Modulationsspektroskopie an einem einzelnen Ba^+-Ion

Diplomarbeit

vorgelegt
von
Joachim Schulz
aus
Hamburg

15. Januar 1998

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **3**

2 Modulationsspektroskopie **6**

2.1 Frequenzmodulationsspektroskopie 7

2.2 Modulationstransferspektroskopie 11

3 Barium **14**

3.1 Termschema von Ba^+ 14

3.2 Zeeman-Aufspaltung 15

4 Die Wechselwirkung von Licht und Atomen **18**

4.1 Laserkühlung schwach gebundener Bariumionen 18

4.2 Optische Bloch-Gleichungen 19

4.2.1 Der Dichteoperator 20

4.2.2 Der elektrische Dipoloperator 22

4.2.3 Das Zwei-Niveau-System 23

4.2.4 Das Drei-Niveau-System 28

4.2.5 Das Acht-Niveau-System 35

4.2.6 Modulation des Lichtfeldes 42

4.3 FM-Spektroskopie am Barium-Ion 47

4.4 MT-Spektroskopie am Barium-Ion 50

5 Experimenteller Aufbau **58**

5.1 Elektrooptischer Modulator 58

5.1.1 Schwingkreis zur Spannungsüberhöhung 60

5.2 Die Farbstofflaser 61
5.2.1 Farbstofflaser bei 493nm 61
5.2.2 Farbstofflaser bei 650nm 62
5.2.3 Pound-Drever-Regelung 62
5.2.4 kontrollierte Verstimmung 64
5.2.5 Intensitätsregelungen 65
5.3 Lichtwellenleiter 66
5.4 Die Hochfrequenzionenfalle 67
5.4.1 Vakuumapparatur 68
5.4.2 Speichern des Ions 68
5.5 Detektor und Signalaufnahme 69

6 MT-Spektrum eines einzelnen Barium-Ions 71
6.1 Übersicht über das Experiment 71
6.2 Durchführung der Messung 73
6.3 Nachweis eines MT-Signals 74
6.4 MT-Spektrum 76

7 Zusammenfassung 80

A Dipoloperator im Ein-Elektron-Atom 82
A.1 Wellenfunktionen 83
A.2 Dipolmatrixelemente 83

Kapitel 1

Einleitung

Seit R. W. Bunsen und G. R. Kirchhoff in den Jahren 1859/60 die Spektralanalyse entwickelten, ist diese Methode aus den Naturwissenschaften nicht mehr wegzudenken. So fand der Chemiker Bunsen mit dieser Methode die neuen Elemente Cäsium und Rubidium und dem Physiker Kirchhoff gelang es, damit die Fraunhoferschen Linien des Sonnenspektrums als Absorptionslinien verschiedener Elemente zu erklären.

Heute ist die Spektralanalyse oder Spektroskopie ein Standardverfahren in Physik, Chemie, Astronomie und Geowissenschaften, das es gestattet mit geringem Aufwand schnelle und präzise Messungen der Zusammensetzung von Flüssigkeiten, Gasen und Festkörpern zu erhalten. So ist es der modernen Astronomie möglich, genaue Angaben über Temperatur, Zusammensetzung und sogar — mit Hilfe des Dopplereffektes — Geschwindigkeit entfernter Objekte zu machen. Luftmeßstationen können auf spektroskopischem Wege Schadstoffkonzentrationen messen und deren Entwicklung über lange Zeit verfolgen. Mit Spektrometern ausgestattete Sateliten ermöglichen es, Aussagen über die globale Verteilung von Ozon und Treibhausgasen zu machen.

Die Anwendbarkeit spektroskopischer Methoden erstreckt sich über einen weiten Bereich von Wellenlängen. So finden für spektroskopische Untersuchungen Radiowellen mit Wellenlängen von mehreren Metern bis zu harten Röntgenstrahlen ihre Anwendung. Erstere eignen sich in der Astronomie zur Vermessung weit entfernter Galaxien, letztere werden zur Untersuchung von Kernanregungen verwendet.

In Jahrzehnten der Anwendung wurde die Empfindlichkeit spektroskopischer Verfahren ständig verbessert. Unter der Empfindlichkeit versteht man die geringste Konzentration eines Stoffes, die gerade noch mit dem Verfahren aufgespürt werden kann. Die unterste mögliche Grenze hierfür ist die geringste Einheit eines Stoffes, die überhaupt existieren kann — ein einzelnes Atom.

Es gibt verschiedene Möglichkeiten einzelne Atome zur spektroskopischen Untersuchung zu präparieren. So können einzelne Atome oder Moleküle in einer hochverdünnten Lösung untersucht werden, in der mit einer gewissen Wahr-

scheinlichkeit genau eines der zu untersuchenden Atome im bestrahlten Volumen enthalten ist. Die Untersuchung kann an einem dünnen Atomstrahl senkrecht zur Flugbahn erfolgen, oder ein einzelnes Atom wird an einem Ort präpariert und wärend der Beobachtung festgehalten.

Eine Möglichkeit zum Festhalten eines einzelnen geladenen Teilchens ist der Paul-Käfig. Dieser basiert auf einem von W. Paul [Pau 58] vorgeschlagenen Verfahren, mit dem es möglich ist geladene Teilchen mit Hilfe eines elektrischen Feldes festzuhalten. In einem Käfig gespeicherte Teilchen können gekühlt werden, indem sie mit einem zu niedrigen Energien verstimmten Lichtfeld bestrahlt werden [Hän 75, Neu 78, Win 78]. Mit dieser Methode, der optischen Kühlung, ist es möglich die Teilchen soweit abzukühlen, daß sie bewegungslos im Zentrum der Falle verharren. Die Speicherung eines einzelnen Barium-Ions in einem Paul-Käfig gelang erstmals 1980 [Neu 80].

Gegenüber der Untersuchung von Atomen in Lösung haben die beiden anderen Verfahren den Vorteil, daß die Teilchen im verdünnten Atomstrahl bzw. in dem Käfig keinen Stößen mit anderen Teilchen ausgesetzt sind. Außerdem tritt keine inhomogene Verbreiterung der untersuchten Spektrallinien durch Bewegung der Teilchen in Richtung der Propagation des Lichts auf. Diese Dopplerverbreiterung kann zwar in Lösung durch verschiedene Verfahren der dopplerfreien Spektroskopie unterdrückt werden, die Stoßverbreiterung ist jedoch nicht zu vermeiden.

Bei der Untersuchung eines Atoms im Atomstrahl sind keine beliebig langen Wechselwirkungszeiten erreichbar. Um das Atom dopplerfrei beobachten zu können ist die Einstrahlung der Lichtfelder senkrecht zum Atomstrahl notwendig. Die Wechselwirkungszeit wird so auf die Zeit begrenzt, die ein Atom benötigt um den Durchmesser des Lichtstrahls zurückzulegen. Bei einem im Käfig gespeicherten Teilchen kann die Wechselwirkungszeit dagegen nahezu beliebig eingestellt werden. Die Intensität des Lichtfeldes läßt sich hier steigern, indem der Fokus verkleinert wird. In einem Atomstrahl kann das Lichtfeld nur in einer Raumrichtung fokussiert werden. In Flugrichtung der Atome würde eine Fokussierung des Lichtbündels zur Verringerung der Wechselwirkungszeit führen.

Ziel dieser Arbeit soll es nun sein, die Möglichkeiten der Abbsorptionsspektroskopie am einzelnen, in einem Ionenkäfig gespeicherten Bariumion zu untersuchen. An einer Wolke weniger Bariumionen wurden die beiden in dieser Arbeit beschriebenen Verfahren bereits 1986 von J. Bialas durchgeführt [Bia 86]. Mit einem ähnlichen Verfahren wurde 1987 von D. J. Wineland die Absorption eines einzelnen Quecksilberions nachgewiesen [Win 87].

In Kapitel 2 sollen zunächst die Verfahren der Absorptionsspektroskopie vorgestellt werden. Kapitel 3 stellt die wichtigsten Eigenschaften des Versuchsobjekts zusammen. Im vierten Kapitel werden theoretische Modelle für die Wechselwirkung von Licht mit dem Ion behandelt. Zunächst wir hier das Verfahren der optischen Kühlung erklärt, dann werden die optischen Blochgleichungen eingeführt und schrittweise an das zu lösende Problem angepaßt. Das Ziel dieses

Kapitels ist es die Signalformen, die mit den Verfahren zu erwarten sind zu berechnen. Im fünften Kapitel werden die verwendeten Aparaturen dargestellt, mit denen die in Kapitel 6 beschriebenen Experimente durchgeführt wurden. Im sechsten Kapitel wird ein Experiment zur Modulationstransferspektroskopie erläutert und die Ergebnisse vorgestellt und diskutiert.

Kapitel 2

Modulationsspektroskopie

In der Spektroskopie wird grundsätzlich zwischen Absorptions- und Emissionsspektroskopie unterschieden. Ein typisches Beispiel für Absorptionsspektroskopie ist das Sonnenspektrum, in dem man dunkle Linien sieht, die auf Absorption von Licht in der Atmosphäre der Sonne und der Erde zurückzuführen sind. Hierbei ist die Sonne in guter Näherung ein Schwarzer Körper, der ein kontinuierliches Spektrum ausstrahlt, auf das die verschiedenen in den Atmosphären vorkommenden Atome ein charakteristisches Linien- und Bandenspektrum aufprägen. Ein Emissionsspektrum ist zu beobachten, wenn das Licht einer Gasentladung spektral zerlegt wird. Es ergibt sich ein Spektrum aus hellen Linien, die jeweils auf eine optische Resonanz der beteiligten Atome zurückzuführen sind. Außerdem läßt sich Dispersionsspektroskopie betreiben, indem man spektral aufgelöst die optische Dichte des zu untersuchenden Mediums mißt (z.B. mit einem Zweistrahlinterferometer).

Unter Absorption wird die Abschwächung eines Lichtfeldes durch des durchstrahlte Medium verstanden, Dispersion bezeichnet die Phasenverzögerung, die das Licht durch das Medium erfährt. Da Absorption immer auch mit Dispersion verbunden ist, ist eine strenge Unterscheidung zwischen Absorptions- und Dispersionsspektroskopie nicht immer notwendig. Die klassische Unterscheidung ist historisch, sowie apparativ bedingt. So werden mit einfachen Spektrometern in der Regel nur die Absorptionslinien atomarer Resonanzen aufgenommen (z.B. dunkle Linien im Sonnenspektrum). Mißt man dagegen die Dispersion von Gläsern im sichtbaren Frequenzbereich mit einem Interferometer, so ist man in der Regel so weit von dem Frequenzbereich entfernt, in dem das Glas absorbiert, daß die Absorption vernachlässigbar wird. Die Dispersion dagegen nimmt mit wachsendem Abstand von der Resonanzfrequenz nur langsam ab und ist gut meßbar.

In dieser Arbeit werden Verfahren beschrieben, mit denen Absorption und Dispersion gleichzeitig gemessen werden können. Da beide Verfahren auf Phasenmodulation eines der beteiligten Lichtfeldern beruhen, werden diese Verfahren unter dem Titel „Modulationsspektroskopie“ zusammengefaßt.

Ziel dieser Arbeit ist es, Bedingungen zu ermitteln, unter denen der Nachweis von Absorption oder Dispersion weniger Ba^+-Ionen möglich ist. Das gemessene Signal soll sich bei diesen Verfahren deutlich von dem Rauschen, das von stochastischen Prozessen herrührt abheben.

Da das Rauschen im Signal einer Photodiode einen Anteil hat, der proportional zur Wurzel aus der gemessenen Intensität ist (Schrotrauschen), und die Absorption und Dispersion, die von wenigen Ionen verursacht werden, nur geringe Veränderungen im Lichtfeld verursachen, ist es nicht zu erwarten, daß man diese Änderungen direkt messen kann. Der Untergrund (das eingestrahlte Lichtfeld) wird dafür sorgen, daß das Schrotrauschen viel größer ist als das Absorptionssignal. Wenn man jedoch erreicht, daß Absorption und/oder Dispersion des Ions ein Signal bei einer Frequenz erzeugen, bei der ohne das Ion kein Signal zu erwarten wäre und bei der auch das übrige Rauschen gering ist, so kann läßt sich das Absorptionssignal mit ausreichendem Kontrast zum Rauschen messen.

In diesem Kapitel sollen zwei Methoden beschrieben werden, mit denen man das Signal bei einer Frequenz mißt, für die der Untergrund gering ist. Beide Methoden sollen zunächst allgemein für beliebige absorbierende Medien dargestellt werden. Dabei werden für das erse Verfahren nur Effekte erster Ordnung, also die lineare Absorption und Dispersion benötigt. Das zweite Verfahren ist ein Effekt dritter Ordnung und kann daher nicht in linearer Näherung behandelt werden.

2.1 Frequenzmodulationsspektroskopie

Bei der Frequenzmodulationsspektroskopie [Bjo 80] wird aus einer reinen Phasenmodulation des Lichtfeldes durch die Wechselwirkung mit dem Ion eine Amplitudenmodulation erzeugt, die beim Nachweis mit einer Photodiode registriert wird (Abb. 2.1).

Ein Lichtfeld der Form

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t) = \frac{E_0}{2} \exp(i\omega t) + \text{c.c.} \tag{2.1}$$

wird mit der Radiofrequenz Ω phasenmoduliert. Das dadurch entstehende phasenmodulierte Feld

$$E(t) = \frac{E_0}{2} \exp(i(\omega t + M \sin \Omega t)) + \text{c.c.} \tag{2.2}$$

kann man auch als ein frequenzmoduliertes Lichtfeld beschreiben. Um die momentane Frequenz des Feldes zu erhalten bildet man die erste Ableitung nach der Zeit und erhält:

$$\frac{dE}{dt}(t) = i(\omega + M\Omega \cos(\Omega t))E(t) \tag{2.3}$$

Die Frequenz des Feldes beträgt also $\omega(t) = \omega + M\Omega \cos(\Omega t)$.

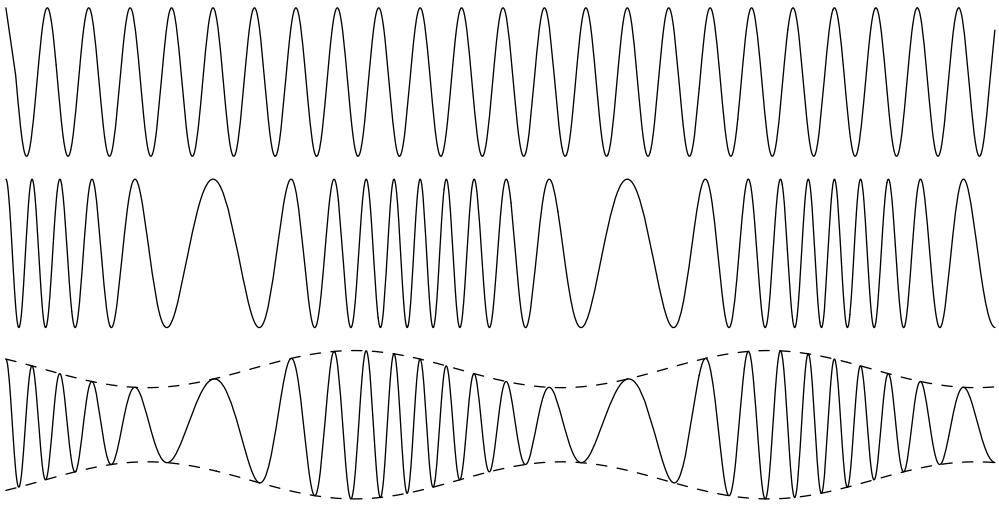

Abbildung 2.1: Frequenzmodulationsspektroskopie: Unmoduliertes Lichtfeld (oben), Rein phasenmoduliertes Feld (mitte) und phasen- und amplitudenmoduliertes Feld (unten). Nach dem Durchgang durch ein dispersives Medium erhält man auf einem rein phasenmodulierten Signal (mitte) eine zusätzliche Amplitudenmodulation, wie sie im unteren Teilbild dargestellt ist. Die Einhüllende der amplitudenmodulierten Welle ist zur Verdeutlichung gestrichelt eingetragen.

Das modulierte Feld läßt sich unter Verwendung von Besselfunktionen $J_n(M)$ darstellen als: [Abr 70, Formeln 9.1.42 und 43]

$$E(t) = \frac{E_0}{2} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(M) \exp(i(\omega + n\Omega)t) + \text{c.c.} \tag{2.4}$$

Das phasenmodulierte Lichtfeld besteht also aus einem nicht modulierten Lichtfeld in der Grundfrequenz ω, dem sogenannten Träger, und aus Paaren von Seitenbändern, die jeweils um ein Vielfaches der Modulationsfrequenz Ω zu höheren und tieferen Frequenzen verstimmt sind.

Abbildung 2.2 zeigt das Spektrum einer phasenmodulierten Lichtwelle. Man erkennt neben dem Träger bei $\delta\omega = 0$ Seitenbänder im Abstand der Modulationsfrequenz Ω. Je zwei benachbarte Bänder geben ein Schwebungssignal bei der Modulationsfrequenz. Da jedoch die Phasen dieser Schwebungen für Seitenbänder mit negativem n um 180^o zu denen im positiven Bereich verschoben sind, interferieren die Schwebungen destruktiv und es ist kein Signal bei der Modulationsfrequenz vorhanden.

