fit extrahierten Amplituden und Breiten für zwei verschiedene Druckeinstellungen,  $p \approx 0,049$  mbar und  $p \approx 0,229$  mbar, über die Wurzel Leistung des Laserstrahls im infraroten Wellenlängenbereich  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$  gezeigt. Die Amplituden sind für eine bessere Vergleichbarkeit auch hier auf ihr Maximum normiert. Die Amplitude im f-Zustand zeigt für beide Drücke



**Abb. 5.2.3:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreiten des  $22(0)$ -Rydbergzustands über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{grün}}}$  des Lasers im grünen Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{grün}} \approx 540$  nm) dargestellt. Oben sind die Lorentz- und Gaußbreiten zum f-Zustand und unten die zum g-Zustand aufgeführt.

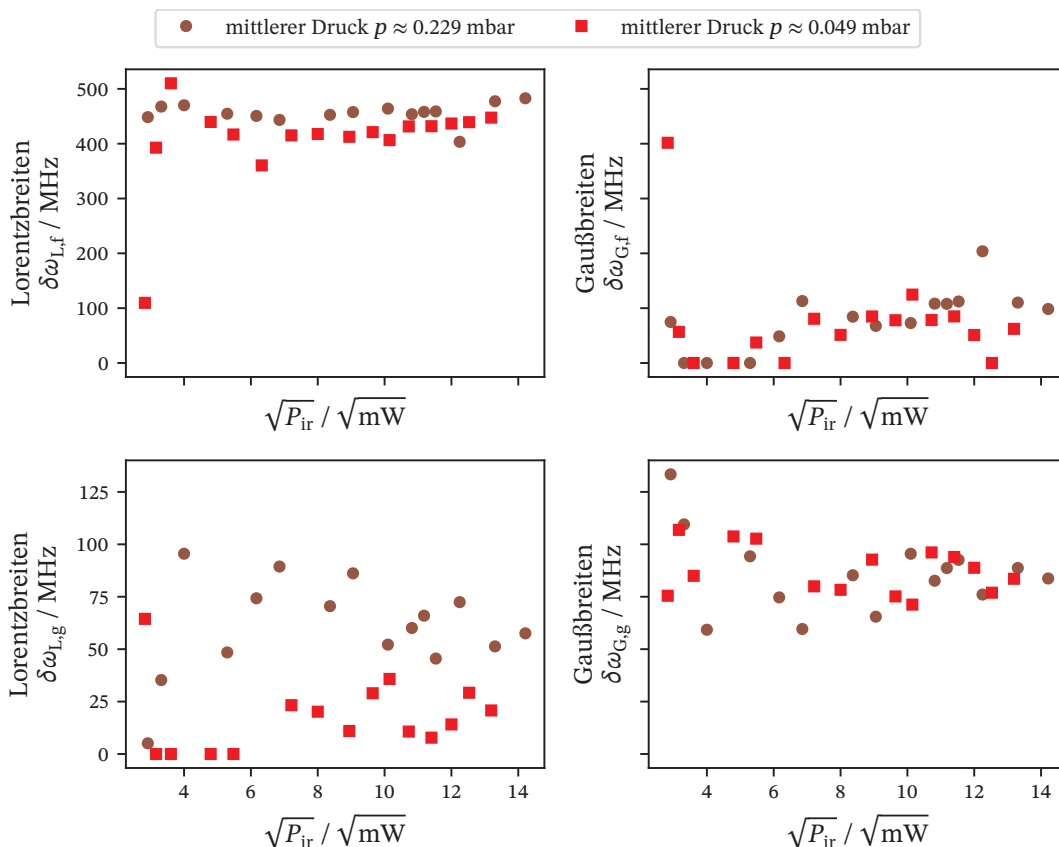
auch hier einen parabelförmigen Anstieg. Auch die Amplitude im g-Zustand folgt für beide Drücke diesem Verhalten, wo bei bei höherem Druck für größere Leistungen  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$  vermehrt Fluktuationen auftreten. Die Breite im f-Zustand zeigt für beide Drücke ähnliches Verhalten, wobei durch den höheren Druck nur eine Verschiebung nach oben bedingt wird. Für kleinere Leistungen  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$  kommt es bei niedrigem Druck zu größeren Fluktuationen. Beim höheren Druck ist für kleinere Leistungen ein den Erwartungen, der Theorie (Gleichung 3.17) entsprechender konstanter linearer Verlauf in der Breite erkennbar, bevor mit steigender Leistung  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$  auch die Breite zunimmt. Die Breite im g-Zustand zeigt ebenfalls für beide Drücke ähnliches Verhalten, wobei auch hier durch den höheren Druck nur eine Verschiebung nach oben bedingt wird. Für kleinere Leistungen nimmt auch das Signal des g-Zustands weiter ab, was es schwerer macht bei abflachendem Messsignal und kleinem Signal-Rausch-Verhältnis die Daten entsprechend zu fiten. So kann es vorkommen, dass die Amplitude des Signals noch erfasst werden kann aber die Breite sich über das Rauschen ausdehnt und nicht aussagekräftig



**Abb. 5.2.4:** Vergleich des Amplituden- und Breiten-Verlaufs des 22(0)-Rydbergzustands, extrahiert aus einem Voigt-Fit, für zwei Messreihen bei unterschiedlichem mittlerem Druck  $p$ . Die Daten sind über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$  des Lasers im infraroten Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{ir}} \approx 848$  nm) dargestellt.

ist. Dies könnte den scheinbaren Abfall der Breite erklären, da ab einem bestimmten Bereich auch die Breite wieder erfasst werden kann und durch das Rauschen nicht mehr in diesem Maß beeinträchtigt wird. In Abbildung 5.2.5 sind die Lorentz- und Gaußbreiten für den f- und g-Zustand, ebenfalls über die Leistung  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$ , für beide Drücke aufgetragen. Für den f-Zustand verhalten sich die Lorentz- und Gaußbreiten für beide Drücke untereinander ähnlich. Die Lorentzbreite bleibt konstant und ihre Verschiebung wird durch die dissoziative Linienbreite vorgegeben, der Druckunterschied bedingt eine positive Verschiebung der Lorentzbreite. In der Gaußbreite ist mit anwachsender Leistung  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$  ein Anstieg zu erkennen, somit kommt es zu Verbreiterungseffekten bedingt von der Flugzeitverbreiterung oder dem Dopplereffekt. Für den g-Zustand bleibt die Lorentzbreite konstant, wobei auch hier durch den höheren Druck nur eine positive Verschiebung eintritt. Die Gaußbreiten für den g-Zustand sind ebenfalls konstant und nehmen für beide Drücke gleiche Werte an.

Die Amplituden und auch die Breiten zeigen für den  $\text{H}^2\Sigma^+$ -Zustand und den 22(0)-



**Abb. 5.2.5:** Abbildung des Verlaufs der Lorentz- und Gaußbreiten des 22(0)-Rydbergzustands über die Wurzel der Leistung  $\sqrt{P_{\text{ir}}}$  des Lasers im infraroten Wellenlängenbereich ( $\lambda_{\text{ir}} \approx 848$  nm) dargestellt. Oben sind die Lorentz- und Gaußbreiten zum f-Zustand und unten die zum g-Zustand aufgeführt.

Rydbergzustand sehr ähnliches Verhalten bei geringem Druck. Für den höheren Druck gibt es im 22(0)-Rydbergzustand bei Variation der Laserstrahlleistung des grünen Wellenlängenbereichs Abweichungen im Verhalten, sowohl für die Amplitude als auch die Breite.

### 5.3 Strahlverlauf

In diesem Abschnitt geht es um die Charakterisierung der Strahlverläufe im optischen Aufbau des Experiments zur Bestimmung der Querschnittsflächen der Laserstrahlen in der Messzelle. Die Laserstrahlen werden als Gaußstrahlen betrachtet. Für einen Gaußstrahl ist der Radius des Laserstrahls bei einer Intensitätsabnahme auf  $1/e^2$  angegeben.



Das Strahlprofil wird mit

$$w(z) = w_0 \cdot \sqrt{1 + \left(\frac{z - z_0}{z_R}\right)^2}, \quad z_R = \frac{\pi \cdot w_0^2}{\lambda} \quad (5.1)$$

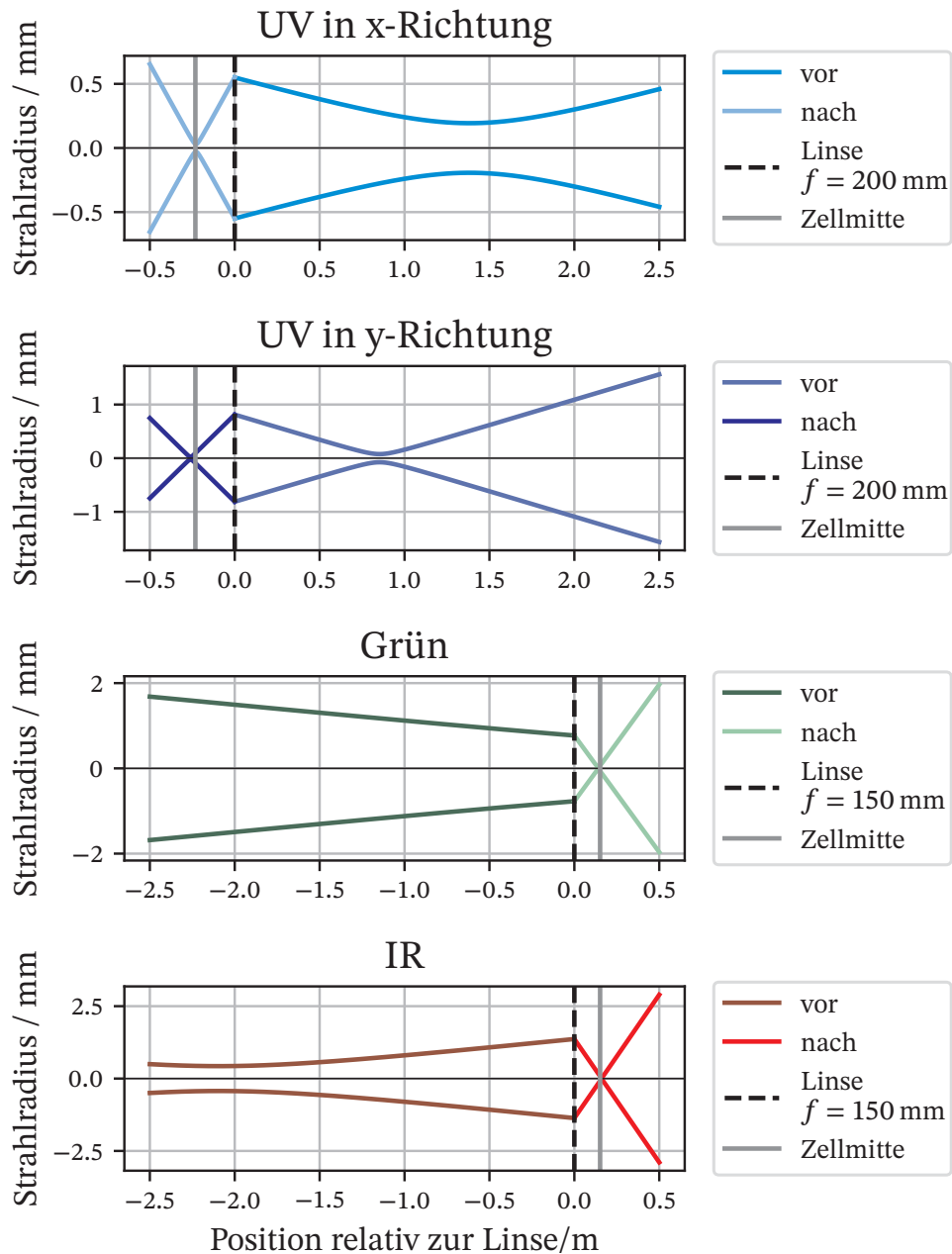
bestimmt, wobei  $w$  den Strahlradius (engl.: waist) an der Position  $z$  entlang der optischen Achse,  $z_0$  die Verschiebung,  $w_0$  die Strahltaile und  $z_R$  die Rayleigh-Länge angibt. Mithilfe der Knife-Edge-Methode [30] wird an je zwei Positionen mit größtmöglichem Abstand jeder Laserstrahl ausgemessen. Der Laserstrahl aus dem ultravioletten Wellenlängenbereich wird aufgrund seiner ovalen Strahlform in zwei Raumrichtungen vermessen, in der  $x$ -Richtung horizontal zum optischen Tisch und in  $y$ -Richtung vertikal zum optischen Tisch. Aus den erfassten Daten wird mithilfe einer Fehlerfunktion