Nimmt man mit einem schnellen Photodetektor die Intensität $I = \epsilon_0 c E^2$ des Lichtfeldes auf, so erhält man:

$$I(t) = \frac{1}{4}\epsilon_0 c E_0^2 \sum_{n=-\infty}^{\infty} \sum_{m=-\infty}^{\infty} (J_n J_m \exp[i(n-m)\Omega t]) + \text{c.c.} \tag{2.5}$$

wobei die Terme, die mit der doppelten Lichtfrequenz oszillieren bereits über eine Wellenlänge gemittelt wurden. Das ist gerechtfertigt, weil Schwingungen

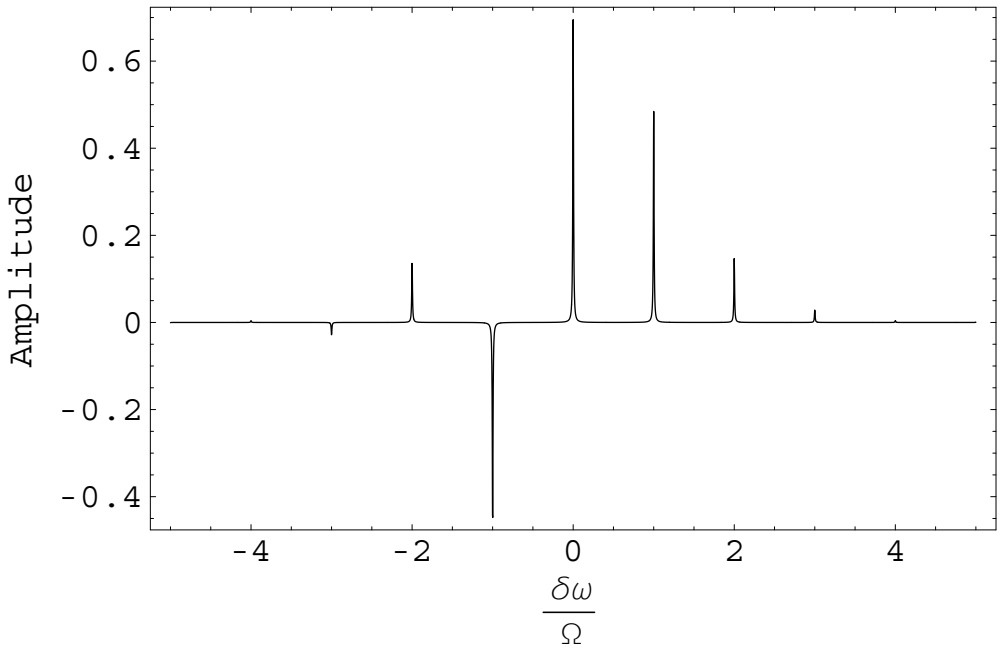

Abbildung 2.2: Amplitudenspektrum eines phasenmodulierten Signals. Das Vorzeichen der Seitenbänder deutet die Phasenlage der Schwebung an: Die Schwebung von zwei positiven Bändern ist der Schwebung zweier Bänder mit unterschiedlichem Vorzeichen gegenüber um 180^o verschoben. ($M = 1.15$)

im optischen Frequenzbereich mit elektronischen Mitteln nicht zeitlich verfolgt werden können. Wie bei einem rein phasenmodulierten Signal zu erwarten ist, ist diese Intensität konstant.

Insbesondere ist das Signal bei der Modulationsfrequenz Ω

$$I_\Omega(t) = \frac{1}{4}\epsilon_0 c E_0^2 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n J_{n+1} \exp[i\Omega t] + \text{c.c.} \tag{2.6}$$

aufgrund der Symmterie der Besselfunktionen gleich Null.

Durchdringt das Licht nun ein Medium, das für kleine, frequenzabhängige Änderungen in Amplitude und Phase des Trägers und der Seitenbänder sorgt, so ist ein Signal bei der Modulationsfrequenz erkennbar. Für die Amplitude $E(\omega)$ nach Durchgang durch das Medium gilt bei linearer Absorption $\delta(\omega)$ und Dispersion $\phi(\omega)$:

$$E(\omega) = E_0(\omega)e^{-\delta(\omega)-i\phi(\omega)} \approx (1 - \delta(\omega) - i\phi(\omega))E_0(\omega) \tag{2.7}$$

In Gleichung (2.4) wird also für jeden Summanden ein zusätzlicher Faktor der Form $(1-\delta_n-i\phi_n)$ eingebracht, wobei $\delta_n = \delta(\omega+n\Omega)$ die lineare Absorption und $\phi_n = \phi(\omega + n\Omega)$ die lineare Phasenverschiebung (Dispersion) bei der Frequenz $\omega + n\Omega$ sind. In linearer Näherung ergibt sich nun ein Inphase-Signal von

$$I_{\Omega I}(t) = -\frac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n J_{n+1}(\phi_n - \phi_{n+1}) \sin \Omega t \tag{2.8}$$

und ein Quadratur-Signal von

$$I_{\Omega Q}(t) = -\frac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n J_{n+1}(\delta_n + \delta_{n+1}) \cos \Omega t \tag{2.9}$$

Wählt man nun den Modulationsindex M so klein, daß alle Besselfunktionen $J_n(M)$ mit $n > 2$ vernachlässigbar klein werden, dann kann man diese beiden Gleichungen vereinfachen zu

$$\begin{aligned} I_{\Omega I}(t) = -\tfrac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2 \quad & [J_0(M)J_1(M)(2\phi_0 - \phi_{-1} - \phi_1) \\ & + J_1(M)J_2(M)(\phi_1 + \phi_{-1} - \phi_2 - \phi_{-2})] \sin \Omega t \end{aligned} \tag{2.10}$$

und

$$\begin{aligned} I_{\Omega Q}(t) = -\tfrac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2 \quad & [J_0(M)J_1(M)(\delta_1 - \delta_{-1}) \\ & + J_1(M)J_2(M)(\delta_1 - \delta_{-1} + \delta_2 - \delta_{-2})] \cos \Omega t \end{aligned} \tag{2.11}$$

Man sieht, daß das Inphase-Signal nur durch die Dispersion und das Quadratursignal nur durch die Absorption bestimmt ist. Ferner verursacht eine Absorption des Trägers kein Signal, da sich die Schwächung der Trägerfrequenz auf die beiden sich auslöschenden Schwebungssignale gleichermaßen auswirkt.

Beispiel: atomare Resonanz

Ein Zwei-Niveau-System verursacht eine Absorption in der Form einer Lorentzlinie und die dazugehörende Dispersion:

$$\delta = \delta_{\mathrm{Max}} \frac{1}{\left(\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Gamma}\right)^2 + 1} \qquad \phi = \delta_{\mathrm{Max}} \frac{\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Gamma}}{\left(\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Gamma}\right)^2 + 1} \tag{2.12}$$

Abbildung 2.3 zeigt eine solche Absorptions- und Dispersionskurve und drei nach den Gleichungen (2.10) und (2.11) berechnete Modulationsspektren.

Für kleine Modulationsfrequenzen ($\Omega < \Gamma$ Abb.2.3 oben rechts) erhält man ein Quadratursignal, das proportional zur Ableitung der Absorption ist.[1] Das Inphase-Signal ist proportional zur zweiten Ableitung der Dispersion.

Für Modulationsfrequenzen, die größer sind, als die Linienbreite (Abb.2.3 unten rechts) kann man ein Quadratursignal proportional zur Absorption und ein Inphase-Signal proportional zur Dispersion erkennen, wenn eines der Seitenbänder über die Resonanz ($\delta\omega = \pm\Omega$) verstimmt wird. Die Dispersion der Seitenbänder kann jedoch nur schwer von der Dispersion des Trägers getrennt werden, da die Dispersionskurve mit großen Verstimmungen nur langsam gegen Null geht und die Dispersion des Trägers ebenfalls ein Signal liefert.

[1] Genauer: Das Quadratursignal ist proportional zur Differenz der Absorbtionen an den Stellen der Seitenbänder. Normiert auf den Abstand der Seitenbänder strebt dieser Differenzenquotient jedoch für kleine Seitenbandabstände gegen die Ableitung.

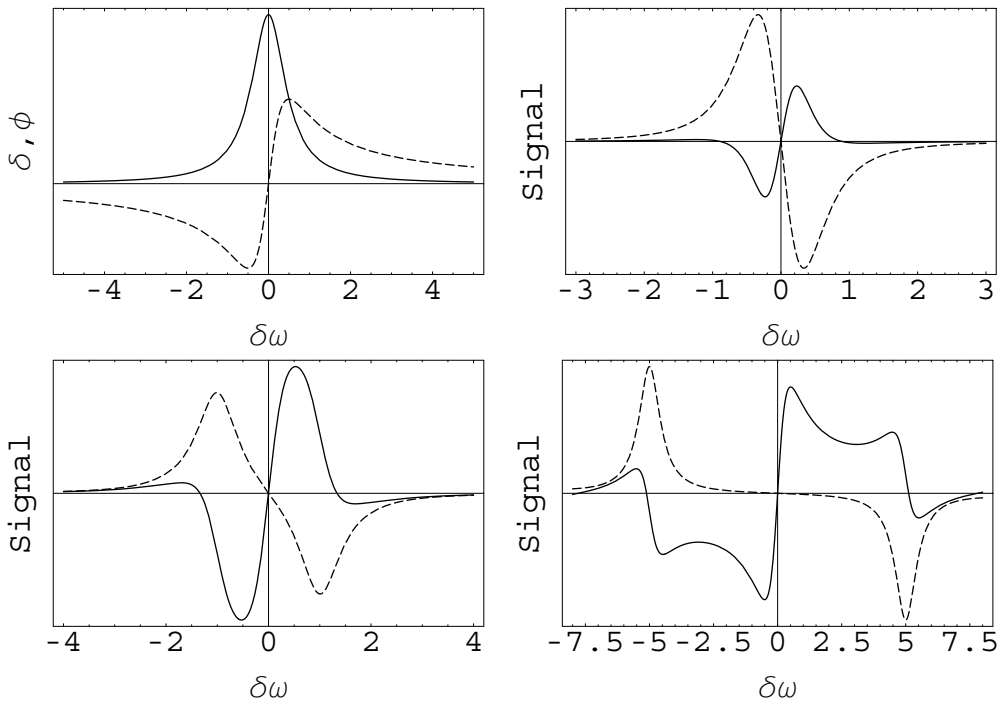

Abbildung 2.3: Oben links: Absorption (durchgezogen) und Dispersion (gestrichelt) eines Zwei-Niveau-Systems. Die anderen Teilbilder stellen das Inphase- (durchgezogen) und das Quadratursignal (gestrichelt) der Frequenzmodulationsspektroskopie dar. Die Verstimmung ist in Einheiten der Linienbreite Γ angegeben. Oben rechts: $\Omega = 0.2\Gamma$; unten links: $\Omega = \Gamma$; unten rechts: $\Omega = 5\Gamma$. ($M = 0.3$, $\delta_{Max} = 1$)

Die Steilheit des Dispersionssignals an der Stelle $\delta\omega = 0$ wird im Pound-Drewer-Verfahren [Pou 46, Dre 83] ausgenutzt um einen Laser sehr genau auf die Resonanz eines optischen Resonators zu stabilisieren. Dabei wird die Lorentzförmige Absorption nicht durch eine atomare Resonanz erzeugt. Statt dessen liefert das Reflexionsminimum an einem optischen Resonator bei dessen Resonanzfrequenz die lorentzförmige Abschwächung und eine dazugehörige Dispersion. Die beiden in dieser Arbeit beschriebenen Farbstofflaser werden mit dem Pound-Drever-Verfahren stabilisiert.

In der Praxis ist es schwer, ein rein phasenmoduliertes Lichtfeld zu erzeugen. Das phasenmodulierte Lichtfeld wird in der Regel eine restliche Amplitudenmodulation haben, die bei dem Signal als Untergrund auftritt. Deshalb soll nun eine Methode vorgestellt werden, bei der die Amplitudenmodulation auf einem Lichtfeld nachgewiesen wird, das zuvor nicht moduliert wurde.

2.2 Modulationstransferspektroskopie

Eine weitere Möglichkeit der untergrundfreien Absorptionsspektroskopie ist die Modulationstransferspektroskopie. Hierbei wird die Phasen- oder Amplitudenmodulation eines Lichtfeldes auf ein anderes, vorher nicht moduliertes Lichtfeld

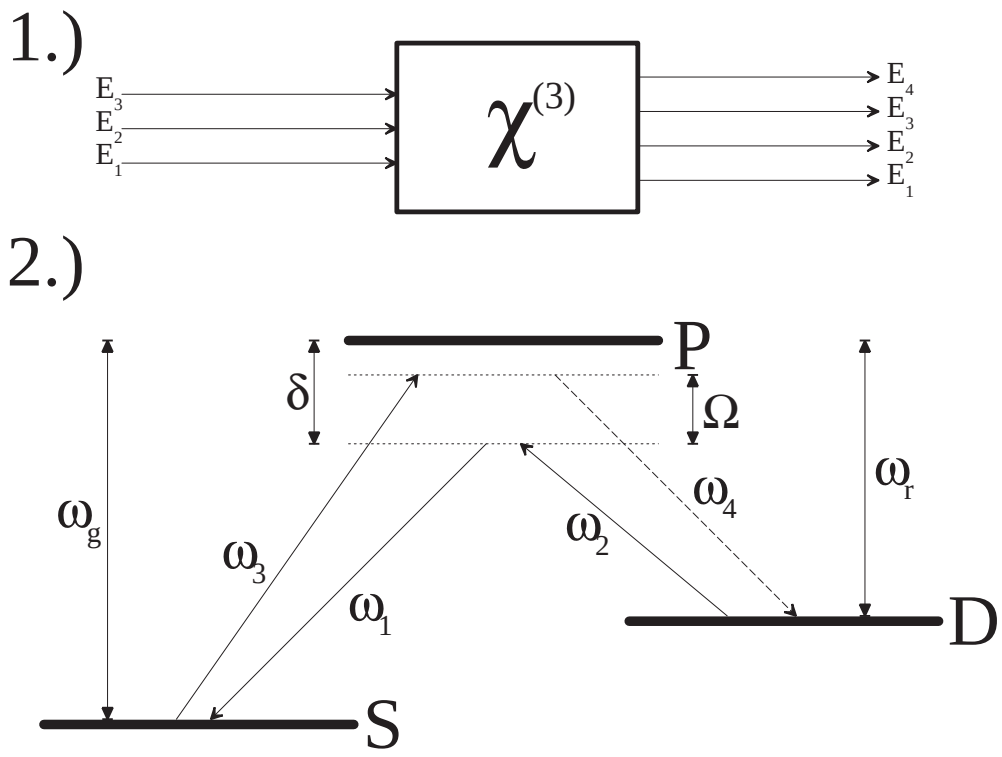

Abbildung 2.4: 1.) In einem System mit nicht verschwindender Suszeptibilität dritter Ordnung $\chi^{(3)}$ kann durch Mischung dreier Felder E_1 bis E_3 ein viertes Feld E_4 erzeugt werden. 2.) Für den Spezialfall eines Λ-förmigen Drei-Niveau-Systems läßt sich der Modulationstransfer als inelastische Streuung zweier Photonen deuten.

übertragen. Die Übertragung der Modulation ist ein Maß für die Wechselwirkung der beiden Felder mit dem Ion.

Im Gegensatz zur Frequenzmodulationsspektroskopie kann die Modulationstransferspektroskopie nicht in linearer Näherung beschrieben werden. Modulationstransfer ist ein Spezialfall der Vier-Wellen-Mischung, bei der unter der Einwirkung dreier elektromagnetischer Felder ein viertes Feld entsteht. Dieser Effekt läßt sich mit der nichtlinearen Suszeptibilität dritter Ordnung beschreiben. Abbildung 2.4 zeigt den in dieser Arbeit auftretenden Fall. Ein atomares System, das durch ein Λ-förmiges Drei-Niveau-System beschrieben werden kann, wird mit zwei Lichtfeldern E_1 und E_2 mit den Frequenzen ω_1 und ω_2 bestrahlt. Ist das Lichtfeld E_1 moduliert, so gibt es zu dieser Frequenz ein Seitenband mit der Frequenz $\omega_3 = \omega_1 + \Omega$. Durch die Vier-Wellen-Mischung wird nun ein viertes Feld mit der Frequenz ω_4 erzeugt. Aufgrund der Energieerhaltung muß gelten:

$$\omega_4 = -\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_2 + \Omega \tag{2.13}$$

Die Überlagerung der Felder mit den Frequenzen ω_2 und ω_4 führt nun zur Amplitudenmodulation des ursprünglichen Lichtfeldes E_2 mit der Frequenz Ω.

Aus der Abbildung kann man die Deutung des Vorgangs als eine korrelierte Streuung zweier Photonen ableiten: Aus dem Feld mit der Frequenz ω_3 wird

ein Photon unter Verlust der Energie $\hbar\Omega$ in das Feld mit der Frequenz ω_1 hineingestreut. Gleichzeitig nimmt ein Photon aus dem Feld E_2 die Energie auf und wird als ein Photon mit der Frequenz ω_4 emittiert. Die Photonen sind hier nicht als lokalisierte Teilchen, sondern als Energiequanten in den monochromatischen Lichtfeldern zu verstehen. Über die reine Energieerhaltung bei einen Stoßprozess hinausgehend bleibt hier auch die relative Phase der Schwebungsfrequenz Ω erhalten.

Zusätzlich zu diesem Prozeß dritter Ordnung ist zu erwarten, daß ein moduliertes Feld mit einer Frequenz nahe der Resonanzfrequenz ω_g eine Modulation der Besetzungsdichte des angeregten Zustands P bewirkt. Ein Probelichtfeld, das mit dem Übergang bei ω_r nahezu in Resonanz ist, findet nun eine mit der Frequenz Ω oszillierende Suszeptibilität vor und bekommt eine ampitudenmodulation der gleichen Frequenz aufmoduliert. Dieser aus zwei unabhängigen Prozessen erster Ordnung bestehene Prozeß ist nur zu erwarten, wenn die Frequenz Ω nicht wesentlich größer als die Zerfallsrate Γ_P des P-Zustands ist. Für $\Omega \gg \Gamma_P$ kann die Besetzungsdichte des P-Niveaus den Änderungen des Feldes bei der Frequenz ω_g nicht folgen.

Während der Prozeß dritter Ordnung (Abb. 2.4) maximal wird, wenn die Verstimmung δ für beide Felder E_1 und E_2 gleich ist, hat die Modulation aufgrund von Besetzungsmodulation des angeregten Zustands ihr Maximum für $\omega_2 = \omega_r$.

Beim Modulationstransfer durch Zwei-Photon-Effekte wird der Zustand P nicht angeregt. Dennoch ist die Existenz dieses Niveaus für den Vorgang unerläßlich, das erzeugte Signal wird um so stärker, je kleiner die Verstimmung δ wird. Das liegt daran, daß die einwirkenden Lichtfelder mit ihren Frequenzen Dipolschwingungen des Atoms anregen. Solche Dipolschwingungen besitzen Resonanzen bei den Übergangsfrequenzen ω_g und ω_r. Je näher die Lichtfrequenzen diesen Resonanzen kommen, desto stärker wird die Wechselwirkung mit dem atomaren System sein.

Kapitel 3

Barium

Barium ist ein Element aus der Gruppe der Erdalkalimetalle mit der Ordnungszahl 56. Der Name stammt vom griechischen *barys* und bedeutet schwer. Barium ist ein weiches, silbrig weißes, an der Luft schnell oxidierendes Metall. Die stabilen Isotope haben die Massenzahlen 138 (71,7%), 137 (11,2%), 136 (7,9%), 135 (6,6%), 134 (2,4%), 132 (0,1%) und 130 (0,1%). In Klammern ist jeweils das Vorkommen im natürlichen Isotopengemisch angegeben. Alle Isotope mit gerader Massenzahl haben einen Kernspin von 0, die beiden Isotope mit ungerader Massenzahl haben einen Kernspin von $\frac{3}{2}\hbar$. [Lid 93]

In dieser Arbeit werden nur die Isotope mit gerader Massenzahl untersucht. Diese machen 82% im natürlichen Isotopengemisch aus. Aufgrund der Hyperfeinaufspaltung der Isotope ungerader Massenzahlen, gelten für diese andere Termschemata. Sie können nicht mit den dargestellten Methoden präpariert und untersucht werden.

3.1 Termschema von Ba^+

Das Ba^+-Ion besitzt einen Atomrumpf in Xenonkonfiguration, sowie ein Valenzelektron in der 6S-Schale. Alle in dieser Arbeit relevanten Zustände entstehen durch Anregung dieses Valenzelektrons.

Abbildung 3.1 zeigt einen Ausschnitt aus dem Termschema des Bariumions. Die dipolerlaubten Übergänge zwischen den gezeigten Niveaus sind durch Doppelpfeile kenntlich gemacht. Vom Grundzustand aus sind Dipolübergänge in das $6^2P_{1/2}$- und in das $6^2P_{3/2}$-Niveau möglich. Aus dem $P_{1/2}$-Niveau zerfällt das Ba^+-Ion im Verhältnis von ca. 3:1 in das $S_{1/2}$- oder in das $D_{3/2}$-Niveau. Aus dem $P_{3/2}$-Niveau sind Dipolzerfälle sowohl in das S-Niveau, als auch in beide P-Niveaus möglich. Die Zerfallsraten der dipolerlaubten Zerfälle und die genauen Übergangsfrequenzen sind der Tabelle 3.1 zu entnehmen. Die $D \rightarrow S$-Übergänge sind dipolverboten und haben Halbwertzeiten von mehr als 30 Sekunden [Yu 97].

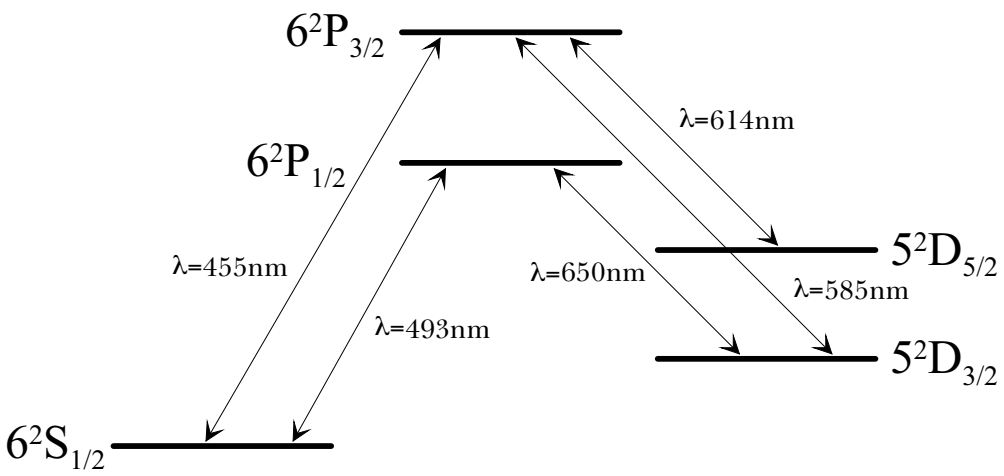

Abbildung 3.1: Ausschnitt aus dem Termschema des Ba^+–Ions mit den dipolerlaubten Übergängen.

Übergang	A in $\frac{10^6}{s}$	Zerfallsrate in MHz	λ
$6^2P_{1/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$:	95 ± 7	15 ± 1.1	493.4nm
$6^2P_{1/2} \rightarrow 5^2D_{3/2}$:	33 ± 4	5.3 ± 0.6	649.7nm
$6^2P_{3/2} \rightarrow 6^2S_{1/2}$:	118 ± 8	18 ± 1.3	455.4nm
$6^2P_{3/2} \rightarrow 5^2D_{3/2}$:	4.8 ± 0.6	0.8 ± 0.1	585.4nm
$6^2P_{3/2} \rightarrow 5^2D_{5/2}$:	37 ± 4	5.9 ± 0.6	614.2nm

Tabelle 3.1: Einstein A-Koeffizienten [Gal 67] und Wellenlängen der Übergänge

In dieser Arbeit wird das Barium-Ion durch das Λ-förmige Drei-Niveau-System, bestehend aus $^2S_{1/2}$, $^2P_{1/2}$ und $^2D_{3/2}$ beschrieben. Für diese Zustände befinden sich die Wellenlängen aller dipolerlaubten Übergänge im sichtbaren Spektralbereich, so daß die durch Spontanemission verursachte Fluoreszenz mit dem Auge beobachtbar ist. Ohne äußeres Magnetfeld sind die $j = 1/2$ Niveaus zweifach und das $^2D_{3/2}$-Niveau vierfach entartet (Abb. 3.2). In diesem Fall gibt die Polarisation des elektrischen Feldes die Quantisierungsachse vor und es sind nur stimulierte Übergänge mit $\Delta m_j = 0$ (π-Übergänge) möglich. Die $m_j = \pm 3/2$ Zustände des $^2D_{3/2}$-Niveaus werden nur durch spontane Prozesse bevölkert, können aber nicht wieder in das P-Niveau angeregt werden. Es findet also optisches Pumpen in diese beiden „dunklen“ Zustände statt, das ein stetiges Beobachten des Ions unmöglich macht.

3.2 Zeeman-Aufspaltung

Um das optische Pumpen zu verhindern muß ein äußeres Magnetfeld angelegt werden. Dadurch wird die Entartung aufgehoben und die Quantisierungsachse

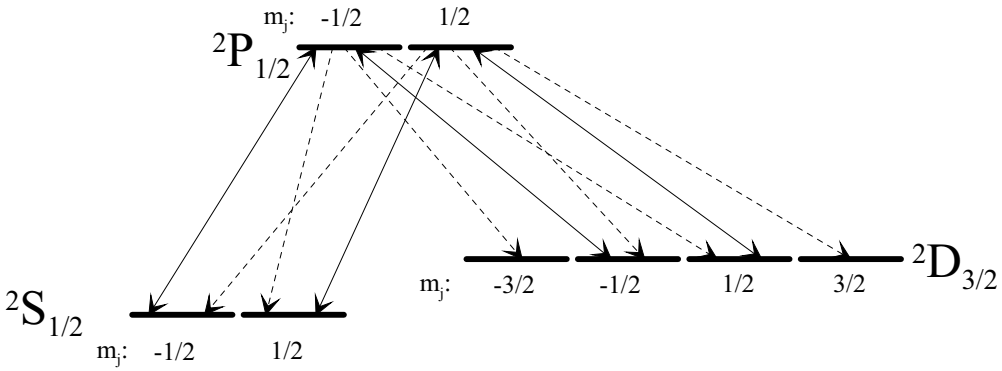

Abbildung 3.2: Termschema des Drei-Niveau-Systems unter Berücksichtigung der Entartung. Stimuliert sind nur π-Übergänge möglich (durchgezogene Pfeile). Spontanzerfälle (gestrichelt) sorgen für optisches Pumpen in die $m_j = \pm 3/2$-Zustände.

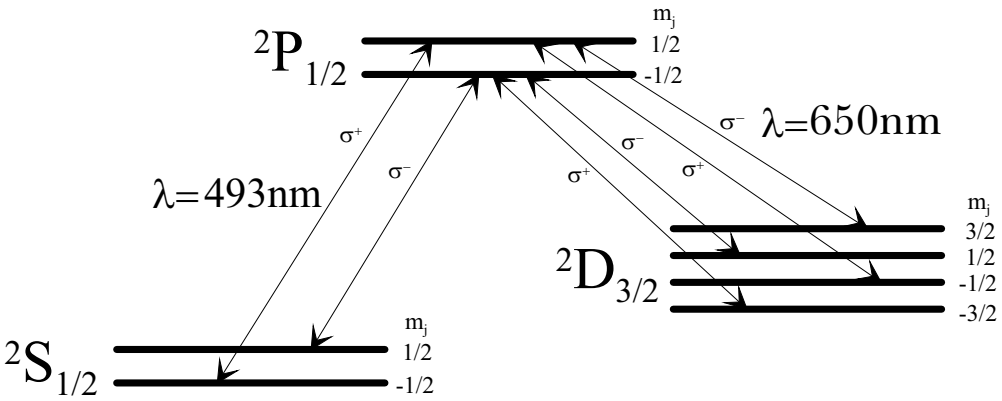

Abbildung 3.3: Relevantes Termschema des Ba^+–Ions mit Aufhebung der Entartung durch ein externes Magnetfeld (Zeeman-Effekt).

in Richtung des Magnetfeldes festgelegt. Strahlt man nun die elektrischen Felder mit ihren Polarisationen senkrecht zum Magnetfeld ein, so finden nur noch $\Delta m_j = \pm 1$-Übergänge statt und das System läßt sich in zwei Vier-Niveau-Systeme aufteilen, die nur noch über Spontanzerfälle miteinander gekoppelt sind (Abb. 3.3).

Die Zeeman-Aufspaltung berechnet sich nach [Hak 93]

$$\Delta E = g_j \mu_B B \tag{3.1}$$

wobei B der Betrag der magnetischen Induktion und $\mu_B = e\hbar/2m_e$ das Bohrsche Magneton ist. Die Landéfaktoren g_j berechnet sich nach

$$g_j = 1 + \frac{j(j+1) + s(s+1) - l(l+1)}{2j(j+1)} \tag{3.2}$$

Im einzelnen ergeben sie sich zu:

Zustand:	$6^2S_{1/2}$	$6^2P_{1/2}$	$6^2P_{3/2}$	$5^2D_{3/2}$	$5^2D_{5/2}$
Landéfaktor:	2	$\frac{2}{3}$	$\frac{4}{3}$	$\frac{4}{5}$	$\frac{6}{5}$

Kapitel 4

Die Wechselwirkung von Licht und Atomen

In diesem Kapitel wird ein Modell für die Wechselwirkung des Ions mit den eingestrahlten Feldern entwickelt, mit dem dann die Signale für die Verfahren der Modulationsspektroskopie berechnet werden. Zunächst wird jedoch ein mechanischer Effekt des Lichtfeldes auf das Ion erklärt, der zur Kühlung in der Falle eingesetzt wird.

4.1 Laserkühlung schwach gebundener Bariumionen

Ein Photon mit dem Wellenzahlvektor $\mathbf{k}$ trägt einen Impuls $\mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}$. Aufgrund der Impulserhaltung muß also ein Atom bei Absorption oder Emission von Licht eine Impulsänderung erfahren. In einem monochromatischen zu einem atomaren Übergang nahezu resonanten Lichtfeld treten ständig stimulierte Absorptions- sowie spontane und stimulierte Emissionsprozesse statt. Die Impulsüberträge durch stimulierte Prozesse heben sich jedoch weg, da die hierbei auf das Atom übertragenen Impulse mit gleichem Betrag genau in entgegengesetzte Richtungen wirken. Netto ergibt sich also in einem Zeitintervall, in dem N spontane Emissionen auftraten der Impulsübertrag:

$$\mathbf{P} = \sum_{n=1}^{N} \hbar(\mathbf{k}_{abs} - \mathbf{k}_{em}) \tag{4.1}$$

wärend die Wellenzahlvektoren $\mathbf{k}_{abs}$ immer in Strahlrichtung des Lichts wirken, sind die Richtungen der spontanen Emmissionen stochastisch in alle Raumrichtungen verteilt. In einem Zeitinterval Δt findet also im Mittel ein Impulsübertrag von

$$\Delta\mathbf{P} = \hbar\mathbf{k}\,\langle n\rangle\,\Delta t \tag{4.2}$$

statt. Da die Änderung des Impulses mit der Zeit eine Kraft ist, kann man also für das Atom im Lichtfeld eine Rückstoßkraft der Größe

$$\mathbf{F} = \hbar\mathbf{k}\,\langle n\rangle \tag{4.3}$$

angeben. Setzt man für die Zerfallsrate und die Wellenzahl die Verhältnisse ein, wie sie für den $6^2P_{1/2} \leftrightarrow 6^2S_{1/2}$-Übergang gelten, so ist diese Kraft fast 9000 mal stärker, als die Erdanziehung. Dabei wird vorausgesetzt, daß das Lichtfeld stark genug ist um das Ion nach jedem Spontanzerfall sofort wieder anzuregen und deshalb für die Rate $\langle n \rangle$ die Zerfallsrate Γ angenommen werden kann.

Wird das Lichtfeld gegenüber der Resonanz zu größeren Wellenlängen hin verstimmt, so wird die Absorptionswahrscheinlichkeit aufgrund der Dopplerverschiebung für Ionen, die sich dem Lichtstrahl entgegen bewegen, größer, als für solche, die sich von dem Lichtstrahl entfernen. Oszilliert das Ion in einem harmonischen Potential in Richtung des Lichtstrahls, so wird es im Mittel häufiger Licht absorbieren, wenn es dem Licht entgegenläuft, als wenn es in Propagationsrichtung des Lichtfeldes läuft. Absorptionsprozesse, bei denen die kinetische Energie des Ions abnimmt werden also überwiegen und es kommt zur Kühlung des Ions in dem Potential.

Diese Betrachtung des Ions als nahezu freies Teilchen ist nur dann gerechtfertigt, wenn ein Zyklus von stimulierter Absorption uns spontaner Emission schnell gegen die Bewegung des Ions im Käfigpotential ist. Dann kann das Ion wärend eines Zyklus keine Energie mit dem Käfig austauschen und es ist als annähernd freies Teilchen zu betrachten. Diesen Grenzfall bezeichnet man als schwache Speicherung. Das Barium ist in dieser Arbeit bezüglich beider Übergänge schwach gespeichert.

Aufgrund der zufälligen Richtungsverteilung der Spontanemissionen führt das gekühlte Ion im Phasenraum eine Bewegung durch, die einer Brownschen Bewegung gleicht. Als Gleichgewicht zwischen der gerichteten Kühlung und der ungerichteten Brownschen Drift ergibt sich eine minimale Energie, die durch Dopplerkühlung erreicht werden kann. Diese Energie beträgt:

$$E_{\text{Doppler}} = \frac{h\Gamma}{2} \tag{4.4}$$

Bei jeder Spontanemission erhält das Ion einen Impuls von $\hbar k$ in zufälliger Richtung. Dieser Impulsübertrag ist mit einer Rückstoßenergie von

$$E_{\text{Rück}} = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m} \tag{4.5}$$

verbunden. Diese Energie kann mit dem hier beschriebenen Kühlverfahren ebenfalls nicht unterschritten werden. Die minimale durch Dopplerkühlung erreichbare Energie ergibt sich also als die höhere der beiden Grenzenergien.

4.2 Optische Bloch-Gleichungen

In diesem Abschnitt soll der Einfluß eines elektromagnetischen Feldes auf das Ion berechnet werden. Hierbei wird die halbklassische Näherung verwendet, bei der das Atom quantenmechanisch, das elektromagnetische Feld jedoch als

klassische Welle betrachtet wird. Dieses Vorgehen ist dadurch gerechtfertigt, daß die Intensitäten der Lichtfelder in dem Experiment so groß sind, daß die Quantenmechanik nach dem Bohrschen Korrespondenzprinzip in die klassische Elektrodynamik übergeht.

Die numerischen Berechnungen werden in einem Koordinatensystem durchgeführt, in dem sich für das Zwei-Niveau-System Differentialgleichungen ergeben, die zu den Bloch-Gleichungen äquivalent sind. Diese Gleichungen wurden zuerst von F. Bloch [Blo 46] angegeben und beschreiben ein Spinsystem in einem konstanten und einem dazu senkrechten oszillierenden Magnetfeld. Man nennt daher die zu lösenden Differentialgleichungen optische Blochgleichungen. Sie können für Systeme mit mehr als zwei Niveaus verallgemeinert werden.

4.2.1 Der Dichteoperator

Der Dichteoperator $\hat{\rho}$ beschreibt ein quantenmechanisches System vollständig, der Erwartungswert jeder Observablen $\hat{O}$ läßt sich mit der Formel

$$\langle \hat{O} \rangle = \text{Spur}(\hat{O}\hat{\rho}) \tag{4.6}$$

errechnen.

Für einen reinen Zustand Ψ ist der Dichteoperator identisch mit einer Projektion auf diesen Zustand: $\hat{\rho} = |\Psi\rangle \langle\Psi|$.