$$\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt, \quad (5.2)$$

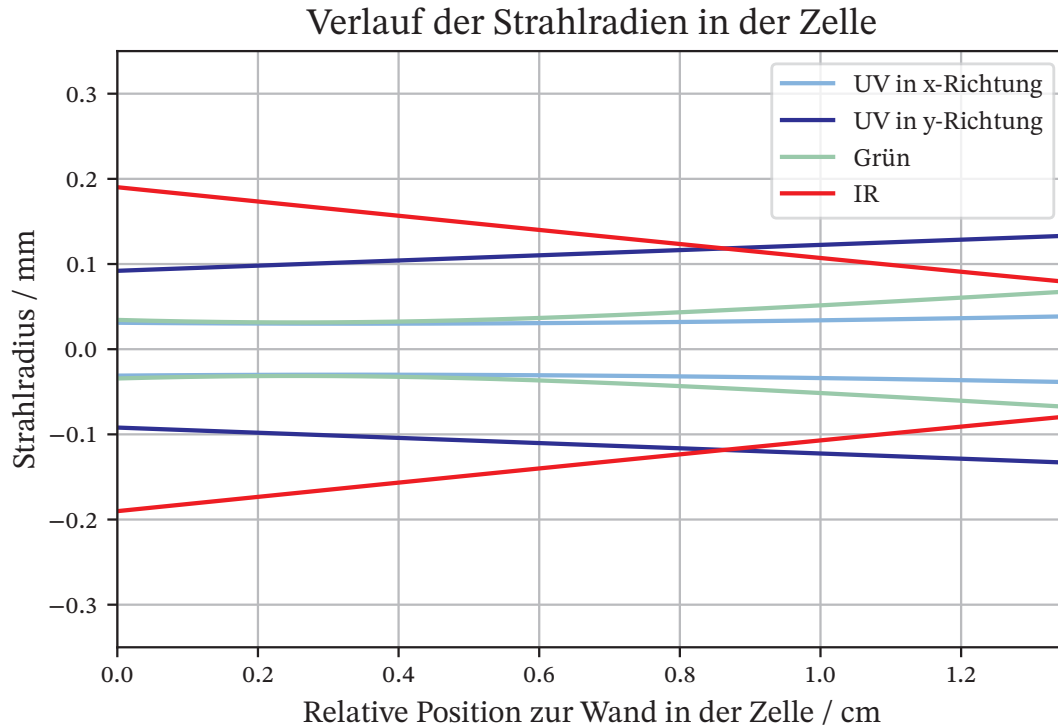
wobei  $x$  die Position der Rasierklinge im Strahl angibt, der Strahlradius an der vermessenen Position im optischen Aufbau bestimmt. Um nun aber den Strahlradius innerhalb der Messzelle zu erfassen, muss berücksichtigt werden, dass die Laserstrahlen kurz vor der Messzelle über je eine Linse mit der Brennweite  $f$  in diese fokussiert werden. Es kann über [31]

$$z'_0 = f + \frac{f^2 \cdot (z_0 - f)}{(z_0 - f)^2 + z_R^2} \quad w'_0 = w_0 \sqrt{\left(\frac{f}{z_0 - f}\right)^2 + \left(\frac{f}{z_R}\right)^2} \quad (5.3)$$

die neue Verschiebung  $z'_0$  und die neue Strahltaile  $w'_0$  für den Laserstrahl hinter der Linse bestimmt werden. In Abbildung 5.3.1 sind die so gewonnenen Strahlradien vor und hinter der fokussierenden Linse abgebildet, wobei für den im ultravioletten Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahl die ausgemessenen Raumrichtungen separat aufgeführt sind. Die Position der Messzelle ist durch eine graue vertikale Linie und die Linse durch eine gestrichelte schwarze Linie gekennzeichnet. In Abbildung 5.3.2 sind zur weiteren Veranschaulichung die Verläufe der Strahlradien innerhalb der Messzelle dargestellt. Außerdem sind in Tabelle 5.3.1 die Strahlradien und die Strahlquerschnittsflächen, für die Mitte der Messzelle aufgeführt. Für die angegebenen Fehler der Strahlradien wurde einerseits ein möglicher Fehler aus der Verwendung der Knife-Edge-Methode, anhand der Ablesegenauigkeit der Translationsskala der Vorrichtung, von  $\Delta r_{\text{Knife-edge}} = 10 \mu\text{m}$  und ein Fehler aus der Positionsbestimmung entlang der optischen Achse von  $\Delta z = 5 \text{ mm}$  berücksichtigt. Der Fehler aufgrund der Messgenauigkeit des Messgeräts für die Leistung ist im Vergleich zu den angegebenen Fehlern vernachlässigbar.



**Abb. 5.3.1:** Darstellung des Verlaufs der Strahlradien vor und nach den in die Messzelle fokussierenden Linsen. Für den im ultravioletten Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahl ist aufgrund seiner Form der Verlauf für zwei Raumrichtungen gezeigt. Die Brennweite der zugehörigen Linse entspricht  $f = 200$  mm. Für die im grünen und im infraroten Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahlen ist jeweils nur eine Raumrichtung zur Darstellung des Verlaufs notwendig. Die Brennweite der zugehörigen Linse beträgt  $f = 150$  mm. Der Strahlradius wird hierbei absolut abgelesen.



**Abb. 5.3.2:** Aufführung des Verlaufs der Strahlradien innerhalb der Messzelle. Die Position ist relativ zu der Zellwand angegeben, an welcher die im infraroten und im grünen Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahlen in die Zelle eindringen. Auch hier sind für den im ultravioletten Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahl aufgrund seiner Form zwei Raumrichtungen aufgeführt, um den Verlauf besser zu erfassen. Der Strahlradius wird hierbei absolut abgelesen.

**Tab. 5.3.1:** Aufführung der Strahlradien und Strahlquerschnittsflächen in der Mitte der Messzelle. Zum Laserstrahl im ultravioletten Wellenlängenbereich ist der Strahlradius für zwei Raumrichtungen, für die  $x$ - und für die  $y$ -Richtung, und zu den Laserstrahlen im grünen und infraroten Wellenlängenbereich für eine Raumrichtung angegeben.

Wellenlängenbereich	ultraviolett		grün	infrarot
$w_{\text{Zellmitte}} / \mu\text{m}$	31,0(112)	112,5(183)	38,9(227)	135,9(435)
$A_{\text{Zellmitte}} / \text{mm}^2$	$1,100(574) \cdot 10^{-2}$		$4,75(139) \cdot 10^{-3}$	$5,800(929) \cdot 10^{-2}$



## 6 Simulationen und Messungen

Um die Messergebnisse aus Kapitel 5 mit den Daten aus der in Kapitel 4 eingeführten Simulation vergleichen zu können, wird diese zunächst weiter an das Experiment angepasst.

Aus unterschiedlichen Messdaten zum Experiment, teils aus bereits veröffentlichten Daten und teils aus Messungen bezüglich dieser Arbeit, wurden Linienbreiten für die Übergänge Experiment spezifisch abgeschätzt. Die Linienbreite des ersten Übergangs  $\Gamma_{ge}$  wurde mit Hilfe von [32] auf 10 MHz und entsprechend die Linienbreite des zweiten Übergangs  $\Gamma_{es}$  über die Berechnung der Flugzeitverbreitung (Gleichung 3.13) ebenfalls auf 10 MHz abgeschätzt. Die Linienbreiten der Rydberg-f- und -g-Zustände wurden anhand der Messungen aus Kapitel 5 auf  $\Gamma_{sr_f} = 440$  MHz und  $\Gamma_{sr_g} = 120$  MHz abgeschätzt. Außerdem wurde die Wellenlänge des infraroten Laserstrahls auf  $\lambda_{ir} \approx 848$  nm entsprechend dem anzuregenden 22(0)-Rydbergzustand angepasst. Die anderen beiden Wellenlängen wurden mit  $\lambda_{uv} \approx 226$  nm und  $\lambda_{grün} \approx 540$  nm beibehalten.

Da es hier um einen direkten Vergleich der Simulationsergebnisse und der Messergebnisse geht, wird für die Berücksichtigung des Dopplereffekts die wahrscheinlichste Geschwindigkeit  $v_w$  (Gleichung 3.8) betrachtet und auf dieser Basis der erfasste Geschwindigkeitsbereich auf das Doppelte erweitert. Die erhöhte Rechenkomplexität und -dauer werden zugunsten einer höheren Genauigkeit in Kauf genommen, um sicherzustellen, dass die Messdaten und die Simulationsergebnisse bestmöglich miteinander verglichen werden können. Die Auswertung der simulierten Ergebnisse erfolgt genauso wie in Kapitel 4 beschrieben anhand einer Voigt-Funktion (Gleichung 3.6).