Ein atomares System läßt sich als ein vollständiges System von Energieeigenzuständen $|i\rangle, i = 1, 2, \ldots, n$ beschreiben. Die Vollständigkeit dieses Systems ist eine Näherung, die dann gute Ergebnisse liefert, wenn die beteiligten Energien weit von Resonanzen entfernt sind, die weitere Energieeigenzustände des Systems ankoppeln würden. Insbesondere müssen die Energien deutlich unterhalb der Ionisierungsenergie liegen. Der Dichteoperator des Systems kann nach diesen Zuständen entwickelt werden:

$$\hat{\rho} = \sum_{i=1}^{n} \sum_{j=1}^{n} |i\rangle \langle i| \hat{\rho} |j\rangle \langle j| = \sum_{i=1}^{n} \sum_{j=1}^{n} \rho_{ij} |i\rangle \langle j| \tag{4.7}$$

Der Dichteoperator läßt sich also durch eine komplexe (n×n)-Matrix mit den Einträgen $\rho_{ij} = \langle i| \hat{\rho} |j\rangle$ darstellen. Da der Dichteoperator hermitesch ist, gilt das auch für die Dichtematrix. Die Diagonalelemente ρ_{ii} der Dichtematrix geben die Wahrscheinlichkeit dafür an, das System im Eigenzustand $|i\rangle$ zu beobachten, die Nichtdiagonalelemente $\rho_{ij}, i \neq j$ sind ein Maß für die Kohärenz der Überlagerung der beiden Zustände $|i\rangle$ und $|j\rangle$. Ein statistisches Gemisch von Zuständen hat verschwindende Nichtdiagonalelemente. Für eine reine kohärente Überlagerung zweier Zustände wird das entsprechende Nichtdiagonalelement maximal.

Betrachtet man ein atomares System mit dem Hamiltonoperator $\hat{H}_A$, zu dem die Zustände $|i\rangle$ die Eigenzustände sind, und mit einer zusätzlichen Wechselwirkung, beschrieben durch den Hamiltonoperator $\hat{H}_I$, so entwickelt sich der

Dichteoperator nach der Schrödingergleichung [Man 95, Kap. 15.3]:

$$i\hbar\frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = [\hat{H}, \hat{\rho}(t)] \tag{4.8}$$

mit $\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_I$.

Die zeitliche Entwicklung der Zustände im ungestörten Atom ist gegeben durch

$$\Psi_n = e^{-i\omega_n t} |n\rangle \tag{4.9}$$

wobei $\hbar\omega_n$ die Energie des n-ten Zustands ist. Unter Vernachlässigung von Spontanemission sind die Diagonalelemente ρ_{nn} also zeitlich konstant, wärend die Phase eines Nichtdiagonalelements ρ_{nm} mit der Kreisfrequenz $\omega_n - \omega_m$ rotiert. Die Spontanemission führt zu einem exponentiellen Zerfall der Besetzungswahrscheinlichkeiten angeregter Zustände sowie der damit verbundenen Kohärenzen.

So wie der Dichteoperator läßt sich auch der Hamiltonoperator nach der Basis entwickeln:

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{n} H_{ij} |i\rangle \langle j| \tag{4.10}$$

Damit wird aus der Operatorgleichung (4.8) eine Matrixgleichung und man erhält für die Komponenten der Dichtematrix n^2 komplexe oder $2n^2$ reelle, gekoppelte Differentialgleichungen erster Ordnung. Da die Dichtematrix hermitesch ist, reduziert sich die Zahl der unabhängigen reellen Komponenten auf die Hälfte. Unter der Annahme, daß das System durch die n Eigenzustände vollständig beschrieben ist, also keine Anregung in einen weiteren Zustand erfolgen kann, muß die Summe der Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände das sichere Ereignis liefern. Mit Hilfe der Normierung

$$\sum_{i=1}^{n} \rho_{ii} = 1 \tag{4.11}$$

läßt sich also eine weitere Variable eliminieren, so daß sich die Dichtematrix durch einen (n^2-1)-komponentigen Vektor $\mathbf{r}$ darstellen läßt. Gleichung (4.8) läßt sich nun auf eine lineare Differentialgleichung der Form

$$\dot{\mathbf{r}} = A \cdot \mathbf{r} + \mathbf{c} \tag{4.12}$$

bringen, wobei A eine $(n^2 - 1 \times n^2 - 1)$-Matrix und $\mathbf{c}$ ein (n^2-1)-komponentiger Vektor ist.

Im Rahmen dieser Arbeit werden stationäre Lösungen für $\mathbf{r}$ berechnet, indem die Ableitung des Blochvektors $\dot{\mathbf{r}}$ gleich Null gesetzt wird. Diese stationären Zustände stellen sich beim Barium in wenigen Mikrosekunden ein (Siehe [Sie 91] und Abb. 4.15 auf Seite 41).

4.2.2 Der elektrische Dipoloperator

Die Energie eines elektrischen Dipols in einem elektromagnetischen Feld ist durch das Skalarprodukt aus dem elektrischen Dipolmoment $\mathbf{d}$ und der Feldstärke gegeben. Der Wechselwirkungsanteil des Hamiltonoperators lautet:

$$\hat{H}_I = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E} \tag{4.13}$$

wobei $\mathbf{E}$ die elektrische Feldstärke ist. Der Dipoloperator ist definiert als das Produkt aus Ladung und Verschiebung der Ladung aus der Ruhelage: $\hat{\mathbf{d}} = e\hat{\mathbf{r}}$. Hierbei ist e die Ladung des Elektrons und $\hat{\mathbf{r}}$ der Ortsoperator.

Auch der Dipoloperator läßt sich nach den Eigenzuständen des Atoms entwickeln:

$$\hat{\mathbf{d}} = \sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{n} \mathbf{d}_{ij} \left|i\right\rangle \left\langle j\right| \tag{4.14}$$

Man erhält also eine Dipolmatrix mit den vektorartigen Koeffizienten $\mathbf{d}_{ij}$.

Der Erwartungswert des Dipoloperators lautet dann nach Gleichung (4.6):

$$\langle\hat{\mathbf{d}}\rangle = \text{Spur}(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}) = \sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{n} \mathbf{d}_{ij}\rho_{ji} \tag{4.15}$$

Die Diagonalelemente der Dipolmatrix $\mathbf{d}_{ii}$ sind die Erwartungswerte des Dipolmoments für die Energieeigenzutände $|i\rangle$ und müssen aufgrund der ungeraden Parität des Dipoloperators verschwinden [Man 95]. Die Nichtdiagonalelemente $\mathbf{d}_{ij}, j \neq i$ ergeben das elektrische Dipolmoment, das durch Überlagerung zweier Eigenzustände $|i\rangle$ und $|j\rangle$ erzeugt wird. Aufgrund des Energieunterschieds der betroffenen Zustände $\Delta E = E_i - E_j$ und der damit verbundenen unterschiedlich schnellen Phasenoszillationen (4.9) oszilliert ein solcher Dipol mit der Frequenz $\omega_0 = \frac{\Delta E}{\hbar}$.

Die Berechnung von Dipolmatrixelementen ist in Anhang A erläutert. Ist der Übergang zwischen den Zuständen $|i\rangle$ und $|j\rangle$ dipolverboten, so verschwinden die entsprechenden Dipolmatrixelemente $\mathbf{d}_{ij} = \mathbf{d}_{ji}^* = 0$. Für π-Übergänge ($\Delta m = 0$) ist das Matrixelement ein reeller Vektor in Richtung der Quantisierungsachse und für $\sigma^{\pm}$-Übergänge ist $\mathbf{d}_{ij}$ ein komplexer Vektor orthogonal zur Quantisierungsachse.

Bezeichnet man den Einheitsvektor in Richtung der Quantisierungsachse mit $\mathbf{z}$ und die beiden orthogonalen Einheitsvektoren mit $\mathbf{x}$ und $\mathbf{y}$, so erhält man für einen π-Übergang ($\mathbf{d}_{ij} \propto \mathbf{z}$) einen Erwartungswert von:

$$\langle\hat{\mathbf{d}}\rangle = \mathbf{d}_{ij}\rho_{ji} + \text{c.c.} \propto 2Re(\rho_{ij})\mathbf{z} \tag{4.16}$$

Für einen $\sigma^{\pm}$-Übergang ($\mathbf{d}_{ij} \propto \mathbf{x} \pm i\mathbf{y}$) erhält man:

$$\langle\hat{\mathbf{d}}\rangle = \mathbf{d}_{ij}\rho_{ji} + \text{c.c.} \propto 2Re(\rho_{ij})\mathbf{x} \mp 2Im(\rho_{ij})\mathbf{y} \tag{4.17}$$

Im ersten Fall schwingt der Erwartungswert also mit dem Realteil des Dichtematrixelements auf der Quantisierungsachse, wärend der Erwartungswert im zweiten Fall um die Quantisierungsachse rotiert.

Anschaulich kann man sich das Ion also als ein System von im Ortsraum schwingenden Dipolen vorstellen, die vom elektrischen Feld angetrieben werden.

4.2.3 Das Zwei-Niveau-System

Für ein Zwei-Niveau-Atom, mit einem Grundzustand $|1\rangle$ und einem angeregten Zustand $|2\rangle$, das mit einem Lichtfeld in Wechselwirkung steht, lautet der Hamilton-Operator:

$$\hat{H} = \hbar\omega_0 |2\rangle\langle 2| - \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E} \tag{4.18}$$

Hierbei ist $\hbar\omega_0$ die Anregungsenergie. Unter der Voraussetzung, daß die Ortsausdehnung der Wellenfunktion des Atoms viel kleiner ist, als die Lichtwellenlänge (Lamb-Dicke-Bereich), kann man die Feldstärke über das gesamte Atom als konstant annehmen. Es wird hier eine ideal kohärente und monochromatiche Lichtquelle angenommen. Die Lichtquelle ist linear polarisiert und propagiert in Richtung der y-Achse, so daß sich das Lichtfeld am Ort des Atoms darstellen läßt als

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= E_0 \mathbf{e} \cos(\omega t) \\ &= \tfrac{1}{2}\mathbf{e} E_0 e^{-i\omega t} + c.c. \end{aligned} \tag{4.19}$$

Die Amplitude des Feldes ist gegeben durch die reelle Größe E_0. $\mathbf{e}$ ist ein reeller Einheitsvektor in Richtung der Polarisation und kann angegeben werden als:

$$\mathbf{e} = \mathbf{x}\sin\beta + \mathbf{z}\cos\beta \tag{4.20}$$

wobei $\mathbf{x}$ und $\mathbf{z}$ Einheitsvektoren in Richtung der x- und z-Achse sind und β dem Winkel zwischen Polarisations- und Quantisierungsachse angibt.

Berücksichtigt man, daß die Diagonalelemente des Dipoloperators aus Symmetriegründen verschwinden müssen [Man 95], so erhält man durch Einsetzen in (4.8):

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{11} &= -\tfrac{1}{i\hbar}(\mathbf{E}\mathbf{d}_{12}\rho_{21} - c.c.) \\ \dot{\rho}_{22} &= -\dot{\rho}_{11} \\ \dot{\rho}_{12} &= i\omega_0\rho_{12} + \tfrac{1}{i\hbar}\mathbf{E}\mathbf{d}_{12}(\rho_{22} - \rho_{11}) \\ \dot{\rho}_{21} &= -i\omega_0\rho_{21} - \tfrac{1}{i\hbar}\mathbf{E}\mathbf{d}_{21}(\rho_{22} - \rho_{11}) \end{aligned} \tag{4.21}$$

mit den Matrixelementen des Dipoloperators $\mathbf{d}_{12} = \langle 1|\,\mathbf{d}\,|2\rangle$ und $\mathbf{d}_{21} = \langle 2|\,\mathbf{d}\,|1\rangle$.

Wie oben gezeigt wurde, reicht für ein Zwei-Niveau-System ein dreidimensionaler Vektor aus, um das System vollständig zu beschreiben. Durch Definition des Blochvektors $\mathbf{r}$ mit den Komponenten

$$\begin{aligned} r_1 &= 2Re(\rho_{12}) \\ r_2 &= 2Im(\rho_{12}) \\ r_3 &= \rho_{22} - \rho_{11} \end{aligned} \tag{4.22}$$

wird das System äquivalent zu einem Spinsystem in einem konstanten und einem dazu senkrechten oszillierenden Magnetfeld [Fey 57]. Der Gleichung (4.12) entsprechen dann die Blochgleichungen:

$$\begin{aligned} \dot{r}_1 &= -\tfrac{2}{\hbar}\mathbf{E}Im(\mathbf{d}_{12})r_3 - \omega_0 r_2 \\ \dot{r}_2 &= \tfrac{2}{\hbar}\mathbf{E}Re(\mathbf{d}_{12})r_3 + \omega_0 r_1 \\ \dot{r}_3 &= \tfrac{2}{\hbar}\mathbf{E}Im(\mathbf{d}_{12})r_1 - \tfrac{2}{\hbar}\mathbf{E}Re(\mathbf{d}_{12})r_2 \end{aligned} \tag{4.23}$$

Bei einem π-Übergang ist das Dipolmatrixelement reell, es gilt also $Im(\mathbf{d}_{12}) = 0$. Für einen $\sigma^{\pm}$-Übergang verschwindet das Skalarprodukt aus Imaginärteil des Dipolmatrixelements und der elektrischen Feldstärke, da der Imaginärteil des Matrixelements in Richtung der y-Achse zeigt und die elektrische Feldstärke hierzu orthogonal ist. Die optischen Blochgleichungen lassen sich also vereinfachen zu:

$$\begin{aligned} \dot{r}_1 &= -\omega_0 r_2 \\ \dot{r}_2 &= 2\Omega r_3 \cos(\omega t) + \omega_0 r_1 \\ \dot{r}_3 &= -2\Omega r_2 \cos(\omega t) \end{aligned} \tag{4.24}$$

wobei die Rabifrequenz Ω für π-Übergänge durch

$$\hbar\Omega = E_0 |Re(\mathbf{d}_{12})| \cos\beta \tag{4.25}$$

und für $\sigma^{\pm}$-Übergänge durch

$$\hbar\Omega = E_0 |Re(\mathbf{d}_{12})| \sin\beta \tag{4.26}$$

definiert ist.

Der Blochvektor ist so gewählt, daß sein Betrag eins ist. $r_3 = 1$ ergibt den reinen angeregten Zustand, $r_3 = -1$ den reinen Grundzustand. Gleichung 4.24 bewirkt eine Rotation des Blochvektors mit der Frequenz ω_0 um die Achse, die durch r_3 gegeben ist, sowie eine zeitabhängige Nutation, verursacht durch das elektrische Feld. Durch dissipative Effekte kann es außerdem zur Abnahme der Kohärenz und damit zur Längenänderung des Blochvektors kommen.

Spontanemission

Bisher wurde nur die Wechselwirkung des Atoms mit einem oszillierenden elektrischen Feld betrachtet. Der angeregte Zustand kann jedoch spontan unter Aussendung eines Lichtquants in beliebiger Richtung oder strahlungslos (z.B. durch einen Stoß mit einem Restgasatom) zerfallen. Es muß also eine lineare Zerfallsrate Γ des angeregten Zustands eingeführt werden. Die spontanen Prozesse zerstören außerdem die Phase der Überlagerung beider Zustände, so daß auch die Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix mit der Rate $\frac{1}{2}\Gamma$ ausgedämpft

werden. Die Bewegungsgleichung (4.21) wird damit zu:

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{11} &= -\tfrac{1}{i\hbar}(\mathbf{E}\mathbf{d}_{12}\rho_{21} - c.c.) + \Gamma\rho_{22} \\
\dot{\rho}_{22} &= -\dot{\rho}_{11} \\
\dot{\rho}_{12} &= i\omega_0\rho_{12} + \tfrac{1}{i\hbar}\mathbf{E}\mathbf{d}_{12}(\rho_{22} - \rho_{11}) - \tfrac{1}{2}\Gamma\rho_{12} \\
\dot{\rho}_{21} &= -i\omega_0\rho_{21} - \tfrac{1}{i\hbar}\mathbf{E}\mathbf{d}_{21}(\rho_{22} - \rho_{11}) - \tfrac{1}{2}\Gamma\rho_{21}
\end{aligned} \tag{4.27}$$

Für die zeitliche Entwicklung des Blochvektors erhält man dann:

$$\begin{aligned}
\dot{r}_1 &= -\omega_0 r_2 - \tfrac{1}{2}\Gamma r_1 \\
\dot{r}_2 &= 2\Omega r_3\cos(\omega t) + \omega_0 r_1 - \tfrac{1}{2}\Gamma r_2 \\
\dot{r}_3 &= -2\Omega r_2\cos(\omega t) - \Gamma(1 + r_3)
\end{aligned} \tag{4.28}$$

Stationäre Lösung

Unter Einfluß des treibenden elektrischen Feldes werden die Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix, nach dem Ausklingen aller Einschwingvorgänge, mit der Frequenz ω des Feldes oszillieren. Durch Übergang in ein rotierendes Koordinatensystem lassen sich stationäre Lösungen der Blochgleichungen erhalten. Hierzu wird folgende Substitution durchgeführt:

$$\rho_{12} \quad \rightarrow \quad \rho_{12}e^{i\omega t} \tag{4.29}$$

oder für den Blochvektor:

$$\begin{aligned}
r_1 &\rightarrow r_1\cos(\omega t) - r_2\sin(\omega t) \\
r_2 &\rightarrow r_2\cos(\omega t) + r_1\sin(\omega t)
\end{aligned} \tag{4.30}$$