Es werden ausschließlich die in Kapitel 5 bei niedrigem Druck ausgewerteten Daten für den Vergleich von experimentellen und simulierten Daten verwendet, um eine bessere Vergleichbarkeit zu erzielen, da in der Simulation die Druckverbreiterung nicht berücksichtigt wird. Außerdem werden für den Vergleich ausschließlich die Amplituden verwendet, da diese durch ihren Verlauf ein besseres Kriterium bieten als die Breiten, da diese kaum Verbreiterungseffekte aufweisen.

Aus dem Vergleich der aus den Simulationen und den Messungen extrahierten Amplituden werden Proportionalitätsfaktoren gewonnen, die innerhalb der betrachteten Systeme und über beide Systeme hinweg miteinander konsistent sind und die Berechnung der Linienbreite, der Lebensdauer und der Sättigungsintensität der betrachteten Übergänge ermöglichen. Die Proportionalitätsfaktoren  $\alpha$  und  $\beta$  ergeben sich allgemein aus den

Zusammenhängen

$$\Omega = \Gamma \sqrt{\frac{I}{2I_{\text{sat}}}} = \frac{\Gamma}{\sqrt{2I_{\text{sat}} \cdot A}} \cdot \sqrt{P} \equiv \frac{1}{\alpha} \cdot \sqrt{P} \quad , \quad \frac{Q}{t} = 2e \cdot \bar{v} \sigma N \eta \bar{\rho}_{ii} \equiv \beta \cdot \bar{\rho}_{ii} \quad (6.1)$$

zwischen der Rabifrequenz  $\Omega$  und der Wurzel der Leistung  $\sqrt{P}$  für  $\alpha$ , über die Linienbreite, die Sättigungsintensität und die Querschnittsfläche des betrachteten Laserstrahls (Gleichung 3.18). Für  $\beta$  ergibt sich der Zusammenhang zwischen dem Strom  $Q/t$  und der geschwindigkeitsgemittelten Population über die Elementarladung  $e$ , die mittlere Geschwindigkeit  $\bar{v}$ , den Streuquerschnitt des Rydbergzustands  $\sigma$ , die Teilchendichte  $N$  und den Wirkungsgrad der Umsetzung  $\eta$  [6].

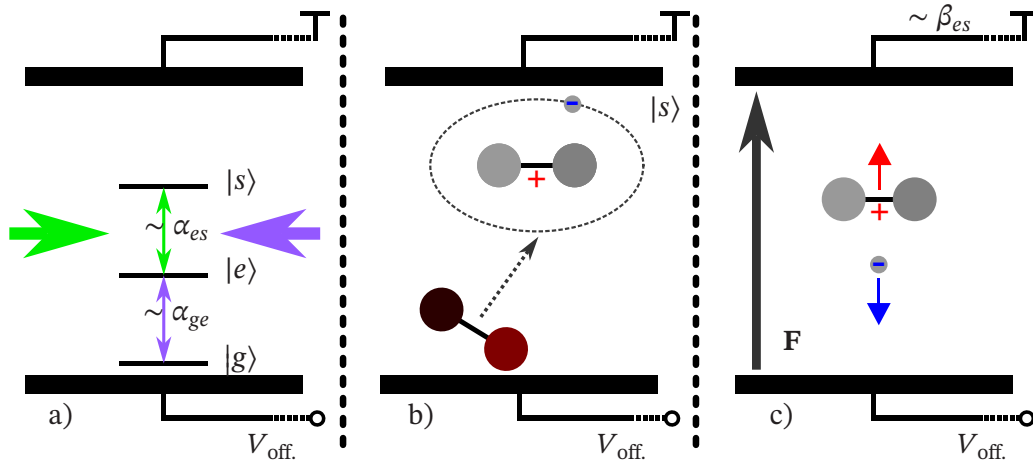
## 6.1 Dreiniveausystem — $H^2\Sigma^+$ -Zustand

Der Molekülzustand  $H^2\Sigma^+$  wird zur Vereinfachung der Darstellung mit  $|H\rangle$  oder im Index mit H bezeichnet. Um aus der Simulation Informationen über den Vergleich mit experimentell erlangten Daten zu erhalten, müssen die aus der Simulation extrahierten Daten bezüglich der Population und der Rabifrequenzen über eine Umskalierung vergleichbar mit dem Messstrom und der Leistung der Laserstrahlen gemacht werden. Die Skalierung der Simulationsdaten erfolgt entsprechend der Zusammenhänge analog zu Gleichung 6.1

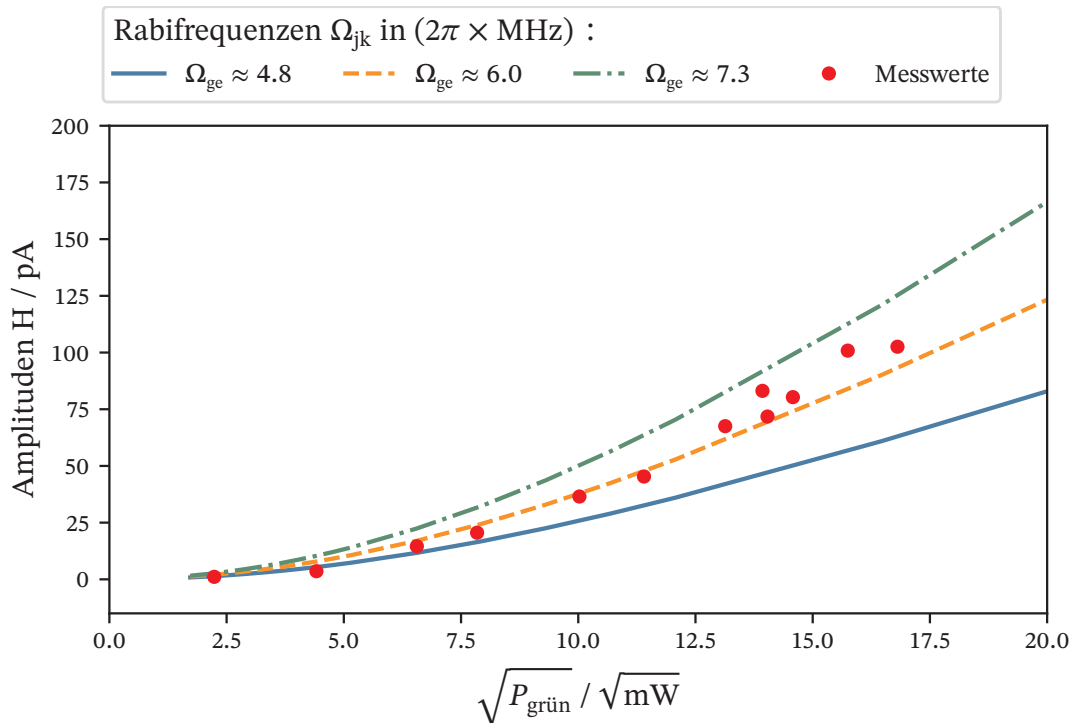
$$\bar{\rho}_{ii} \cdot \beta_{jk} = Q/t \quad , \quad \Omega_{jk} \cdot \alpha_{jk} = \sqrt{P} \quad , \quad (6.2)$$

zwischen der geschwindigkeitsgemittelten Population des obersten Zustands  $\bar{\rho}_{ii}$  und dem Strom  $Q/t$  und zwischen der Rabifrequenz  $\Omega_{jk}$  und der Wurzel der gemessenen Leistung  $\sqrt{P}$  des Laserstrahls verantwortlich für den entsprechenden Übergang von  $|j\rangle$  nach  $|k\rangle$ . Anhand von Abbildung 6.1.1 kann die Bedeutung der Proportionalitätsfaktoren für das Dreiniveausystem veranschaulicht werden. Dabei kann  $\beta$  als eine Art Detektionseffizienz der angeregten und ionisierten Moleküle interpretiert werden und der Faktor  $1/\alpha$  beinhaltet die Sättigungsintensität sowie die Linienbreite.

In Abbildung 6.1.2 sind die Amplituden dreier simulierter Kurven aus dem Dreiniveausystem zum H-Zustand skaliert auf die aus den Messwerten extrahierten Amplituden bei einer Variation der Leistung im Laserstrahl zugehörig zum zweiten Übergang abgebildet. Aus allen simulierten Kurven für das Dreiniveausystem kann für die hier abgebildeten eine Übereinstimmung mit den experimentell erhobenen Daten gefunden werden. Somit kann anhand der den Kurven zugehörigen Rabifrequenzen für diese ein Bereich festgelegt werden.



**Abb. 6.1.1:** Abbildung zur Veranschaulichung der Proportionalitätsfaktoren zwischen experimentell erfassten Daten und aus einer Simulation gewonnenen Daten. In a) ist innerhalb der Messzelle und zwischen den Zellelektroden das Anregungsschema eines Dreiniveausystems zu sehen. Die die Übergänge treibenden Rabifrequenzen  $\Omega_{jk}$  sind entsprechen über  $\alpha_{jk}$  der Wurzel der im Experiment eingestellten Leistung der Laserstrahlen. In b) ist der durch Stöße hervorgerufene Ionisationsprozess des angeregten Zustands abgebildet, und in c) ist die Detektion des Messtroms durch die Beschleunigung der Elektronen und Ionen entlang des elektrischen Potentials hin zu den Zellelektroden zu sehen. Die detektierte Ladung pro Zeit ist über  $\beta$  proportional zur Population im obersten Zustand.



**Abb. 6.1.2:** Abbildung der aus den Messwerten extrahierten Amplituden des H-Zustands, für eine Leistungsserie bezüglich des im grünen Wellenlängenbereich<sup>57</sup> liegenden Laserstrahls, zusammen mit übereinstimmenden und skalierten Kurven der Amplitude, gewonnen aus der Simulation.

Die Proportionalitätsfaktoren zur Skalierung der Simulation und der bestimmte Bereich für die Rabifrequenz  $\Omega_{ge}$  des ersten Übergangs aus der Analyse der Messung und der entsprechenden Simulation sind in Tabelle 6.1.1 aufgeführt. Dabei ist zu beachten, dass die Zustände aus der Theorie, der Grundzustand  $|g\rangle = |X\rangle$ , der erste angeregte Zustand  $|e\rangle = |A\rangle$  und der zweite angeregte Zustand  $|s\rangle = |H\rangle$ , nun den entsprechenden Zuständen des Moleküls zugeordnet werden können. Über den für die Rabifrequenz  $\Omega_{XA}$  bestimmten Bereich, kann nun die Linienbreite  $\Gamma_{XA}$  bestimmt werden.

Dazu werden die Sättigungsintensität aus Gleichung 3.17, die Gleichung 3.18, der allgemeine Zusammenhang für die Intensität  $I = P/A$ , als Leistung pro Fläche und Gleichung 6.2 miteinander verrechnet und nach der Linienbreite

$$\Gamma_{ij} = \frac{1}{\alpha_{ij}^2} \cdot \frac{2}{3} \frac{A\pi hc}{\lambda^3} \quad (6.3)$$

umgestellt. Die Querschnittsfläche  $A$  bezieht sich für jeden Übergang auf den entsprechenden Strahlquerschnitt in der Mitte der Messzelle und kann Tabelle 5.3.1 entnommen werden.

**Tab. 6.1.1:** Aufführung der für den H-Zustand bestimmten Proportionalitätsfaktoren  $\alpha_{jk}$  und  $\beta_{jk}$ , sowie der Bereiche für die Rabifrequenzen  $\Omega_{jk}$  im Dreinevensystem.

Zustand	H <sup>2</sup> Σ <sup>+</sup> -Zustand
$\Omega_{XA} / (2\pi \times \text{MHz})$	4,8 - 7,3
$\alpha_{XA} / \sqrt{Js}$	-
$\beta_{XA} / A$	-
$\Omega_{AH} / (2\pi \times \text{MHz})$	-
$\alpha_{AH} / \sqrt{Js}$	$5,45(113) \cdot 10^{-8}$
$\beta_{AH} / A$	$4,98(103) \cdot 10^{17}$

Wenn Zerfallsraten und Lebensdauern für einen bestimmten Übergang angegeben werden, so handelt es sich dabei um Raten nur für diesen Übergang, also den Einstein-A-Koeffizienten dieses speziellen Übergangs. Diese sind nicht mit der gesamten Zerfallsrate des Zustands und dessen Lebensdauer zu verwechseln [8].

Zur Abschätzung des Fehlers wird  $\Delta A$  aus Tabelle 5.3.1 entnommen und der Fehler für  $\alpha$  wird über die prozentuale Abweichung des dadurch bestimmbar Bereichs für die Rabifrequenz festgelegt. Auch für  $\beta$  erfolgt die Bestimmung der Abweichung analog zu der für  $\alpha$ . Die zu den Wellenlängen der Laserstrahlen gehörenden Frequenzen sind bis auf eine Präzision von  $\sim 10$  MHz bekannt, sodass diese hier nur einen vergleichsweise geringen und gegenüber den anderen beitragenden Fehlergrößen vernachlässigbaren Fehler liefern. Somit ergibt sich anhand einer Größtfehlerabschätzung für den Fehler der Linienbreite

$$\Delta\Gamma \approx \left| \frac{1}{\alpha^2} \frac{2}{3} \frac{\pi hc}{\lambda^3} \right| \cdot \Delta A + \left| \frac{1}{\alpha^3} \frac{4}{3} \frac{A\pi hc}{\lambda^3} \right| \cdot \Delta\alpha \quad (6.4)$$

Die bestimmten Linienbreiten und die entsprechenden Fehler sind in Tabelle 6.1.2 aufgeführt. Wird die bestimmte radiative Linienbreite  $\Gamma_{\alpha,AH} = 2\pi \times 4,23(298)$  Hz, die reine Zerfallsrate unter Aussenden eines grünen Photons von  $|H\rangle$  nach  $|A\rangle$ , mit der für die Simulation vorgegebenen Linienbreite  $\Gamma_{es} = 2\pi \times 10$  MHz verglichen, so wird der Ein-



**Tab. 6.1.2:** Aufführung der über  $\alpha$  bestimmten Linienbreite  $\Gamma_\alpha$  des zweiten Übergangs zum  $H^2\Sigma^+$ .

Zustand	$H^2\Sigma^+$	
	$A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2}$	$H^2\Sigma^+ \leftarrow A^2\Sigma^+$
$\alpha / \sqrt{Js}$	-	$5,45(113) \cdot 10^{-8}$
$A_{\text{Zellmitte}} / \text{mm}^2$	$1,100(574) \cdot 10^{-2}$	$4,75(139) \cdot 10^{-3}$
$\lambda / \text{nm}$	226	540
$\Gamma_\alpha / (2\pi \times \text{Hz})$	-	4,23(298)

fluss der Durchflugsverbreiterung deutlich. Die Moleküle verlassen das Überlappende Strahlvolumen bevor sie detektiert werden, bzw. optisch zerfallen und ein grünes Photon aussenden können, sodass auch die Lebensdauer  $\tau_{\text{es}} = 0,1 \mu\text{s}$  durch diesen Effekt dominiert wird. Die Größe der radiativen Linienbreite  $\Gamma_{\alpha, \text{AH}}$  wird durch die Eigenschaft des Übergangs, aus atomarer Sicht dipolverboten zu sein definiert, sodass dieser Übergang eine geringe Übergangswahrscheinlichkeit besitzt. Außerdem konnte experimentell (Abbildung 5.1.4) festgestellt werden, dass die Linienbreite bei geringer Leistung sowohl einen Beitrag aus der Lorentz- als auch aus der Gausbreite hat, hier spielen verschiedene Verbreiterungsprozesse noch eine Rolle. Für hohe Leistungen im Laserstrahl zu  $\lambda_{\text{grün}}$ , wird die Breite hauptsächlich durch die Lorentzbreite bestimmt, hier trägt dann auch die Durchflugsverbreiterung zum Lorentzanteil, aufgrund von Wechselwirkungseffekten bei.

Zusätzlich kann die Sättigungsintensität bestimmt werden, dafür wird in Gleichung 3.18 die Beziehung  $I = P/A$  für die Intensität eingesetzt und nach der Sättigungsintensität

$$I_{\text{sat}} = \frac{1}{2} \frac{P}{A} \left( \frac{\Gamma}{\Omega} \right)^2 \quad (6.5)$$

umgestellt, aus Gleichung 6.2 wird die Beziehung für  $\alpha = \sqrt{P}/\Omega$  entnommen und in Gleichung 6.5 eingesetzt. Die Sättigungsintensitäten der Übergänge können nun nach

$$I_{\text{sat}} = \frac{1}{2} \frac{\Gamma^2 \alpha^2}{A} \quad (6.6)$$

über die in der Simulation definierten Linienbreiten bestimmt werden. Der Fehler für die Sättigungsintensität ergibt sich nach

$$\Delta I_{\text{sat}} = \left| \frac{\Gamma^2 \alpha}{A} \right| \Delta \alpha + \left| \frac{1}{2} \frac{\Gamma^2 \alpha^2}{A^2} \right| \Delta A \quad (6.7)$$

und für die Sättigungsleistung  $P_{\text{sat}} = I_{\text{sat}} \cdot A$  erfolgt die Berechnung des Fehlers analog zu der für die Sättigungsintensität. Die Resultate beider Größen inklusive der Fehler

sind in Tabelle 6.1.3 zu finden.

Im Experiment werden bereits Sättigungsleistungen im zu  $\lambda_{\text{grün}}$  gehörenden Laserstrahl

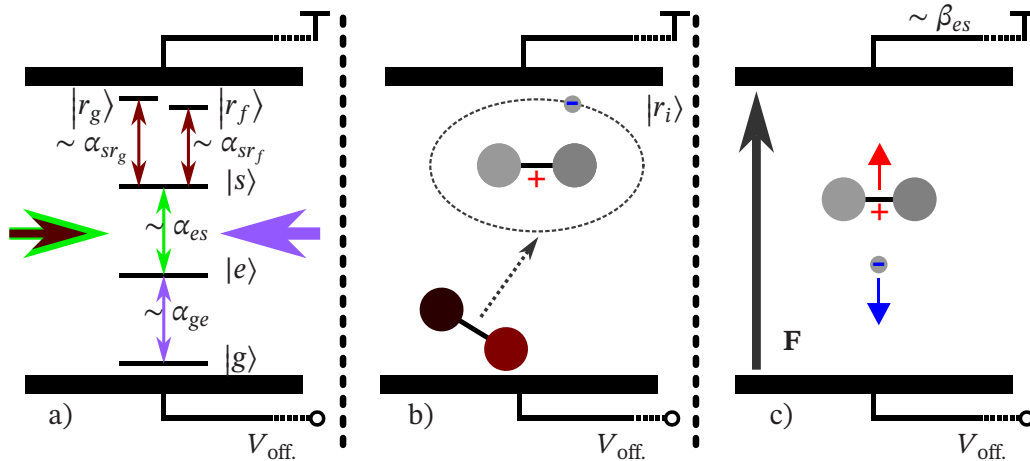
**Tab. 6.1.3:** Aufführung der über  $\alpha$  bestimmten Sättigungsintensität  $I_{\text{sat},\alpha}$  und Leistung  $P_{\text{sat},\alpha}$  des zweiten Übergangs zum  $\text{H } ^2\Sigma^+$ .

Zustand	$\text{H } ^2\Sigma^+$	
	$\text{A } ^2\Sigma^+ \leftarrow \text{X } ^2\Pi_{3/2}$	$\text{H } ^2\Sigma^+ \leftarrow \text{A } ^2\Sigma^+$
$\alpha / \sqrt{Js}$	-	$5,45(113) \cdot 10^{-8}$
$A_{\text{Zellmitte}} / \text{mm}^2$	$1,100(574) \cdot 10^{-2}$	$4,75(139) \cdot 10^{-3}$
$\Gamma / (2\pi \times \text{MHz})$	10	10
$I_{\text{sat},\alpha} / (\text{mW}/\text{mm}^2)$	-	$3,13(220) \cdot 10^4$
$P_{\text{sat},\alpha} / \text{mW}$	-	148,6(614)

erreicht, allerdings kommt es nicht zu einer Sättigung in der Amplitude des Signals wie in Abbildung 5.1.3 zu sehen ist, da beachtet werden muss, dass wie anhand von Abbildung 5.3.2 dargestellt ist, der Laserstrahl innerhalb der Zelle auf etwa den doppelten Strahlradius aufweitet. Diese Aufweitung führt zu einer Vervierfachung der Querschnittsfläche des Strahls und erklärt somit warum keine Sättigung erreicht wird, außerdem wird für die Berechnung von idealen Gaußstrahlen ausgegangen, diese unterscheiden sich von den realen Laserstrahlen im Experiment.