Diese Substitution kann anschaulich als eine Rotation des Blochvektors mit der Frequenz ω um die Achse $\mathbf{r}_3$ erklärt werden. Man begibt sich in ein neues Koordinatensystem, in dem sich die Koordinatenachsen so drehen, daß der elektrische Feldstärkevektor immer in die gleiche Richtung zeigt. Dadurch ergibt sich im zeitlichen Mittel eine konstante Nutation mit der Frequenz Ω. Die zeitliche Mittelung führt zur Vernachlässigung von Termen, die mit der doppelten Lichtfrequenz oszillieren. Sie wird als Drehwellennäherung bezeichnet. In dieser Näherung ergeben sich die Bewegungsgleichungen:

$$\begin{aligned}
\dot{r}_1 &= -\tfrac{1}{2}\Gamma r_1 + (\omega - \omega_0)r_2 \\
\dot{r}_2 &= -\tfrac{1}{2}\Gamma r_2 - (\omega - \omega_0)r_1 + \Omega r_3 \\
\dot{r}_3 &= -\Gamma(1 + r_3) - \Omega r_2
\end{aligned} \tag{4.31}$$

Durch Nullsetzen der Ableitungen $\dot{r}_i$ erhält man nun ein lineares Gleichungssystem für den stationären Zustand des Blochvektors $\mathbf{r}$. Die Lösung dieses Glei-

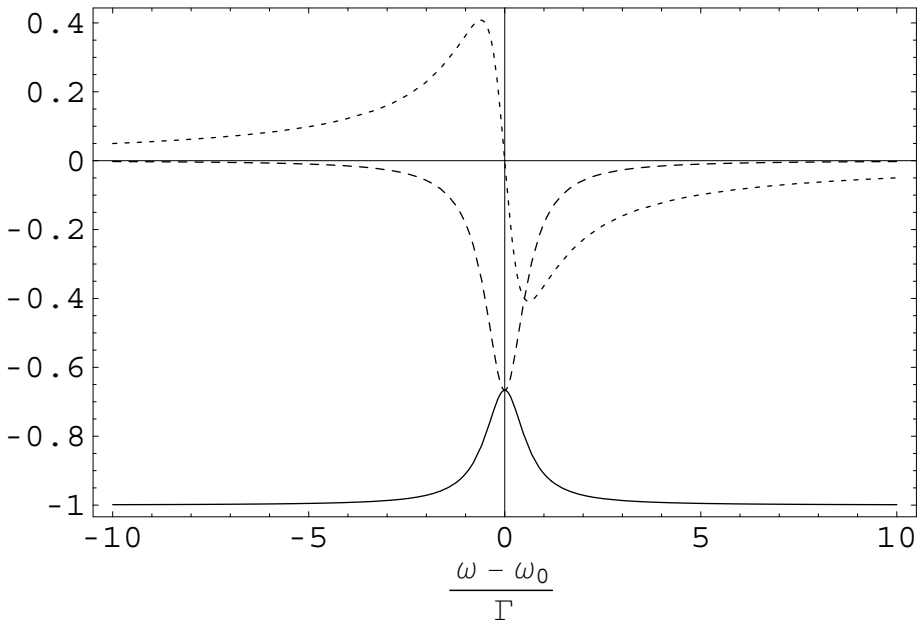

Abbildung 4.1: Stationäre Lösung der optischen Blochgleichungen im 2-Niveau-System. $\Omega = 0,5\Gamma$. (Gepunktet: r1; Gestrichelt: r2; Durchgezogen: r3)

chungssystems ist:

$$\begin{aligned} r_1 &= -\frac{4\Omega(\omega-\omega_0)}{\Gamma^2+2(\Omega^2+2(\omega-\omega_0)^2)} \\ r_2 &= -\frac{2\Omega\Gamma}{\Gamma^2+2(\Omega^2+2(\omega-\omega_0)^2)} \\ r_3 &= -1+\frac{2\Omega^2}{\Gamma^2+2(\Omega^2+2(\omega-\omega_0)^2)} \end{aligned} \tag{4.32}$$

Abbildungen 4.1 und 4.2 zeigen die Lösungen der Blochgleichungen für verschiedene Rabifrequenzen in Abhängigkeit von der Verstimmung $\omega - \omega_0$. Bei großen Rabifrequenzen (Abb. 4.2) ist eine deutliche Linienverbreiterung durch Sättigung zu erkennen. Abbildung 4.3 zeigt die Inversion r_3 in Abhängigkeit von der Rabifrequenz Ω für zwei verschiedene Werte für die Verstimmung. Man erkennt, daß Inversion ($\rho_{22} > \rho_{11} \Leftrightarrow r_3 > 0$) im Zwei-Niveau-System nicht stationär erreicht werden kann. Die Sättigung ist daran zu erkennen, daß die Inversion auf der Resonanz zunächst sehr viel schneller anwächst als neben der Resonanz (gestrichelte Linie), dann aber nur langsam asymptotisch gegen Null geht.

Die Spontanemission eines Atoms ist proportional zur Besetzung des angeregten Zustands $\rho_{22} = 1 + r_3$. Daher kann man aus der Kurve für r_3 direkt die Stärke der Fluoreszenz des Atoms ablesen. Die induzierten Prozesse sind dagegen mit den Nichtdiagonalelementen verknüpft: r_1 ist proportional zur Dispersion und r_2 ist proportional zur Absorption, wobei positive Werte für r_2 auf Verstärkung des Lichtfeldes durch das Atom hinweisen würden.

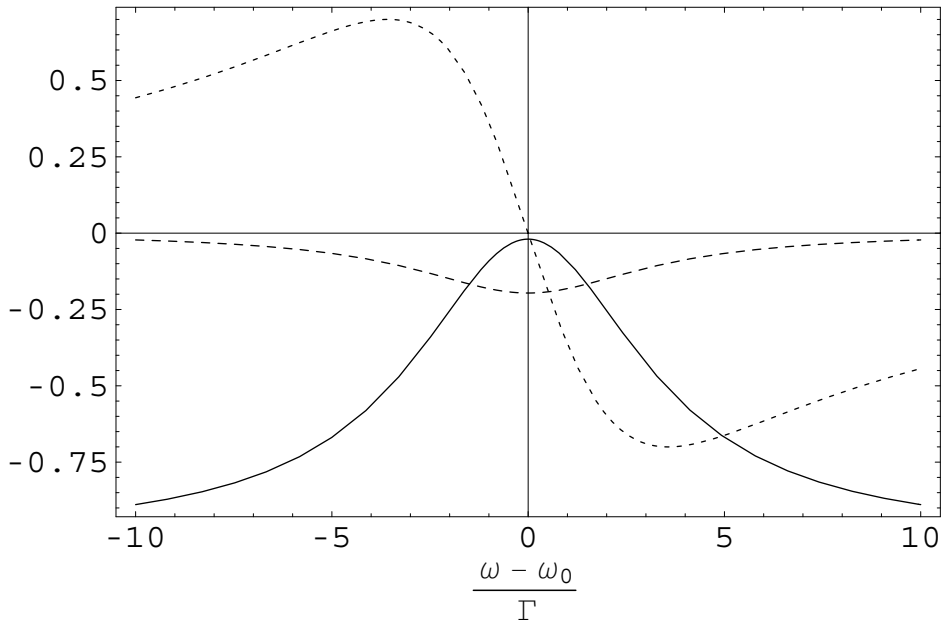

Abbildung 4.2: Stationäre Lösung der optischen Blochgleichungen im 2-Niveau-System. $\Omega = 5\Gamma$. (Gepunktet: r1; Gestrichelt: r2; Durchgezogen: r3)

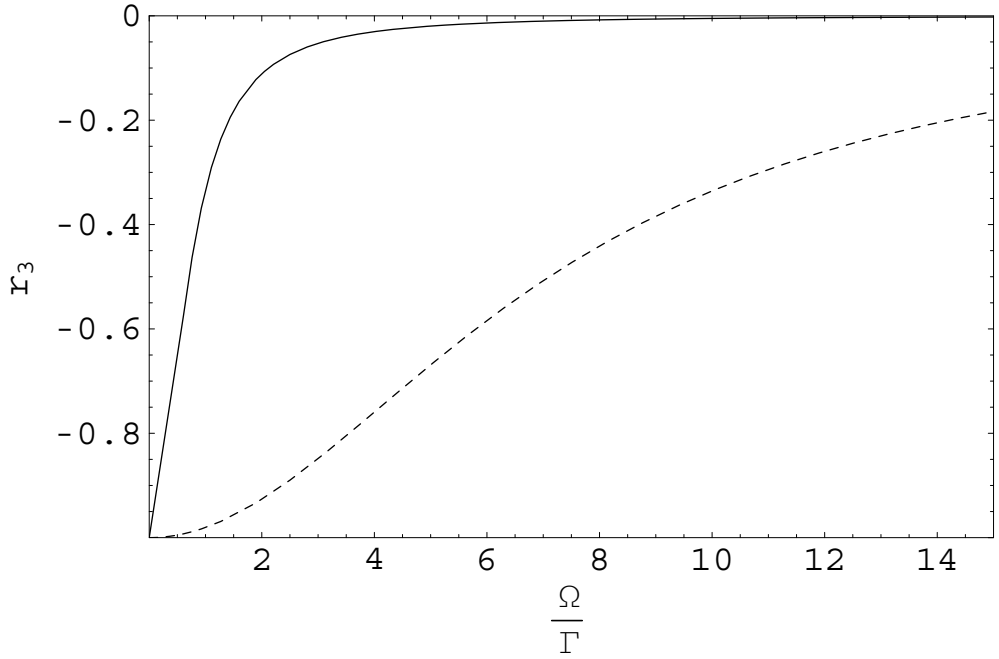

Abbildung 4.3: r_3 als Funktion der Rabifrequenz. (Durchgezogen: $\omega = \omega_0$; Gestrichelt: $\omega - \omega_0 = 5$)

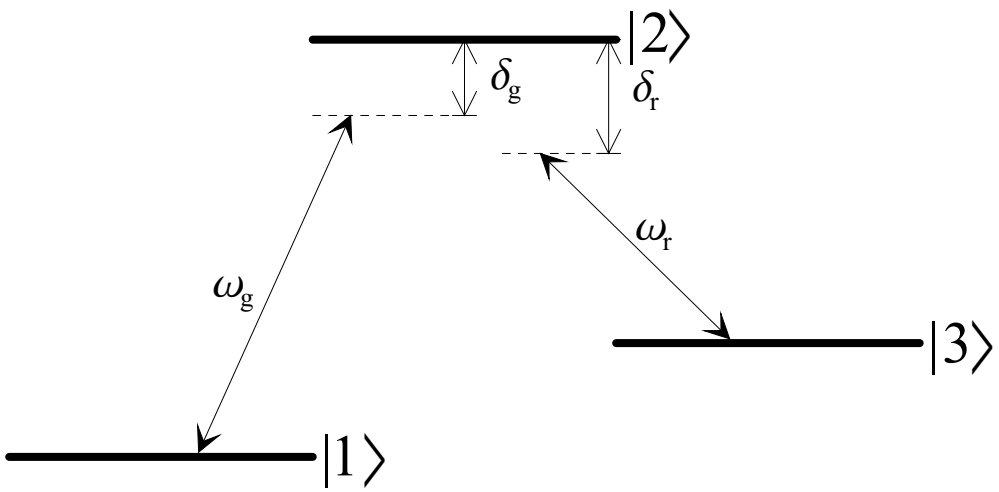

Abbildung 4.4: Das Drei-Niveau-System.

4.2.4 Das Drei-Niveau-System

In diesem Abschnitt werden die optischen Blochgleichungen für ein Λ-förmiges Drei-Niveau-System (Abb. 4.4) gelöst. Der obere Zustand $|2\rangle$ hat eine Anregungsenergie von $\hbar\omega_g^0$. Er zerfällt mit der Rate Γ_{PS} in $|1\rangle$ und mit der Rate Γ_{PD} in $|3\rangle$. Der Zustand $|3\rangle$ ist ein metastabiler Zustand mit der Energie $\hbar\omega_g^0 - \hbar\omega_r^0$. Der Übergang $|3\rangle \rightarrow |1\rangle$ hat ein verschwindendes Dipolmoment: $\mathbf{d}_{13} = 0$. Die Halbwertzeit von $|3\rangle$ wird als so groß angenommen, daß die Dämpfung dieses Zustands in guter Näherung gleich Null gesetzt werden kann.

Der Hamiltonoperator dieses Systems besteht aus dem Hamiltonoperator des ungestörten Atoms und aus dem Wechselwirkungsterm:

$$H = \hbar\omega_g^0 |2\rangle\langle 2| + \hbar(\omega_g^0 - \omega_r^0) |3\rangle\langle 3| - \mathbf{d}\cdot\mathbf{E} \tag{4.33}$$

Das Feld wird als über die Ausdehnung des Atoms konstant angenommen und besteht aus zwei monochromatischen, kohärenten Lichtquellen:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_g + \mathbf{E}_r \\ \mathbf{E}_g &= \tfrac{1}{2}\mathbf{e}_g E_g^0 e^{-i\omega_g t} + c.c. \\ \mathbf{E}_r &= \tfrac{1}{2}\mathbf{e}_r E_r^0 e^{i\omega_r t} + c.c. \end{aligned} \tag{4.34}$$

Die Vektoren $\mathbf{e}_g$ und $\mathbf{e}_r$ geben wieder die Polarisation der Lichtfelder an. E_g^0 und E_r^0 sind die Amplituden und $\omega_g/2\pi$ und $\omega_r/2\pi$ die Frequenzen der beiden Felder. Das grüne Lichtfeld $\mathbf{E}_g$ soll nur mit dem Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$, das rote nur mit dem Übergang $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ wechselwirken. Diese Annahme ist gerechtfertigt, wenn die Lichtfrequenzen in der Nähe der Resonanzen liegen ($\omega_g \approx \omega_g^0$ und $\omega_r \approx \omega_r^0$) und die Überlappung der Zustände klein ist ($(\Gamma_{PS} + \Gamma_{PD}) \ll \omega_r^0$).

Der Blochvektor wird nun definiert als

$$\begin{aligned} r_1 &= \rho_{11} & r_5 &= Re(\rho_{23}) \\ r_2 &= \rho_{22} & r_6 &= Im(\rho_{23}) \\ r_3 &= Re(\rho_{12}) & r_7 &= Re(\rho_{13}) \\ r_4 &= Im(\rho_{12}) & r_8 &= Im(\rho_{13}) \end{aligned} \tag{4.35}$$

Die Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix ρ_{12} und ρ_{23} werden jeweils mit der treibenden Frequenz ω_g, bzw. ω_r oszillieren. ρ_{13} schwingt mit der Differenzfrequenz $\omega_g - \omega_r$. Um eine stationäre Lösung zu erhalten muß man folgende Substitutionen durchführen [Sie 91]:

$$\begin{aligned} r_3 &\rightarrow r_3\cos(\omega_g t) - r_4\sin(\omega_g t) \\ r_4 &\rightarrow r_4\cos(\omega_g t) + r_3\sin(\omega_g t) \\ r_5 &\rightarrow r_5\cos(\omega_r t) + r_6\sin(\omega_r t) \\ r_6 &\rightarrow r_6\cos(\omega_r t) - r_5\sin(\omega_r t) \\ r_7 &\rightarrow r_7\cos((\omega_g - \omega_r)t) - r_8\sin((\omega_g - \omega_r)t) \\ r_8 &\rightarrow r_8\cos((\omega_g - \omega_r)t) + r_7\sin((\omega_g - \omega_r)t) \end{aligned} \tag{4.36}$$

Es handelt sich hier um unabhängige Drehungen der mit Nichtdiagonalelementen verbundenen Komponenten des Bochvektors jeweils mit der Frequenz des angreifenden Lichtfeldes. Die Komponenten, die mit dem Nichtdiagonalelement ρ_{13} verbunden sind, rotieren mit der Differenzfrequenz. Die relativen Phasen der Rotationen zueinander wurden so gewählt, daß die Rechnung am einfachsten wird. Physikalisch bedeutet eine Phasenverschiebung nur die Verschiebung des Zeitnullpunkts und kann nicht zu anderen stationären Lösungen führen.

Im Rahmen der Drehwellennäherung erhält man nun die Bewegungsgleichungen:

$$\begin{aligned} \dot{r}_1 &= \Gamma_{PS} r_2 + \Omega_g r_4 \\ \dot{r}_2 &= -(\Gamma_{PS} + \Gamma_{PD}) r_2 - \Omega_g r_4 + \Omega_r r_6 \\ \dot{r}_3 &= -\tfrac{1}{2}\Gamma_{PS} r_3 + \delta_g r_4 + \tfrac{1}{2}\Omega_r r_8 \\ \dot{r}_4 &= -\tfrac{1}{2}\Gamma_{PS} r_4 - \delta_g r_3 - \tfrac{1}{2}\Omega_g(r_1 - r_2) - \tfrac{1}{2}\Omega_r r_7 \\ \dot{r}_5 &= -\tfrac{1}{2}\Gamma_{PD} r_5 - \delta_r r_6 - \tfrac{1}{2}\Omega_g r_8 \\ \dot{r}_6 &= -\tfrac{1}{2}\Gamma_{PD} r_6 + \delta_r r_5 + \tfrac{1}{2}\Omega_r(1 - r_1 - 2r_2) + \tfrac{1}{2}\Omega_g r_7 \\ \dot{r}_7 &= (\delta_g - \delta_r) r_8 + \tfrac{1}{2}\Omega_r r_4 - \tfrac{1}{2}\Omega_g r_6 \\ \dot{r}_8 &= -(\delta_g - \delta_r) r_7 - \tfrac{1}{2}\Omega_r r_3 + \tfrac{1}{2}\Omega_g r_5 \end{aligned} \tag{4.37}$$

wobei die Verstimmungen durch $\delta_r = \omega_r - \omega_r^0$ und $\delta_g = \omega_r - \omega_r^0$ und die Rabifrequenzen durch $\hbar\Omega_g = E_g^0 d_{12}$ und $\hbar\Omega_r = E_r^0 d_{23}$ definiert sind.