## 6.2 Vierniveausystem — 22(0)-Rydbergzustand

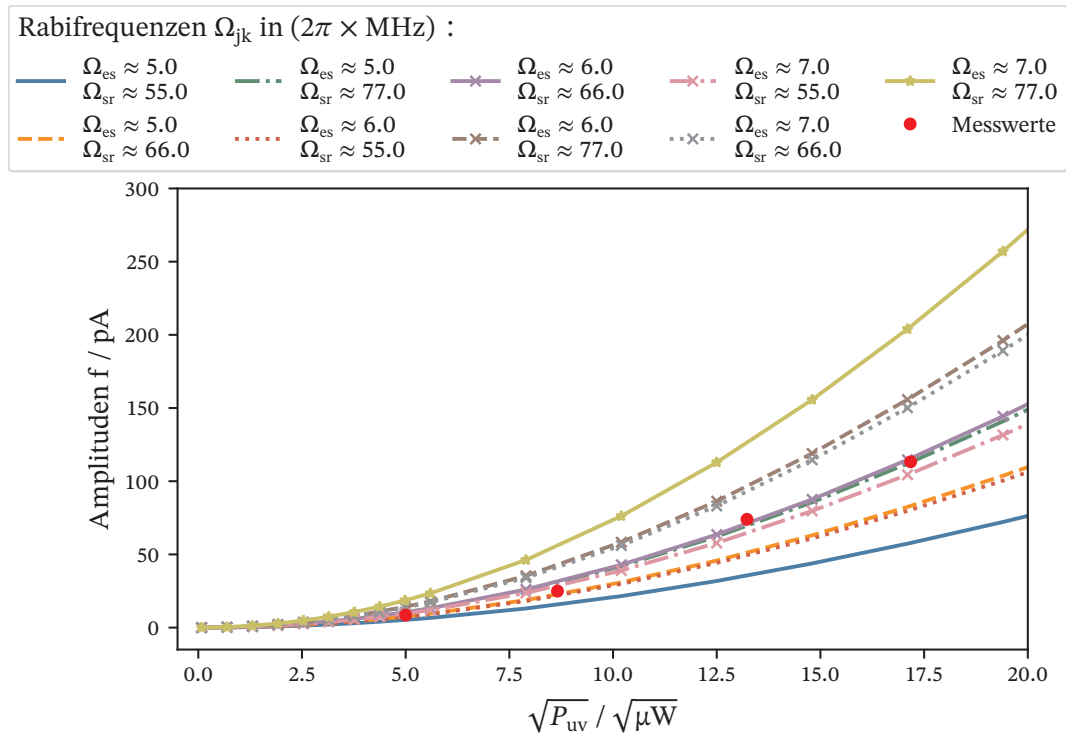
Auch für den Vergleich der experimentell bestimmten und aus der Simulation gewonnenen Daten im Vierniveausystem müssen letztere skaliert werden. Die Skalierung der geschwindigkeitsgemittelten Population und der Rabifrequenzen aus der Simulation erfolgt analog wie in Abschnitt 6.1 beschrieben über die in Gleichung 6.2 aufgeführten Zusammenhänge. In Abbildung 6.2.1 ist analog zur Erörterung im Dreiniveausystem auch für das Vierniveausystem eine Veranschaulichung der Proportionalitätsfaktoren dargestellt. Auch hier kann analog wie in Abschnitt 6.1 der Proportionalitätsfaktor  $\beta$  als eine Detektionseffizienz der angeregten und ionisierten Moleküle betrachtet werden und auch der Faktor  $1/\alpha$  beinhaltet hier die Sättigungsintensität sowie die Linienbreite. In Abbildung 6.2.2 sind die skalierten Daten aus der Simulation zusammen mit den aus den Messungen extrahierten Daten für die Amplitude aus dem Vierniveausystem des 22(0)-Rydberg-f-Zustands bei Variation der Leistung im Laserstrahl, welcher den ersten Übergang steuert, abgebildet. Wie zuvor in Abschnitt 5.2 beschrieben, ist die Messreihe im Vergleich zu allen anderen Messreihen unter anderen Bedingungen im experimentellen Aufbau aufgenommen worden und sollte somit nur begrenzt berücksichtigt werden. Für die experimentell extrahierten Daten finden sich mehrere mögliche



**Abb. 6.2.1:** Abbildung zur Veranschaulichung der Proportionalitätsfaktoren zwischen experimentell erfassten Daten und aus einer Simulation gewonnenen Daten. In a) ist innerhalb der Messzelle und zwischen den Zellelektroden das Anregungsschema eines Vierniveausystems für den f- und g-Rydbergzustand zu sehen. Die die Übergänge treibenden Rabifrequenzen  $\Omega_{jk}$  sind entsprechen über  $\alpha_{jk}$  der Wurzel der im Experiment eingestellten Leistung der Laserstrahlen. In b) ist der durch Stöße hervorgerufene Ionisationsprozess des angeregten Zustands abgebildet, und in c) ist die Detektion des Messstroms durch die Beschleunigung der Elektronen und Ionen entlang des elektrischen Potentials hin zu den Zellelektroden zu sehen. Die detektierte Ladung pro Zeit ist über  $\beta$  proportional zur Population im obersten Zustand.

Kurven aus der Simulation für unterschiedliche Kombinationen von Rabifrequenzen. Für die drei möglichen Kurven mit einmal  $\Omega_{es} \approx 2\pi \times 5,5$  MHz und  $\Omega_{sr} \approx 2\pi \times 77,0$  MHz,  $\Omega_{es} \approx 2\pi \times 6,0$  MHz und  $\Omega_{sr} \approx 2\pi \times 66,0$  MHz sowie  $\Omega_{es} \approx 2\pi \times 7,0$  MHz und  $\Omega_{sr} \approx 2\pi \times 55,0$  MHz ist erkennbar, dass sich die Rabifrequenzen in dem betrachteten Bereich gegenseitig ausgleichen. Somit wird für die Rabifrequenzen ein möglicher Bereich angegeben. Dieser Bereich und die für den Vergleich notwendigen Skalierungsfaktoren sind in Tabelle 6.2.1 aufgeführt.

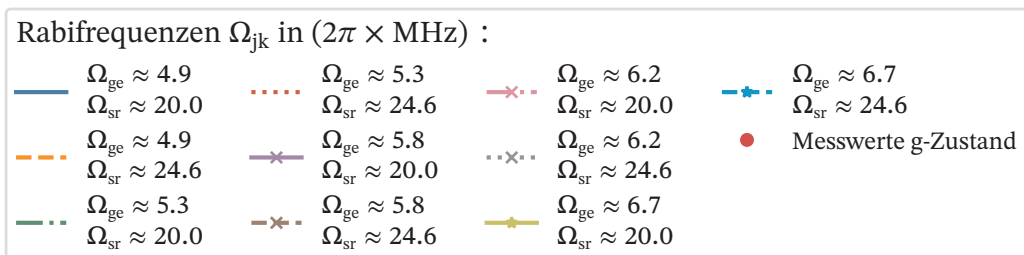
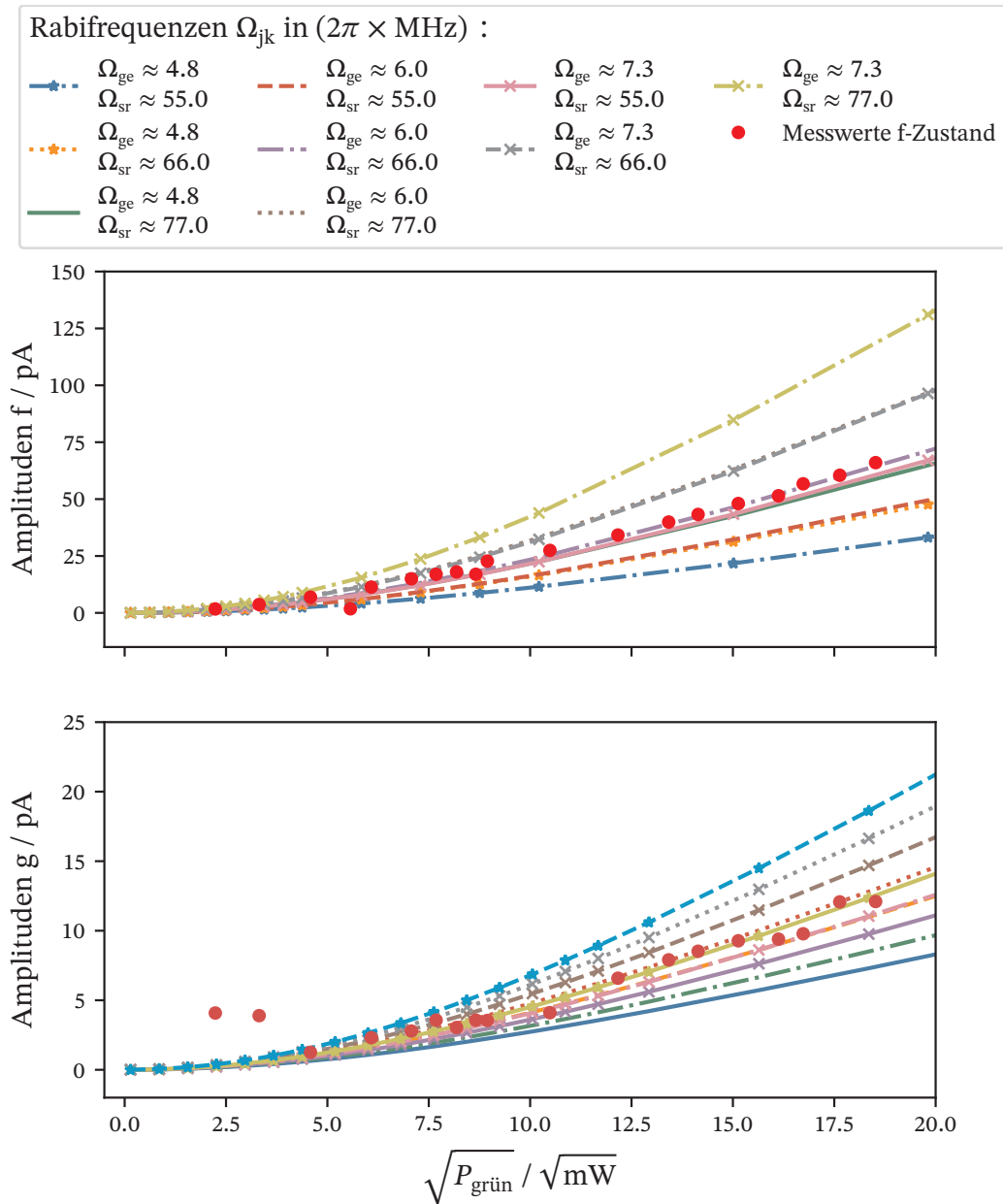
In Abbildung 6.2.3 sind die skalierten Daten aus der Simulation zusammen mit den aus den Messungen extrahierten Daten für die Amplitude aus dem Vierniveausystem des 22(0)-Rydberg-f- und -g-Zustands bei Variation der Leistung im Laserstrahl, welcher für den zweiten Übergang verantwortlich ist abgebildet. Auch für diese Leistungsserie finden sich mehrere kompatible Kurven aus den simulierten Daten, sowohl für den f- als auch für den g-Zustand. Für den f-Zustand sind drei der Kurven für unterschiedliche Kombinationen von Rabifrequenzen aus dem erfassten Bereich der Simulation am kompatibelsten. Auch hier kann festgestellt werden, dass die Rabifrequenzen sich untereinander ausgleichen, sodass erneut ein Bereich für beide Rabifrequenzen in Tabelle 6.2.1 angegeben werden kann. Für den g-Zustand sind aus Gründen der Übersichtlichkeit



**Abb. 6.2.2:** Abbildung der aus den Messwerten extrahierten Amplituden des 22(0)-Rydberg-f-Zustands, für eine Leistungsserie bezüglich des im ultravioletten Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahls, zusammen mit übereinstimmenden und skalierten Kurven der Amplitude, gewonnen aus der Simulation.

nicht alle der passenden Kurven aus dem erfassten Bereich der Simulation abgebildet. Der vollständig bestimmte Bereich kompatibler Rabifrequenzen ist in Tabelle 6.2.1 angegeben. Ebenso wie für den f-Zustand gleichen sich auch die Rabifrequenzen für den g-Zustand gegenseitig aus, sodass mehrere Kombinationen möglich sind.

Als Letztes werden die aus den Messwerten zur Leistungsserie im infraroten Laserstrahl extrahierten Daten zur Amplitude mit den aus der Simulationsrechnung erfassten Daten verglichen, nachdem diese, wie auch zuvor für die anderen Leistungsserien, umskaliert wurden. In Abbildung 6.2.4 sind die experimentell bestimmten Amplituden zusammen mit den aus Simulationen erfassten, umskalierten kompatiblen Daten für den 22(0)-Rydberg-f- und -g-Zustand abgebildet. Hier sind für den f- und g-Zustand, da diese sich nur im obersten Niveau voneinander unterscheiden, beide Rabifrequenzen  $\Omega_{gr}$  und  $\Omega_{es}$  im gleichen Bereich für die gleichen Kurven mit den experimentell erfassten Daten übereinstimmend. Auch hier findet eine Kompensation der Rabifrequenzen untereinander statt. Der erfasste Bereich, in dem die kompatiblen Rabifrequenzen liegen, sowie die Proportionalitätsfaktoren zur Umskalierung der Daten aus der Simulation sind in Tabelle 6.2.1 aufgeführt.



**Abb. 6.2.3:** Abbildung der aus den Messwerten extrahierten Amplituden des 22(0)-Rydberg-f- und -g-Zustands, für eine Leistungsserie bezüglich des im grünen Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahls, zusammen mit übereinstimmenden und skalierten Kurven der Amplitude, gewonnen aus der Simulation.

Auch hier sind nun die Zustände aus der Theorie, der Grundzustand  $|g\rangle = |X\rangle$ , der erste angeregte Zustand  $|e\rangle = |A\rangle$ , der zweite angeregte Zustand  $|s\rangle = |H\rangle$  und der Rydbergzustand  $|r\rangle = |22(0)\rangle$  mit den entsprechenden Zuständen des Moleküls gleichzusetzen. Analog zur Bestimmung der Linienbreite und der Lebensdauer sowie der Sättigungsintensität in Abschnitt 6.1 zum  $H^2\Sigma^+$ -Zustand, können diese auch für die  $22(0)$ -Rydbergzustände bestimmt werden. In Tabelle 6.2.2 sind die bestimmten Linien-

**Tab. 6.2.1:** Aufführung der für den  $22(0)$ -Zustand bestimmten Proportionalitätsfaktoren  $\alpha_{jk}$  und  $\beta_{jk}$ , sowie der Bereiche für die Rabifrequenzen  $\Omega_{jk}$  im Vierniveausystem.

Zustand	22f(0)	22g(0)
$\Omega_{XA}/(2\pi \times \text{MHz})$	4,8 - 7,3	4,8 - 7,3
$\alpha_{XA}/\sqrt{Js}$	$5,00(80) \cdot 10^{-9}$	-
$\beta_{XA}/A$	$8,33(133) \cdot 10^{23}$	-
$\Omega_{AH}/(2\pi \times \text{MHz})$	5-7	5-7
$\alpha_{AH}/\sqrt{Js}$	$4,62(105) \cdot 10^{-8}$	$4,62(72) \cdot 10^{-8}$
$\beta_{AH}/A$	$5,0(10) \cdot 10^{22}$	$5,00(78) \cdot 10^{20}$
$\Omega_{H22(0)}/(2\pi \times \text{MHz})$	55 - 77	20 - 26,9
$\alpha_{H22(0)}/\sqrt{Js}$	$2,26(47) \cdot 10^{-9}$	$5,75(119) \cdot 10^{-9}$
$\beta_{H22(0)}/A$	$5,0(10) \cdot 10^{22}$	$5,0(10) \cdot 10^{20}$

breiten der unterschiedlichen Zustände für die Rydberg-f- und -g-Zustände aufgeführt. Wird die über  $\alpha$  bestimmte radiative Linienbreite  $\Gamma_{\alpha,XA} \approx 2\pi \times 15,8 \text{ kHz}$  zum ersten Übergang betrachtet, so liegt hier, relativ zur durch die Durchflugsverbreiterung vorgegebene Linienbreite von  $2\pi \times 10 \text{ MHz}$  eine relativ schmale radiative Linienbreite für einen relativ stabilen Zustand vor. Aus den entsprechenden, aus Messungen extrahierten Daten (Abbildung 5.2.1) konnte kein Verhalten für die Breite bezüglich der betrachteten Verbreiterungsmechanismen ausgelesen werden. Trotzdem kann, da es sich hier um einen nach Auswahlregeln erlaubten Übergang handelt [6], festgehalten werden, dass die Linienbreite ihren Hauptbeitrag aus der natürlichen Linienbreite erhält. Wird die radiative Linienbreite  $\Gamma_{\alpha,AH} \approx 2\pi \times 5,89 \text{ Hz}$  für den zweiten Übergang von  $|A\rangle$  nach  $|H\rangle$  betrachtet, so muss hier berücksichtigt werden, dass es sich hierbei um einen, wie bereits in Abschnitt 4.1 beschrieben, aus atomarer Sicht „doppelt“ elektrisch dipolverbotenen Übergang handelt [14]. Somit liegt hier eine nur sehr geringe Übergangswahrscheinlichkeit vor, was die außerordentlich schmale Linienbreite im  $2\pi \times \text{Hz}$ -Bereich erklärt. Zuletzt können die Linienbreiten der Rydbergzustände betrachtet werden. Für den  $22(0)$ -Rydberg-f-Zustand wurde die radiative Linienbreite auf  $\Gamma_{\alpha,H22f(0)} \approx 2\pi \times 7,76 \text{ kHz}$  bestimmt. Wird dieser Werte mit der aus den experimentell für die Simulation bestimmten Linienbreite  $\Gamma_{sr} = 2\pi \times 440 \text{ MHz}$  und der zugehörigen Lebensdauer  $\tau_{sr} \approx 2,27 \text{ ns}$  verglichen, so wird der Einfluss der Prädissoziation des Moleküls deutlich. Die Prädissoziationsrate ist somit mit etwa  $\sim 2\pi \times 440 \text{ MHz}$  hauptverantwortlich für die vergrößerte

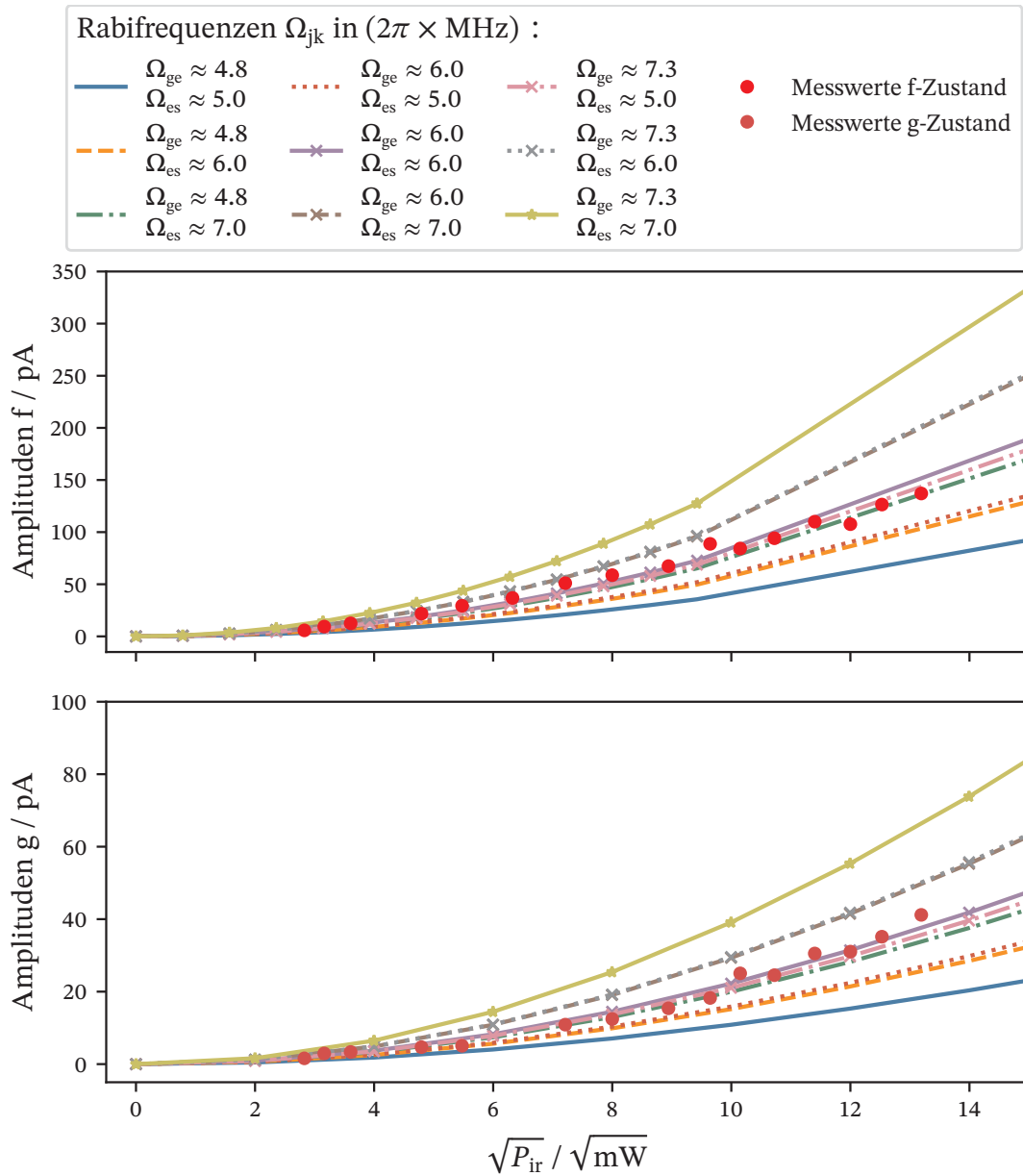
Linienbreite und die geringere Lebensdauer des Zustands. Die Größenordnung von  $2\pi \times \text{MHz}$  stimmt mit der angegebenen Prädissoziationsrate in [12] überein. Wird nun