Durch Nullsetzen der Ableitungen erhält man die stationären Zustände für das System. Die Besetzung des Zustands $|2\rangle$, und damit die Stärke des Fluoreszenssignals, als Funktion der Verstimmung des roten Lichtes δ_r und für unterschiedliche Werte für die Verstimmung des grünen Lichtes ist in Abbildung 4.5

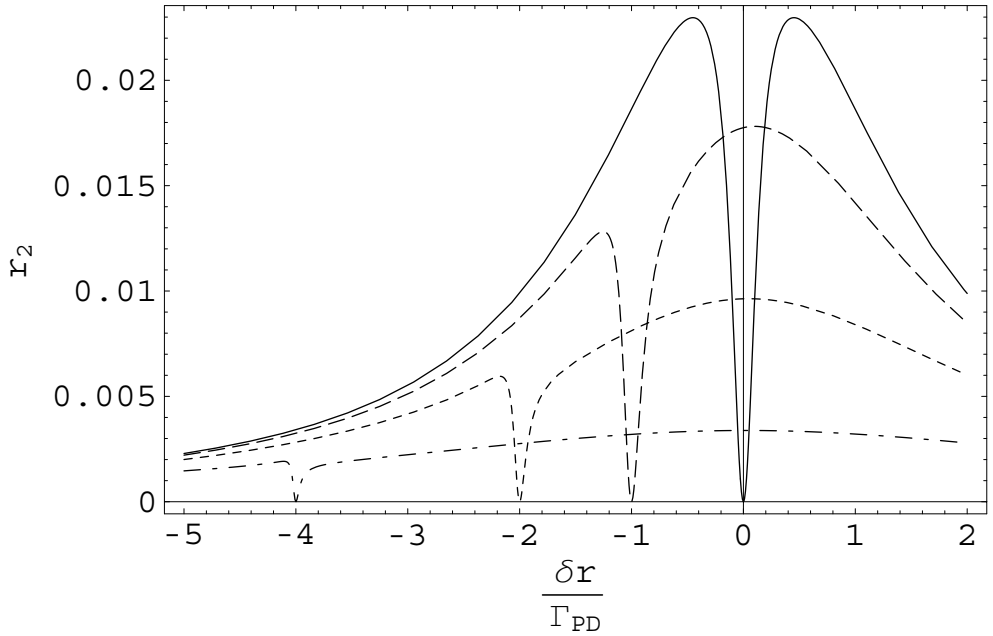

Abbildung 4.5: Dunkelresonanzen: Für $\delta_r = \delta_g$ wird die Besetzung des angeregten Zustands $|2\rangle$ null. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\Omega_g = \Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$, $\delta_g = 0, -1, -2, -4\Gamma_{PD}$.)

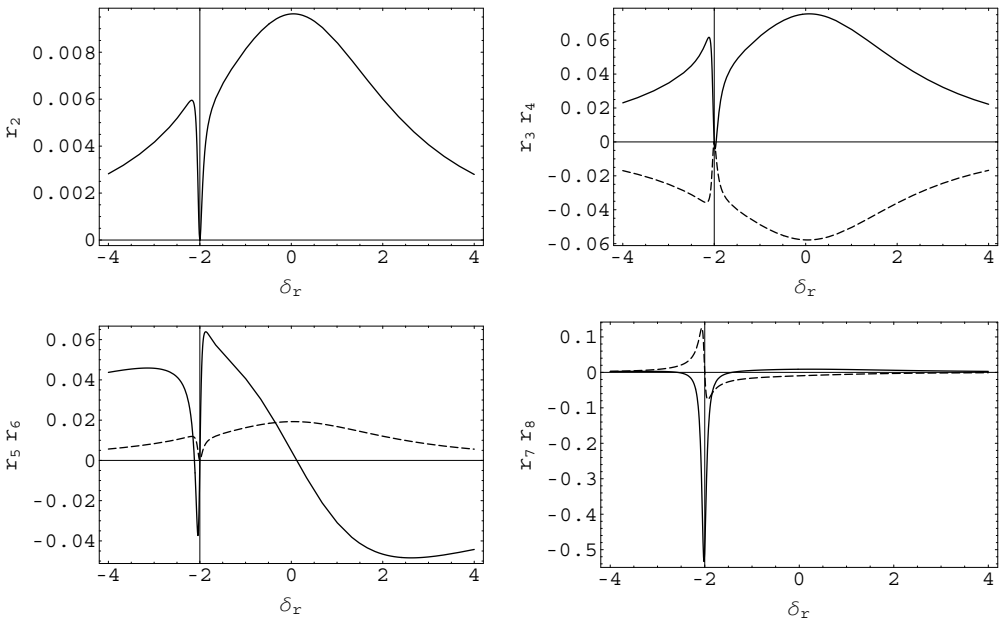

Abbildung 4.6: Besetzung des angeregten Zustands r_2 und die Real- und Imaginärteile der Nichtdiagonalelemente als Funktion der roten Verstimmung δ_r. Die senkrechte Linie markiert die Position der Dunkelresonanz. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -2\Gamma_{PD}$, $\Omega_g = \Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$.)

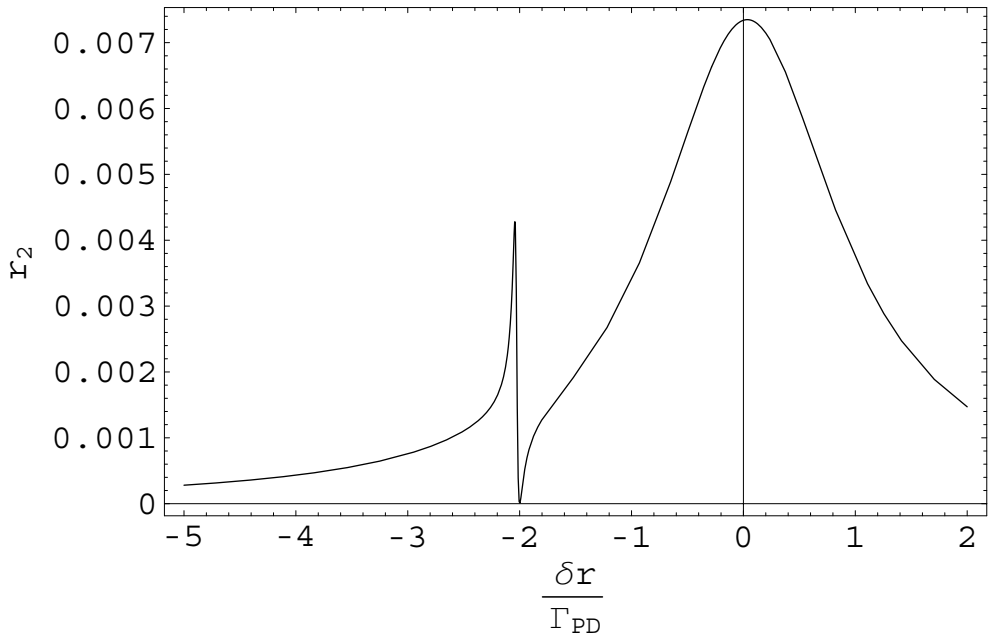

Abbildung 4.7: Zusätzliches Maximum in der Fluoreszenz neben der Dunkelresonanz für ungleiche Rabifrequenzen. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -2\Gamma_{PD}$, $\Omega_g = 3\Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$.)

dargestellt. Für $\delta_r = \delta_g$ verschwindet die Fluoreszenz. Diesen Effekt bezeichnet man als Dunkelresonanz [Hän 69, Hän 70]. Abbildung 4.6 verdeutlicht das Verhalten der Nichtdiagonalelemente an der Dunkelresonanz. Bei der Dunkelresonanz befindet sich das Ion in einem kohärenten Überlagerungszustand aus $|1\rangle$ und $|3\rangle$ der nicht mit dem Lichtfeld wechselwirkt. Die Nichtdiagonalelemente ρ_{12} und ρ_{23} der Dichtematrix verschwinden also an dieser Stelle. Die Koheränz der Überlagerung erkennt man daran, daß an dieser Stelle ρ_{13} einen maximalen Wert annimmt. Dieser Überlagerungszustand wird als trapped state bezeichnet [Alz 76].

Bei ungleichen Rabifrequenzen erkennt man neben der Dunkelresonanz ein zusätzliches Fluoreszenzmaximum(Abbildung 4.7). Diese Hellresonanz [Sie 91] entsteht dadurch, daß sich die Übergangsamplituden des Zwei-Photon-Übergangs hier nicht, wie bei der Dunkelresonanz, destruktiv überlagern, sondern daß die Wechselwirkung mit dem angeregten Zustand ein Maximum annimmt.

Abbildung 4.8 zeigt die Abhängigkeit der Fluoreszenz von der Rabifrequenz des roten Übergangs. Man erkennt die Verbreiterung der Dunkelresonanz sowie der ganzen Resonanzkurve mit zunehmender Rabifrequenz. Dieser Effekt ist auf Sättigung der roten Wechselwirkung zurückzuführen. In der Abbildung 4.9 dagegen wird die Abhängigkeit der Linienform von der Rabifrequenz des grünen Lichtes dargestellt. Die Breite der gesamten Linie wird nicht größer. Die Breite der Dunkelresonanz nimmt jedoch mit der Sättigung des grünen Übergangs zu. Die Maxima der Fluoreszenz auf beiden Seiten der Dunkelresonanz verschieben sich mit zunehmender Intensität des grünen Lichtfeldes. Diesen Effekt bezeich-

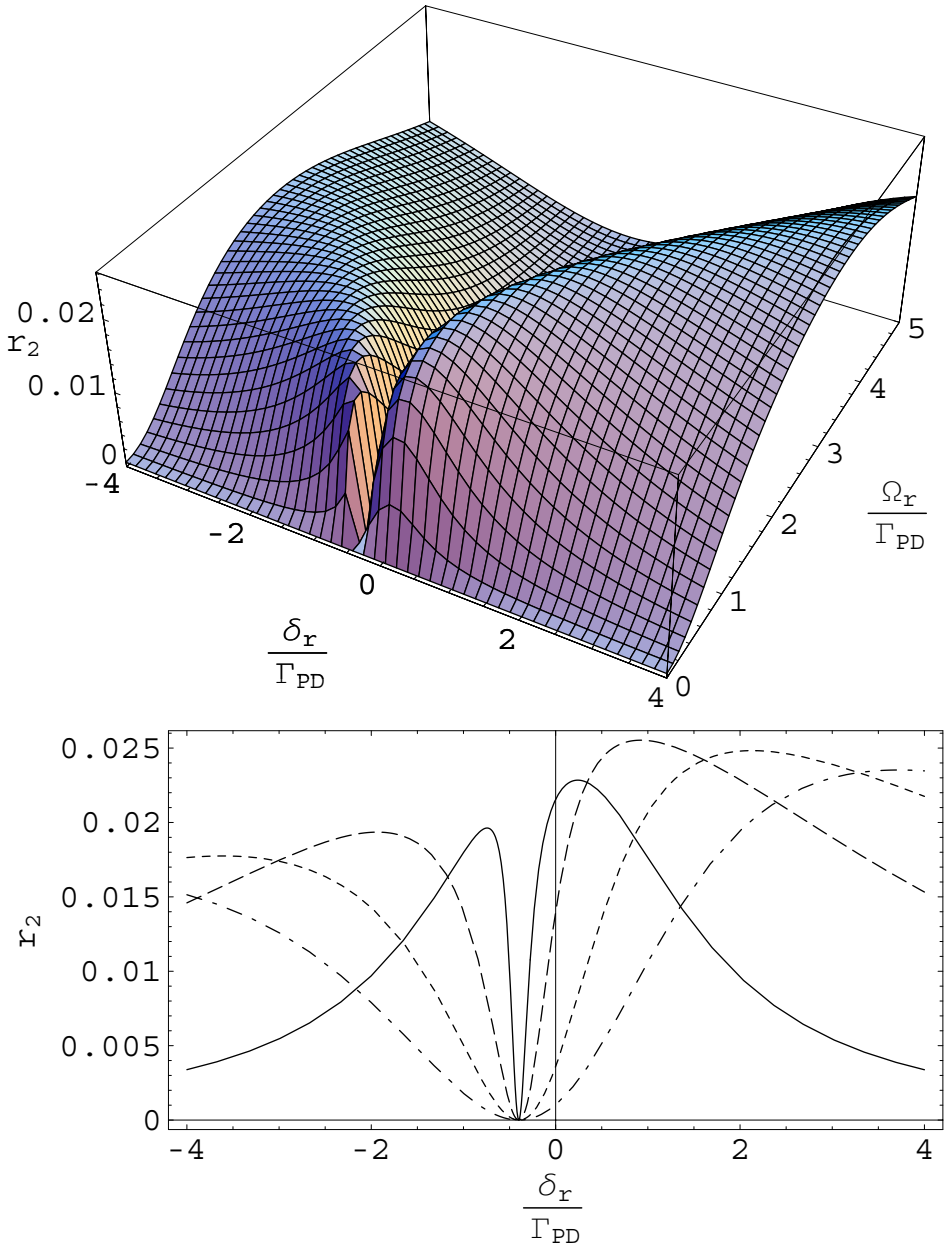

Abbildung 4.8: Fluoreszenz (r_2) als Funktion der Verstimmung δ_r und der Rabifrequenz Ω_r des roten Lasers. Oben: dreidimensionale Darstellung; unten: Schnitte bei $\Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$, $1.5\Gamma_{PD}$, $2.5\Gamma_{PD}$ und $3.5\Gamma_{PD}$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -0.4\Gamma_{PD}$, $\Omega_g = 0.5\Gamma_{PD}$.)

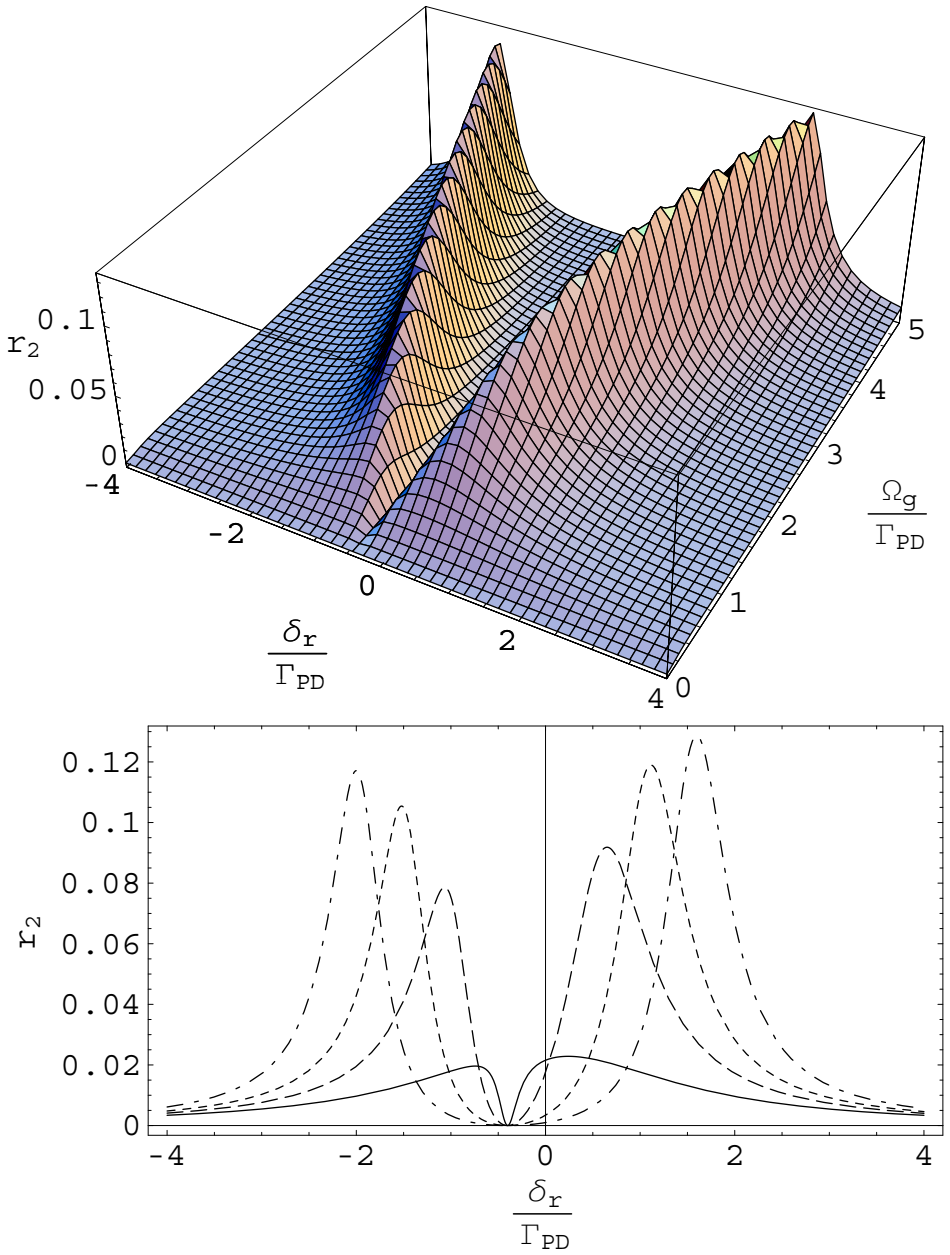

Abbildung 4.9: Fluoreszenz (r_2) als Funktion der Verstimmung δ_r des roten und der Rabifrequenz Ω_g des grünen Lasers. Oben: dreidimensionale Darstellung; unten: Schnitte bei $\Omega_g = 0.5\Gamma_{PD}, 1.5\Gamma_{PD}, 2.5\Gamma_{PD}$ und $3.5\Gamma_{PD}$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -0.4\Gamma_{PD}$, $\Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$.)

net man als Lichtverschiebung. Er kann auch mit dem dynamischen Starkeffekt erklärt werden.