**Tab. 6.2.2:** Aufführung der über  $\alpha$  bestimmten Linienbreiten  $\Gamma_\alpha$  der Übergänge zum 22(0)-Rydberg-f- und -g-Zustand.

Rydbergzustand	22f(0)		
Übergang	$A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2}$	$H^2\Sigma^+ \leftarrow A^2\Sigma^+$	$22f(0) \leftarrow H^2\Sigma^+$
$\alpha / \sqrt{Js}$	$5,00(80) \cdot 10^{-9}$	$4,62(105) \cdot 10^{-8}$	$2,26(47) \cdot 10^{-9}$
$A_{\text{Zellmitte}}/\text{mm}^2$	$1,100(574) \cdot 10^{-2}$	$4,75(139) \cdot 10^{-3}$	$5,800(929) \cdot 10^{-2}$
$\lambda / \text{nm}$	226	540	848
$\Gamma_\alpha / (2\pi \times \text{Hz})$	$1,58(133) \cdot 10^4$	5,89(439)	$7,76(445) \cdot 10^3$
Rydbergzustand	22g(0)		
Übergang	$A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2}$	$H^2\Sigma^+ \leftarrow A^2\Sigma^+$	$22g(0) \leftarrow H^2\Sigma^+$
$\alpha / \sqrt{Js}$	-	$4,62(72) \cdot 10^{-8}$	$5,75(119) \cdot 10^{-9}$
$A_{\text{Zellmitte}}/\text{mm}^2$	$1,100(574) \cdot 10^{-2}$	$4,75(139) \cdot 10^{-3}$	$5,800(929) \cdot 10^{-2}$
$\lambda / \text{nm}$	226	540	848
$\Gamma_\alpha / (2\pi \times \text{Hz})$	-	5,89(355)	$1,200(686) \cdot 10^3$

für den 22(0)-Rydberg-g-Zustand die radiative Linienbreite  $\Gamma_{\alpha, H22g(0)} \approx 2\pi \times 1,2 \text{ kHz}$  betrachtet, so wird sichtbar, dass dieser Zustand stabiler gegenüber dem f-Zustand ist. Auch hier dominiert die Prädissoziationsrate mit etwa  $\sim 2\pi \times 120 \text{ MHz}$  die experimentell bestimmte Linienbreite und verringert somit die Lebensdauer erheblich. Der g-Zustand hat eine geringere Prädissoziationsrate, eine längere Lebensdauer und somit eine schmalere Linienbreite gegenüber dem f-Zustand, auch dies stimmt mit den in [12] angegebenen Abschätzungen überein.

Aus den bestimmten Proportionalitätsfaktoren  $\alpha$  der Übergänge können, analog wie in Abschnitt 6.1, auch die Sättigungsintensitäten und die entsprechenden Leistungen bestimmt werden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.2.3 sowohl für den f- als auch den g-Zustand aufgeführt. Werden die Sättigungsintensitäten und die benötigten Sättigungsleistungen betrachtet, so muss auch hier berücksichtigt werden, dass die Laserstrahlen entsprechend Abbildung 5.3.2 in der Messzelle nicht kollimiert sind und die Querschnittsfläche der Laserstrahlen variiert. Für die Rechnung wurde immer der Strahlradius und somit auch die Querschnittsfläche der Laserstrahlen in der Mitte der Messzelle betrachtet. Der Strahlradius des Laserstrahls im Bereich von  $\lambda_{\text{uv}}$  ist in der x-Richtung über die Messzelle hinweg relativ stabil, in y-Richtung nimmt der Strahlradius bei der Propagation durch die Zelle etwa um einen Faktor von  $\sim 3/4$  ab. Die bestimmte Sättigungsintensität  $I_{\text{sat}, \alpha, \text{uv}} \approx 114 \text{ mW}/\text{mm}^2$  würde bei einer entsprechenden Fokussierung des Laserstrahls mit einer Leistung von  $P_{\text{sat}, \alpha, \text{uv}} \approx 1,25 \text{ mW}$  erreicht werden.



**Abb. 6.2.4:** Abbildung der aus den Messwerten extrahierten Amplituden des 22(0)-Rydberg-f- und -g-Zustands, für eine Leistungsserie bezüglich des im infraroten Wellenlängenbereich liegenden Laserstrahls, zusammen mit übereinstimmenden und skalierten Kurven der Amplitude, gewonnen aus der Simulation.

Dies passt gut zur experimentellen Beobachtung einer guten Signalstärke bei bereits  $\sim 500 \mu\text{W}$  [6]. Der zu  $\lambda_{\text{grün}}$  gehörende Laserstrahl erfährt, wie bereits erwähnt, eine Aufweitung auf den doppelten Strahlradius, was eine Vervierfachung der Querschnittsfläche bedeutet und somit eine Sättigung der Intensität verhindert, obwohl die im Experiment



**Tab. 6.2.3:** Aufführung der über  $\alpha$  bestimmten Sättigungsintensität  $I_{\text{sat},\alpha}$  und Leistung  $P_{\text{sat},\alpha}$  der Übergänge zum 22(0)-Rydberg-f- und -g-Zustand.

Rydbergzustand	22f(0)		
Übergang	$A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2}$	$H^2\Sigma^+ \leftarrow A^2\Sigma^+$	$22f(0) \leftarrow H^2\Sigma^+$
$\alpha/\sqrt{Js}$	$5,00(80) \cdot 10^{-9}$	$4,62(105) \cdot 10^{-8}$	$2,26(47) \cdot 10^{-9}$
$A_{\text{Zellmitte}}/\text{mm}^2$	$1,100(574) \cdot 10^{-2}$	$4,75(139) \cdot 10^{-3}$	$5,800(929) \cdot 10^{-2}$
$\Gamma/(2\pi \times \text{MHz})$	10	10	440
$I_{\text{sat},\alpha}/(\text{mW}/\text{mm}^2)$	114,00(9629)	$2,24(167) \cdot 10^4$	$8,51(488) \cdot 10^3$
$P_{\text{sat},\alpha}/\text{mW}$	1,25(40)	107,0(483)	494(204)
Rydbergzustand	22g(0)		
Übergang	$A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2}$	$H^2\Sigma^+ \leftarrow A^2\Sigma^+$	$22g(0) \leftarrow H^2\Sigma^+$
$\alpha/\sqrt{Js}$	-	$4,62(72) \cdot 10^{-8}$	$5,75(119) \cdot 10^{-9}$
$A_{\text{Zellmitte}}/\text{mm}^2$	$1,100(574) \cdot 10^{-2}$	$4,75(139) \cdot 10^{-3}$	$5,800(929) \cdot 10^{-2}$
$\Gamma/(2\pi \times \text{MHz})$	10	10	120
$I_{\text{sat},\alpha}/(\text{mW}/\text{mm}^2)$	-	$2,24(135) \cdot 10^4$	$4,10(235) \cdot 10^3$
$P_{\text{sat},\alpha}/\text{mW}$	-	107,0(330)	238,0(983)

bestimmte nötige Leistung für eine Sättigung der Intensität bereits überschritten wird. Der Laserstrahl im Bereich von  $\lambda_{\text{ir}}$  erfährt bei der Propagation durch die Zelle eine etwa dreifache Vergrößerung des Strahlradius und somit eine Vergrößerung der Strahlquerschnittsfläche um einen Faktor von neun. Aktuell können im Experiment für diesen Laserstrahl Leistungen im Bereich von  $\sim 300$  mW erzielt werden. Ohne eine Aufweitung des Strahlradius könnte somit der g-Zustand gesättigt werden. Für den f-Zustand wird jedoch für eine Sättigung der Intensität mehr Leistung oder ein optimierteres fokussieren des Laserstrahls benötigt.



## 7 Fazit

Im folgenden Abschnitt werden die wichtigsten Inhalte dieser Arbeit noch einmal zusammengefasst und es wird ein Ausblick darauf gegeben, was die neuen Erkenntnisse für das weitere Vorgehen im Experiment bedeuten.

### 7.1 Zusammenfassung

Zur Untersuchung des im Experiment vorliegenden Drei- und Vierniveausystems (Kapitel 1), dem  $H^2\Sigma^+$  und dem  $22(0)$ -Rydbergzustand, werden die Systeme simuliert und auf ihr Verhalten untersucht. Die aus der Simulation extrahierten Daten werden in einen direkten Vergleich mit experimentell erfassten Daten gesetzt. Dieser Vergleich liefert Proportionalitätsfaktoren,  $\alpha_{jk}$  und  $\beta_{jk}$ , für den Zusammenhang der in der Simulation vorkommenden Größen, der Rabi-Frequenz und Population, sowie der experimentellen Daten zur Leistung und des Stromsignals nach Gleichung 6.1. Mit Hilfe von  $\alpha_{jk}$  können entsprechend der Gleichung 6.3 und Gleichung 6.6 die Linienbreite sowie die Sättigungsintensität bestimmt werden. Für den  $H^2\Sigma^+$  wurde eine Linienbreite von  $\Gamma_{\alpha,AH} \approx 2\pi \times 4,23(298)$  Hz bestimmt; diese wird durch eine sehr geringe Übergangswahrscheinlichkeit aufgrund des atomar dipolverbotenen Übergangs verursacht. Für den  $22(0)$ -Rydberg-f-Zustand wurde die radiative Linienbreite auf  $\Gamma_{\alpha,H22f(0)} \approx 2\pi \times 7,76(445)$  kHz und für den  $22(0)$ -Rydberg-g-Zustand auf  $\Gamma_{\alpha,H22g(0)} \approx 2\pi \times 1,200(686)$  kHz bestimmt. Die radiativen Linienbreiten berücksichtigen die Prädissoziation des Moleküls nicht, sodass im Experiment eine deutlich geringere Lebensdauer bei Linienbreiten im zwei bis dreistelligen  $2\pi \times$  MHz-Bereich auftreten, beeinflusst sowohl durch die Prädissoziation als auch die Durchflugsverbreiterung. Die Sättigungsintensität für den ersten Übergang wurde auf  $I_{\text{sat},\alpha,\text{uv}} \approx 114,00(9629)$  mW/mm<sup>2</sup>, für den zweiten Übergang auf  $I_{\text{sat},\alpha,\text{grün}} \approx 3,13(220) \cdot 10^4$  mW/mm<sup>2</sup> bzw.  $I_{\text{sat},\alpha,\text{grün}} \approx 2,24(167) \cdot 10^4$  mW/mm<sup>2</sup>, für den Rydbergübergang zum f-Zustand auf  $I_{\text{sat},\alpha,\text{ir},f} \approx 8,51(488) \cdot 10^3$  mW/mm<sup>2</sup> und für den Rydbergübergang zum g-Zustand auf  $I_{\text{sat},\alpha,\text{ir},g} \approx 4,10(235) \cdot 10^3$  mW/mm<sup>2</sup> bestimmt. Dabei ist zu beachten, dass keine signifikanten Veränderungen in der Lorentzbreite bei einer Anregung in den  $22(0)$ -Rydbergzustand beobachtet werden konnten. Somit wird die Breite hauptsächlich durch die Prädissoziation des Moleküls begrenzt.

## 7.2 Ausblick

Die Simulation zur Beschreibung des Experiments könnte weiter ausgebaut werden, indem zusätzliche Verbreiterungsmechanismen sowie der Einfluss des elektrischen Feldes berücksichtigt werden. Bei ausreichender Rechenkapazität könnten auch weitere, kleinschrittigere Rabifrequenzen zur Variation der Laserleistungen in der Simulation eingestellt werden, um die Bereiche für die Rabifrequenzen der Übergänge präziser zu bestimmen.

Durch die Betrachtung des Emissionsspektrums aus der Zelle könnten weitere Zerfallskanäle der involvierten Zustände identifiziert werden und deren Beiträge über ein Spektrometer quantitativ erfasst werden.

Für das Projekt können die gewonnenen Daten genutzt werden, um davon ausgehend die optimalen Intensitätsbereiche der Laserstrahlen präzise zu bestimmen, im Hinblick auf die Sensitivität und Selektivität des NO-Sensors, was vor allem bei geringen NO-Konzentrationen relevant ist. Eine genauere Kenntnis der erforderlichen Laserleistung bietet die Möglichkeit bei einer Miniaturisierung des NO-Sensors zur medizinischen Anwendung die verwendeten Lasersysteme durch Nutzung von Oberflächenemittern (engl.: VESCEL) zu ersetzen. Diese können eine vergleichbare Leistung der Laserstrahlen, zu den bisher genutzten Lasersystemen erbringen. Für die Generierung des grünen Laserlichts würde keine Frequenzverdopplung benötigt werden, im Fall vom ultravioletten Laserlicht würde eine einfache statt doppelte Frequenzverdopplung ausreichen. Abgesehen von der Miniaturisierung des Sensors soll dieser automatisiert in Betrieb genommen werden können, sodass unter anderem eine selbstständige Frequenzstabilisierung der Lasersysteme stattfindet.

# Literatur

- [1] J. Schmidt u. a. „Proof of concept for an optogalvanic gas sensor for NO based on Rydberg excitations“. In: *Applied Physics Letters* 113.1 (2018) (siehe S. 1, 2, 5).
- [2] J. N. Bates. „Nitric oxide measurement by chemiluminescence detection“. In: *Neuroprotocols* 1.2 (1992), S. 141–149 (siehe S. 1).
- [3] „ATS/ERS recommendations for standardized procedures for the online and offline measurement of exhaled lower respiratory nitric oxide and nasal nitric oxide“. In: *American Journal of Respiratory and Critical Care Medicine* 171.8 (2005), S. 912–930 (siehe S. 1).
- [4] K. Alving, E. Weitzberg und J. Lundberg. „Increased amount of nitric oxide in exhaled air of asthmatics“. In: *European Respiratory Journal* 6.9 (1993), S. 1368–1370 (siehe S. 1).
- [5] B. Buszewski u. a. „Human exhaled air analytics: biomarkers of diseases“. In: *Biomedical chromatography* 21.6 (2007), S. 553–566 (siehe S. 1).
- [6] F. Munkes. „Electrical detection of Rydberg interactions in nitric oxide at room temperature“. Diss. Universität Stuttgart, 2023 (siehe S. 1–5, 22, 41, 56, 64, 66).
- [7] B. Allemann u. a. „Werkstoffe“. In: *Laborpraxis 1: Einführung Allgemeine Methoden* (1983), S. 47–62 (siehe S. 1).
- [8] C. J. Foot. *Atomic physics*. Bd. 7. OUP Oxford, 2004 (siehe S. 2, 8, 19, 58).
- [9] R. Stebbings und F. Dunning. *Rydberg states of atoms and molecules*. Cambridge University Press, 1983 (siehe S. 2).
- [10] T. F. Gallagher. *Rydberg atoms*. Springer, 1994 (siehe S. 2).
- [11] D. Barredo u. a. „Electrical readout for coherent phenomena involving Rydberg atoms in thermal vapor cells“. In: *Physical Review Letters* 110.12 (2013), S. 123002 (siehe S. 2).
- [12] F. Munkes u. a. „High-resolution cw laser spectroscopy of long-lived Rydberg states in NO“. In: *The Journal of Physical Chemistry Letters* (in preparation) (siehe S. 4, 22, 41, 46, 65).
- [13] F. Munkes u. a. „Collisional shift and broadening of Rydberg states in nitric oxide at room temperature“. In: *Physical Review A* 109.3 (2024), S. 032809 (siehe S. 4, 41, 47).

- [14] Y. Ogi u. a. „Laser-induced amplified spontaneous emission from the 3d and nf Rydberg states of NO“. In: *Chemical Physics* 255.2-3 (2000), S. 379–395 (siehe S. 4, 21, 64).
- [15] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc und G. Grynberg. *Atom-photon interactions: basic processes and applications*. John Wiley & Sons, 1992 (siehe S. 5, 6, 8, 25).
- [16] H. Kübler. „Kohärente Rydberg-Spektroskopie in einer Rubidium Mikrozele“. Diss. Universität Stuttgart, 2012 (siehe S. 5, 6, 8, 9).
- [17] M. Le Bellac. *Quantum physics*. Cambridge University Press, 2011 (siehe S. 6, 8–10).
- [18] D. A. Steck. „Rubidium 85 D line data“. In: (2001) (siehe S. 9, 21).
- [19] W. Demtröder. *Atome, Moleküle und Festkörper, volume 3 of Experimentalphysik*. Springer, Berlin, 2005 (siehe S. 15–18).
- [20] T. Ida, M. Ando und H. Toraya. „Extended pseudo-Voigt function for approximating the Voigt profile“. In: *Journal of Applied Crystallography* 33.6 (2000), S. 1311–1316 (siehe S. 16).
- [21] W. Demtröder. *Laserspektroskopie 1: Grundlagen. SpringerLink: Bücher*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Berlin und Heidelberg, 2011 (siehe S. 16–18).
- [22] A. Wachter und H. Hoerber. *Repetitorium Theoretische Physik*. Springer-Verlag, 2004 (siehe S. 17).
- [23] T. Gallagher. *Rydberg Atoms. Cambridge Monographs on Atomic, Molecular and Chemical Physics*. Cambridge University Press, 1994 (siehe S. 18).
- [24] Q. developers und contributors. zuletzt besucht am 29.07.2024. URL: <https://qutip.org/> (siehe S. 21).
- [25] Q. developers und contributors. zuletzt besucht am 29.07.2024. URL: <https://qutip.readthedocs.io/en/v5.0.1/guide/guide-steady.html> (siehe S. 21, 22).
- [26] K. Kaufmann, C. Nager und M. Jungen. „Rydberg states and quantum defects of the NO molecule“. In: *Chemical physics* 95.3 (1985), S. 385–390 (siehe S. 21).
- [27] P. S. Foundation. zuletzt besucht am 14.08.2024. URL: <https://docs.python.org/3/library/multiprocessing.html> (siehe S. 23).
- [28] T. Y. Abi-Salloum. „Electromagnetically induced transparency and Autler-Townes splitting: Two similar but distinct phenomena in two categories of three-level atomic systems“. In: *Phys. Rev. A* 81 (5 Mai 2010), S. 053836. DOI: 10.1103/PhysRevA.81.053836. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.81.053836> (siehe S. 23).
- [29] T. S. community. zuletzt besucht am 16.08.2024. URL: [https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.optimize.curve\\_fit.html](https://docs.scipy.org/doc/scipy/reference/generated/scipy.optimize.curve_fit.html) (siehe S. 25).

- 
- [30] J. A. Arnaud u. a. „Technique for Fast Measurement of Gaussian Laser Beam Parameters“. In: *Appl. Opt.* 10.12 (Dez. 1971), S. 2775–2776. DOI: 10.1364/AO.10.002775. URL: <https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-10-12-2775> (siehe S. 51).
- [31] D. -. I. V. Neumann. zuletzt besucht am 25.08.2024. URL: <https://laserinstitut-mittelsachsen.de/wp-content/uploads/2021/04/RealerLaserstrahl-Berechnungsgrundlagen.pdf> (siehe S. 51).
- [32] P. Kaspar u. a. „Doppler-free high-resolution continuous-wave optical UV spectroscopy on the  $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{3/2}$  transition in nitric oxide“. In: *Phys. Rev. A* 106 (6 Dez. 2022), S. 062816. DOI: 10.1103/PhysRevA.106.062816. URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.106.062816> (siehe S. 55).