Daß bei vergrößerter Intensität des roten Lasers die gesamte Linienform breiter wird, bei Erhöhung der grünen Intensität jedoch nur die Dunkelresonanz, liegt daran, daß das rote Licht als Probe zur Ausmessung der Fluoreszenzlinie genutzt wird. Ist das *durchgestimmte* Lichtfeld leistungsverbreitert, so wirkt sich das auf die gesamte Linienform aus. Die Verstimmung des grünen Laser wird jedoch festgehalten. Der grüne Laser sorgt dafür, daß ständig eine Besetzung im angeregten Niveau vorhanden ist, mit der der rote Laser wechselwirkt. Eine Erhöhung seiner Intensität führt zu einer größeren Besetzung ohne die Linienform bei Verstimmung des roten Lasers zu beeinflussen. Die Dunkelresonanz ist jedoch ein Zwei-Photon-Prozess. Sie wird bei Erhöhung der Intensität eines beliebigen Lasers breiter. Würde ein Spektrum mit konstanter roter Verstimmung aufgenommen werden, bei dem der grüne Laser durchgestimmt wird, so würden sich die Verhältnisse umkehren. Die Erhöhung der grünen Intensität würde die gesamte Linie verbreitern, die Erhöhung der roten Intensität nur die Dunkelresonanz.

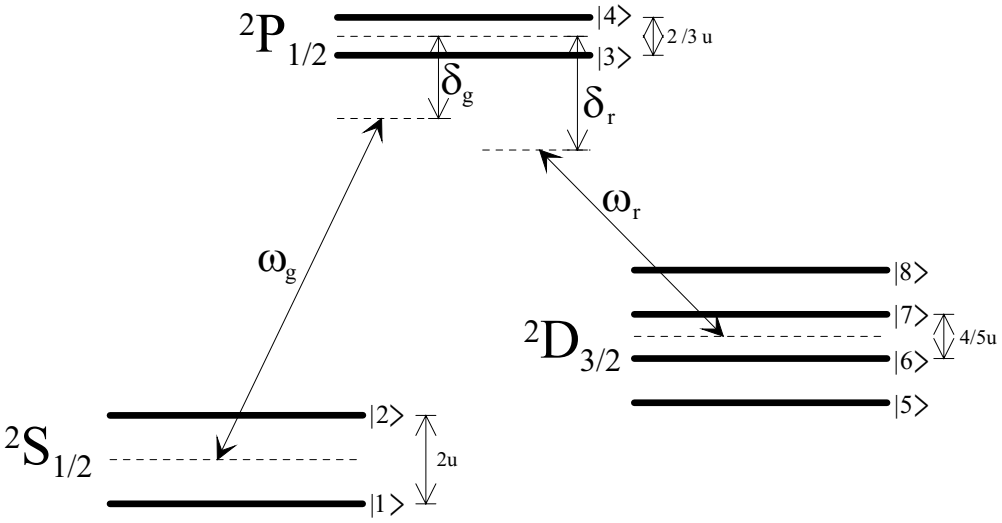

Abbildung 4.10: Das Acht-Niveau-System

4.2.5 Das Acht-Niveau-System

Das in dieser Arbeit untersuchte Ba^+-Ion kann durch ein Λ-förmiges Drei-Niveau-System, bestehend aus den Zuständen $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ und $5^2D_{3/2}$, beschrieben werden. Wird die Quantisierungsachse nicht durch ein äußeres Magnetfeld vorgegeben, so kann das Ion jedoch nicht kontinuierlich beobachtet werden, da optisches Pumpen in die Dunkelzustände[1] mit den magnetischen Quantenzahlen $m = \pm\frac{3}{2}$ auftritt. Das Magnetfeld führt zudem zur Raman-Aufspaltung der Energieniveaus. Das Ion läßt sich dann durch ein Acht-Niveau-System, wie es im Kapitel 3 beschrieben wurde, darstellen.

Abbildung 4.10 zeigt das Acht-Niveau-System mit den Bezeichnungen, die in diesem Abschnitt benutzt werden. Die Lichtfelder werden wie in Abschnitt 4.2.4 Gleichung 4.34 angenommen.

Die Zeeman-Aufspaltung ergibt sich zu:

$$\Delta\omega = \pm\frac{1}{2}g_j u \tag{4.38}$$

mit den Landéfaktoren g_j aus Gleichung (3.2) und $\hbar u = \mu_B B$. Damit ergeben sich die Energieeigenwerte $\hbar\omega_j$ der Zustände $|j\rangle$ zu:

$$\begin{aligned}
\omega_1 &= -u & \omega_2 &= u \\
\omega_3 &= \omega_g^0 - \tfrac{1}{3}u & \omega_4 &= \omega_g^0 + \tfrac{1}{3}u \\
\omega_5 &= \omega_g^0 - \omega_r^0 - \tfrac{6}{5}u & \omega_6 &= \omega_g^0 - \omega_r^0 - \tfrac{2}{5}u \\
\omega_7 &= \omega_g^0 - \omega_r^0 + \tfrac{2}{5}u & \omega_8 &= \omega_g^0 - \omega_r^0 + \tfrac{6}{5}u
\end{aligned} \tag{4.39}$$

[1] Unter einem Dunkelzustand wird ein quantenmechanischer Zustand verstanden, der nicht mit den Lichtfeldern wechselwirkt. Die im letzten Kapitel eingeführten Dunkelresonanzen sind also auch Dunkelzustände, die jedoch nur bei definierten Verstimmungen der Laser gegeneinander auftreten.

Der Hamiltonoperator dieses System lautet:

$$\hat{H} = \hbar \sum_{j=1}^{8} \omega_j \left|j\right\rangle \left\langle j\right| - \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E} \tag{4.40}$$

Die Rabifrequenzen Ω_{mn} werden für die $S \leftrightarrow P$-Übergänge durch $\hbar\Omega_{mn} = \mathbf{E}_g^0 \cdot \mathbf{d}_{mn}$ $(m = 1, 2; n = 3, 4)$ und für die $P \leftrightarrow D$-Übergänge durch $\hbar\Omega_{mn} = \mathbf{E}_r^0 \cdot \mathbf{d}_{mn}$ $(m = 3, 4; n = 5, 6, 7, 8)$ definiert. Dieser Näherung liegt wieder die Annahme zugrunde, daß die beiden Lichtfrequenzen jeweils in der Nähe der zugehörigen Resonanzfrequenzen liegen und gegenüber anderen Resonanzen stark verstimmt sind.

Im Drei-Niveau-System konnte jedes der beiden Lichtfelder nur mit *einem* dipolerlaubten Übergang wechselwirken. Es gab somit zwei unabhängige Rabifrequenzen, die jeweils proportional zu einem der beiden elektrischen Feldstärken waren. Im Acht-Niveau-System kann jedoch das grüne Lichtfeld mit vier und das rote Lichtfeld mit sechs verschiedenen Übergängen wechselwirken. Die Rabifrequenzen sind daher nicht mehr unabhängig. Sie hängen jeweils von einer der Feldstärken sowie von dem Winkel β ab, den die Polaristationsrichtung des linear Polarisierten Lichts mit der Quantisierungsrichtung einschließt.

Mit Hilfe des Wigner-Eckard Theorems [Cow 81][Bra 83] lassen sich die Abhängigkeiten der Rabifrequenzen von den magnetischen Quantenzahlen der Übergänge berechnen [Sie 91][Sch 91]. Es ergeben sich für die $S \leftrightarrow P$-Übergänge die Rabifrequenzen

$$\begin{array}{lcllcl} \Omega_{13} &=& -sat_g \Gamma_{PS} \cos\beta_g & \Omega_{14} &=& sat_g \Gamma_{PS} \sin\beta_g \\ \Omega_{24} &=& sat_g \Gamma_{PS} \cos\beta_g & \Omega_{23} &=& sat_g \Gamma_{PS} \sin\beta_g \end{array} \tag{4.41}$$

Dabei ist sat_g proportional zur Feldstärke des grünen Lichtes und Γ_{PS} ist die Rate, mit der das Ion aus einem beliebigen Unterzustand des P-Niveaus in einen beliebigen Unterzustand des S-Niveaus zerfällt und beträgt nach [Gal 67] (Tabelle 3.1) 15 MHz. β_g ist der Winkel zwischen der Polarisationsachse des grünen Lichtes und der Quantisierungsachse.

Die $P \leftrightarrow D$-Übergänge haben die Rabifrequenzen:

$$\begin{array}{lcllcl} \Omega_{35} &=& \frac{\sqrt{3}}{2} sat_r \Gamma_{PD} \sin\beta_r & \Omega_{46} &=& \frac{1}{2} sat_r \Gamma_{PD} \sin\beta_r \\ \Omega_{36} &=& sat_r \Gamma_{PD} \cos\beta_r & \Omega_{47} &=& sat_r \Gamma_{PD} \cos\beta_r \\ \Omega_{37} &=& -\frac{1}{2} sat_r \Gamma_{PD} \sin\beta_r & \Omega_{48} &=& -\frac{\sqrt{3}}{2} sat_r \Gamma_{PD} \sin\beta_r \end{array} \tag{4.42}$$

sat_r ist proportional zur Feldstärke des roten Lichtfeldes, Γ_{PD} ist die Rate, mit der ein Ion aus dem P-Niveau in das D-Niveau zerfällt und beträgt 5.3 MHz. β_r ist der Winkel zwischen der Polarisationsachse des roten Lichtes und der Quantisierungsachse.

Die Übergänge $|3\rangle \rightarrow |8\rangle$ und $|4\rangle \rightarrow |5\rangle$ sind dipolverboten, sie werden nicht angeregt: $\Omega_{38} = \Omega_{45} = 0$.

Die Parameter sat_g und sat_r werden als Sättigungsparameter bezeichnet und sind einheitenlose Maße für die Amplitude der elektrischen Feldstärke am Ort des Ions.

Zu beachten ist hier die Winkelabhängigkeit der Rabifrequenzen. Hiernach muß $\beta_r \neq 0$ sein um optisches Pumpen in die $m = \pm 3/2$ Zustände zu verhindern. Der einfachste Spezialfall ergibt sich für $\beta_r = \beta_g = 90^o$, in dem nur noch die in Abbildung 3.3 gezeigten Übergänge angeregt werden.

Spontanzerfälle

Γ_{PS} und Γ_{PD} sind die Zerfallsraten in beliebige Unterzustände des Zielniveaus, die Übergangswahrscheinlichkeiten in konkrete Unterniveaus werden mit Hilfe von Wigner-3-j-Symbolen [Cow 81] berechnet:

$$\Gamma_{m,m'} = (2J'+1)\Gamma_N \begin{pmatrix} J & 1 & J' \\ -m & q & m' \end{pmatrix}^2 \tag{4.43}$$

mit $N = PS, PD$, $J' = \frac{1}{2}$ und $J = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}$.

Die Zerfallsraten ergeben sich im Einzelnen zu:

$$\begin{array}{lllll} \Gamma_{23} & = & \Gamma_{14} & = & \frac{2}{3}\Gamma_{PS} \\ \Gamma_{13} & = & \Gamma_{24} & = & \frac{1}{3}\Gamma_{PS} \end{array} \qquad \begin{array}{lllll} \Gamma_{37} & = & \Gamma_{46} & = & \frac{1}{6}\Gamma_{PD} \\ \Gamma_{36} & = & \Gamma_{47} & = & \frac{1}{3}\Gamma_{PD} \\ \Gamma_{35} & = & \Gamma_{48} & = & \frac{1}{2}\Gamma_{PD} \end{array} \tag{4.44}$$

Die Zerfallsrate einer Kohärenz ist das arithmetische Mittel aus den Raten mit denen die beiden Besetzungen zerfallen, zwischen denen die Kohärenz besteht. Da die S- und die D-Zustände als stabil angenommen werden, zerfallen alle Kohärenzen zwischen einem der beiden P-Zustände und einem S- oder D-Zustand mit der Rate $\gamma_{mn} = \frac{1}{2}(\Gamma_{PS} + \Gamma_{PD})$ $(m = 3, 4; n = 1, 2, 5, 6, 7, 8)$. Die Kohärenz zwischen diesen beiden Zuständen zerfällt mit $\gamma_{34} = \Gamma_{PS} + \Gamma_{PD}$.

Zerfall von Kohärenzen in Kohärenzen

Die Kohärenz zwischen den Zeeman-Unterzuständen des P-Niveaus $|3\rangle$ und $|4\rangle$ kann aufgrund der kleinen Unterschiede in den betreffenden Frequenzen unter Anregung einer anderen Zeeman-Kohärenz zerfallen. In diesen Kohärenzen ergeben sich also zusätzliche Gewinnterme [Sie 91]:

$$\begin{array}{lllll} \dot{\rho}_{12} & = & -\frac{1}{3}\Gamma_{PS}\rho_{34} & \qquad \dot{\rho}_{56} & = & \frac{1}{2\sqrt{3}}\Gamma_{PD}\rho_{34} \\ \dot{\rho}_{67} & = & \frac{1}{3}\Gamma_{PD}\rho_{34} & \qquad \dot{\rho}_{78} & = & \frac{1}{2\sqrt{3}}\Gamma_{PD}\rho_{34} \end{array} \tag{4.45}$$

Blochvektor und Drehwellennäherung

Der 63-dimensionale Blochvektor der die (8×8)-Dichtematrix ersetzt wird analog zu Gleichung 4.35 definiert:

$$\begin{array}{lcllcl} r_1 & = & \rho_{11} & r_{12} & = & Re(\rho_{14}) \\ r_2 & = & \rho_{22} & r_{13} & = & Im(\rho_{14}) \\ & \vdots & & & \vdots & \\ r_7 & = & \rho_{77} & r_{59} & = & Im(\rho_{67}) \\ r_8 & = & Re(\rho_{12}) & r_{60} & = & Re(\rho_{68}) \\ r_9 & = & Im(\rho_{12}) & r_{61} & = & Im(\rho_{68}) \\ r_{10} & = & Re(\rho_{13}) & r_{62} & = & Re(\rho_{78}) \\ r_{11} & = & Im(\rho_{13}) & r_{63} & = & Im(\rho_{78}) \end{array} \tag{4.46}$$

Analog zu Gleichung 4.36 werden folgende Substitutionen durchgeführt:

- Die Komponenten des Blochvektors, die zu $S \leftrightarrow P$-Übergängen gehören, werden wie r_3 und r_4 in Gleichung 4.36 transformiert.
- Die zu $P \leftrightarrow D$-Übergängen gehörenden Komponenten werden wie r_5 und r_6 in Gleichung 4.36 transformiert.
- Die zu den dipolverbotenen $S \leftrightarrow D$-Übergängen gehörenden Komponenten werden wie r_7 und r_8 in Gleichung 4.36 transformiert. Diese Kohärenzen schwingen also mit der Differenzfrequenz der beiden Lichtfelder.

Stationäre Lösung

Nun erhält man durch Nullsetzen der Ableitung in der Bewegungsgleichung

$$\dot{\mathbf{r}} = A \cdot \mathbf{r} + \mathbf{c} \tag{4.47}$$

ein lineares Gleichungssystem für die stationären Lösungen, mit der 63×63-Matrix A und dem 63-dimensionalen Vektor $\mathbf{c}$.

Abbildung 4.11 zeigt die stationäre Besetzung des $6^2P_{1/2}$-Zustands als Funktion der Verstimmung δ_r des roten Lasers, wobei alle anderen Parameter als konstant angenommen wurden. Die Besetzung dieses Zustands ist proportional zur beobachteten Fluoreszenz des Ions. Man erkennt vier Dunkelresonanzen, die jeweils aus einer kohärenten Überlagerung je eines S- und eines D-Niveaus bestehen. Abbildung 4.12 verdeutlicht das Zustandekommen dieser Dunkelresonanzen: Verstimmt man das rote Licht von kleinen zu großen Frequenzen unter Beibehaltung der grünen Verstimmung, so werden nacheinander die Zwei-Photon-Übergänge (Raman-Übergänge) $|1\rangle \rightarrow |8\rangle$, $|1\rangle \rightarrow |6\rangle$, $|2\rangle \rightarrow |7\rangle$ und $|2\rangle \rightarrow |5\rangle$ resonant. Es kommt jeweils zu einer kohärenten Überlagerung der betreffenden Zustände, die nicht mit den Lichtfeldern wechselwirkt. Aus Gleichung

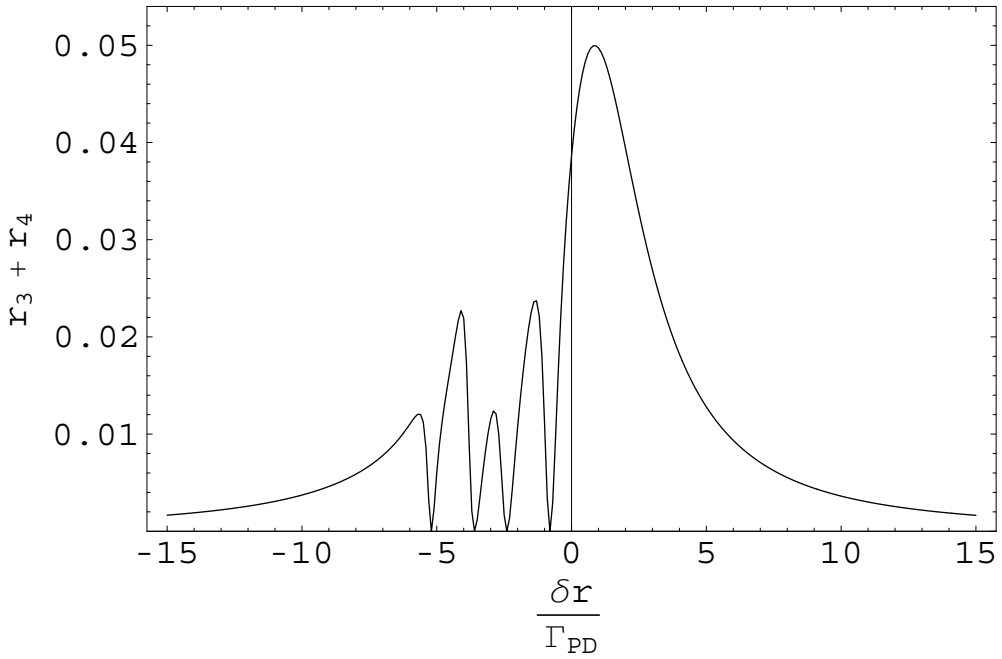

Abbildung 4.11: Stationäre Lösung der Blochgleichungen für das Acht-Niveau-System. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -3\Gamma_{PD}$, $sat_g = 1$, $sat_r = 1$, $u = \Gamma_{PD}$, $\beta = 90^o$.)

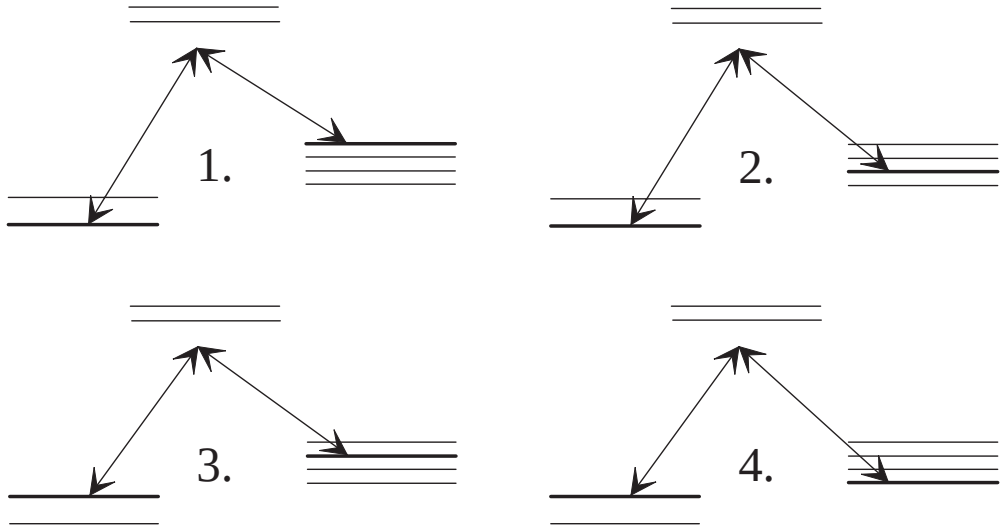

Abbildung 4.12: Zustandekommen der vier Dunkelresonanzen im Acht-Niveau-system. Das System kann bei senkrecht zum Magnetfeld polarisierten Lichtfeldern durch vier Drei-Niveau-Systeme erklärt werden.

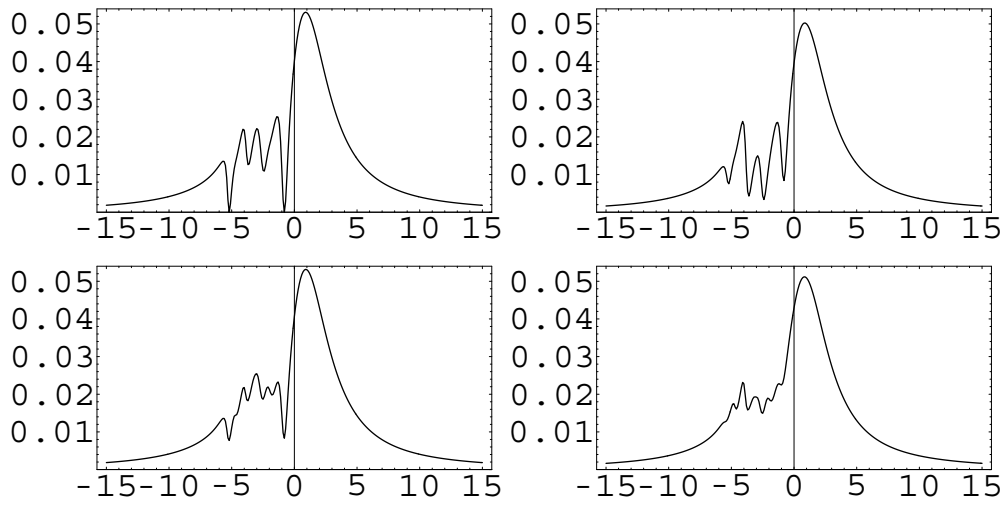

Abbildung 4.13: Einfluß der Winkel β_g und β_r auf die Dunkelresonanzen: Oben links: $\beta_g = 90^o$, $\beta_r = 75^o$; oben rechts: $\beta_g = 75^o$, $\beta_r = 90^o$; unten links: $\beta_g = 75^o$, $\beta_r = 75^o$; unten rechts: $\beta_g = 50^o$, $\beta_r = 90^o$. (Bedeutung der Achsen wie in Abb. 4.11.)

(4.39) lassen sich die Verstimmungen bestimmen, für die Dunkelresonanzen zu erwarten sind. Die in Abbildung 4.12 gezeigten Übergänge werden resonant bei: $\delta_r = \delta_g - \frac{11}{5}u$, $\delta_r = \delta_g - \frac{3}{5}u$, $\delta_r = \delta_g + \frac{3}{5}u$ und $\delta_r = \delta_g + \frac{11}{5}u$.

Stehen nicht beide Polarisationsrichtungen senkrecht zur Quantisierungsachse, so sind zusätzlich zu den in Abbildung 4.12 gezeigten Übergängen π-polarisierte Übergänge möglich. In diesem Fall ist das vereinfachte Bild von vier Drei-Niveau-Systemen nicht mehr gerechtfertigt. Abbildung 4.13 zeigt vier stationäre Lösungen der optischen Blochgleichungen mit von der Senkrechten abweichenden Polarisationen. Ist nur die rote Polarisationsrichtung verkippt (Abb. 4.13 oben links), so bleiben die erste und die vierte Dunkelresonanz erhalten, da die $m_j = \pm 3/2$ Zustände nicht an die π-polarisierte Komponente des roten Lichtes koppeln. Die Verkippung der Polarisation des grünen Lichtes verringert jedoch den Kontrast aller Dunkelresonanzen (Abb. 4.13 rechte Seite). Um vollständige Dunkelresonanzen beobachten zu können, ist es also wichtig, die Polatisation genau zu kontrollieren und den Winkel zwischen Polarisations- und Quantisierungsachse auf 90^o einzustellen.

Der Einfluß der Lichtintensität auf die Linienform ist in Abbildung 4.14 dargestellt. Mit steigender Intensität der Laser werden die Dunkelresonanzen breiter und überlappen sich zunehmend. Außerdem wird die gesamte Resonanz breiter. Dieser Effekt ist als Leistungsverbreiterung bekannt. Auch im Acht-Niveau-System führt die Erhöhung der roten Intensität zur Verbreiterung der gesamten Struktur, die Erhöhung der grünen Intensität beeinflußt dagegen nur die Breite der Dunkelresonanzen.

Abbildung 4.15 zeigt die Entwicklung der Besetzung der fluoreszierenden Zustände $|3\rangle$ und $|4\rangle$, wenn sich das Ion zur Zeit $t = 0$ im unteren Grundzustand $|1\rangle$

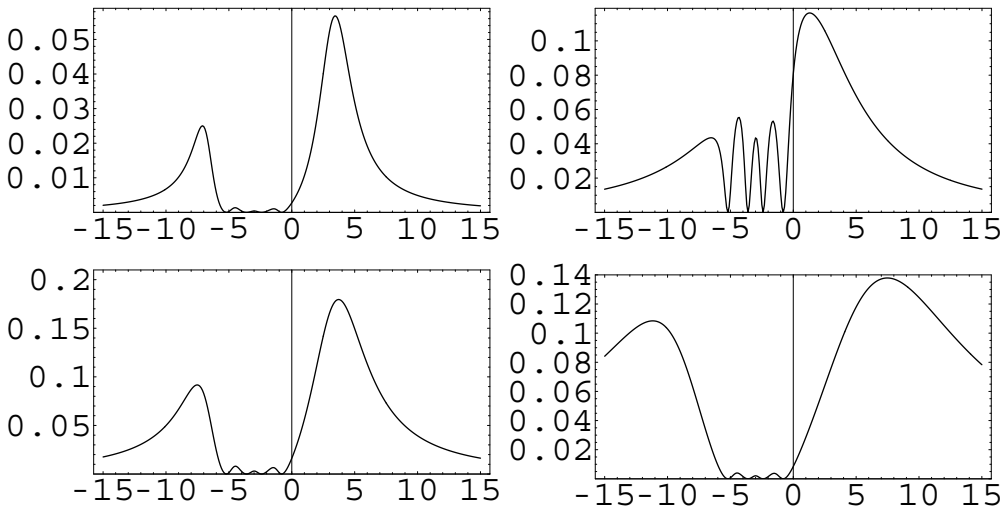

Abbildung 4.14: Einfluß der Lichtintensitäten sat_g und sat_r auf die Dunkelresonanzen: Oben links: $\mathrm{sat}_g = 3.0$, $\mathrm{sat}_r = 1.0$; oben rechts: $\mathrm{sat}_g = 1.0$, $\mathrm{sat}_r = 3.0$; unten links: $\mathrm{sat}_g = 3.0$, $\mathrm{sat}_r = 3.0$; unten rechts: $\mathrm{sat}_g = 5.0$, $\mathrm{sat}_r = 7.5$. (Bedeutung der Achsen wie in Abb. 4.11.)

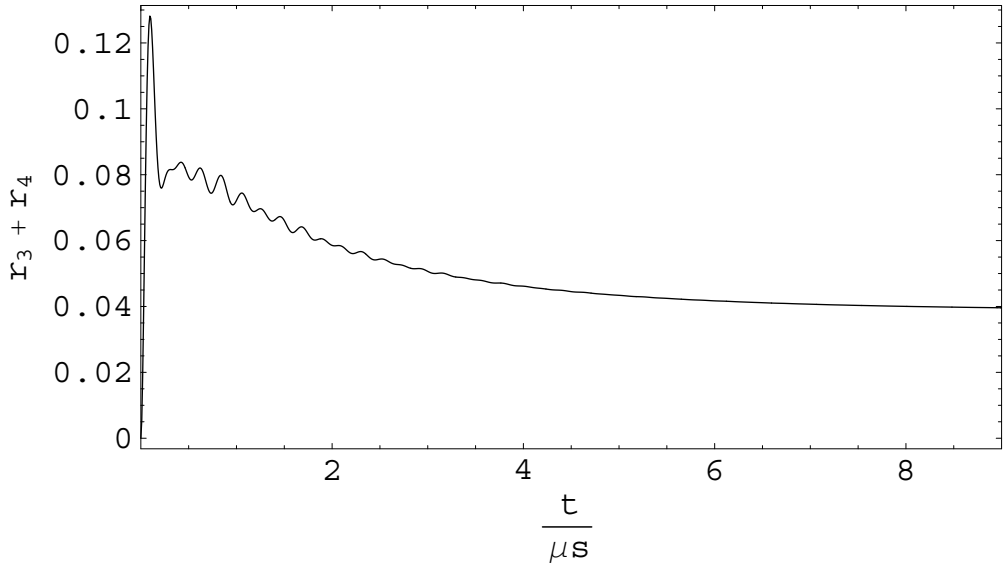

Abbildung 4.15: Zeitliche Entwicklung der Besetzung des angeregten Zustands im Acht-Niveau-System. Zur Zeit $t = 0$ befindet sich das System im unteren Grundzustand $|1\rangle$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -3\Gamma_{PD}$, $\delta_r = 0$, $sat_g = 1$, $sat_r = 1$, $u = \Gamma_{PD}$, $\beta = 90^o$.)

befindet. Zur Umrechnung der einheitenlosen Zeitachse in μs wurde hier nach Ausführung der Rechnung $\Gamma_{PD} = 5.3$ MHz eingesetzt. Der stationäre Zustand stellt sich innerhalb einiger μs ein.

4.2.6 Modulation des Lichtfeldes

Um das Verhalten des Ions unter dem Einfluß frequenzmodulierten Lichts zu studieren, wird nun ein Lichtfeld der Form

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_g + \mathbf{E}_r \\ \mathbf{E}_g &= \tfrac{1}{2}\mathbf{e}_g E_g^0 e^{-i(\omega_g t + M_g \sin \Omega t)} + c.c. \\ \mathbf{E}_r &= \tfrac{1}{2}\mathbf{e}_r E_r^0 e^{i(\omega_r t + M_r \sin \Omega t)} + c.c. \end{aligned} \tag{4.48}$$

angenommen. Dieses Lichtfeld unterscheidet sich vom bisherigen Feld (4.34) dadurch, daß der grüne Anteil E_g mit der Frequenz Ω und der Amplitude M_g und der rote Anteil E_r mit der Amplitude M_r und der gleichen Frequenz Ω phasenmoduliert ist. Für die Frequenz ω_g des grünen Lasers erhält man nun eine Funktion der Zeit:

$$\omega_g \to \omega_g + M_g \Omega \cos(\Omega t) \tag{4.49}$$

Ebenso erhält man für den roten Laser die Frequenz:

$$\omega_g \to \omega_r + M_r \Omega \cos(\Omega t) \tag{4.50}$$

In der Praxis wird nur einer der Laser moduliert werden, so daß einer der Modulationsindizes M_g oder M_r verschwindet.

Wird diese Substitution in der Matrix A aus Gleichung (4.47) durchgeführt, so ergibt sich die neue Bewegungsgleichung [Sie 91]

$$\dot{\mathbf{r}} = (A + 2\cos(\Omega t)B) \cdot \mathbf{r} + \mathbf{c} \tag{4.51}$$

wobei A und B zeitlich konstante, reelle 63×63-Matrizen sind und $\mathbf{c}$ ein konstanter 63-komponentiger Vektor ist.

Mit dieser Bewegungsgleichung wird sich kein stationärer Zustand mehr einstellen. Statt dessen wird der Blochvektor nach dem Abklingen aller Einschwingvorgänge eine periodische Bewegung mit der Periode Ω^{-1} durchführen. Abbildung 4.16 zeigt die zeitliche Entwicklung mit den gleichen Parametern wie in Abbildung 4.15 mit einer zusätzlichen Phasenmodulation des grünen Laserfeldes. Die Bewegung des Blochvektors $\mathbf{r}$ kann also in eine Fourierreihe entwickelt werden:

$$\mathbf{r}(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \mathbf{r}_n e^{-in\Omega t} \tag{4.52}$$

Einsetzen dieser Reihenentwicklung in die Bewegungsgleichung führt auf das Gleichungssystem

$$(A + in\Omega) \cdot \mathbf{r}_n + B \cdot (\mathbf{r}_{n+1} + \mathbf{r}_{n-1}) + \mathbf{c} \cdot \delta_{n,0} = 0 \tag{4.53}$$

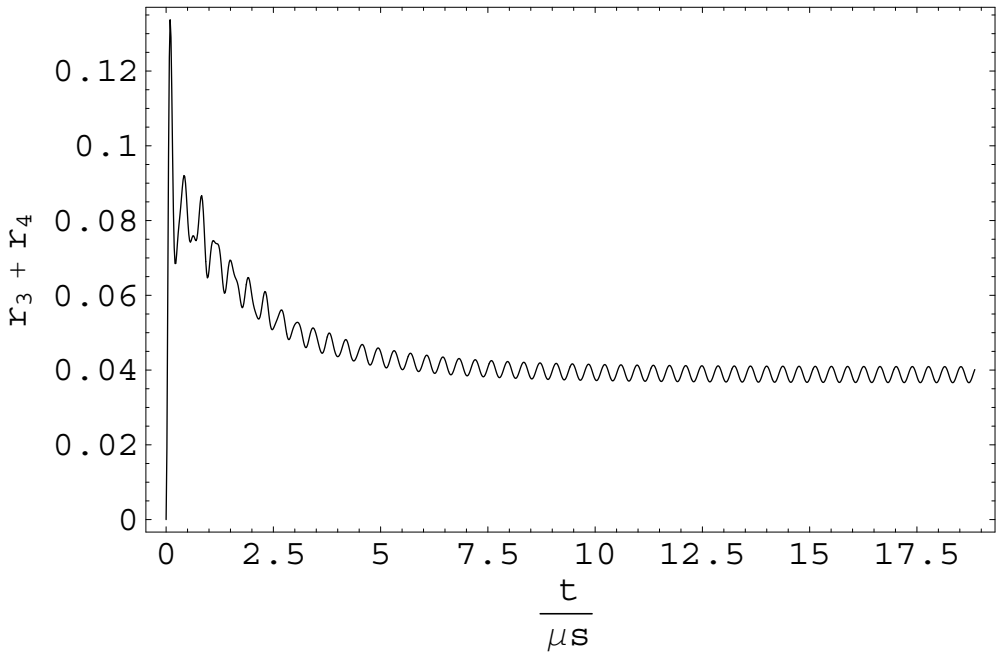

Abbildung 4.16: Zeitliche Entwicklung der Besetzung des angeregten Zustands im Acht-Niveau-System mit einer Phasenmodulation des grünen Lasers von 2.65 MHz. Zur Zeit $t = 0$ befindet sich das System im unteren Grundzustand $|1\rangle$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -3\Gamma_{PD}$, $\delta_r = 0$, $sat_g = 1$, $sat_r = 1$, $u = \Gamma_{PD}$, $\beta = 90^o$.)

Definiert man nun die Matrizen S_n^+ und S_n^-, so daß gilt:

$$\mathbf{r}_{n+1} = S_n^+ \cdot \mathbf{r}_n \quad \text{für} \quad n \geq 0 \qquad\qquad \mathbf{r}_{n-1} = S_n^- \cdot \mathbf{r}_n \quad \text{für} \quad n \leq 0 \tag{4.54}$$

so folgt für $n = 0$

$$(A + 2B \cdot Re S_0^+) \cdot \mathbf{r}_0 = -C \tag{4.55}$$

Mit Hilfe dieser Gleichung kann man nun $\mathbf{r}_0$ bestimmen, wenn S_0^+ bekannt ist. Weiterhin kann man alle $\mathbf{r}_n$ über die übrigen S_n mit Hilfe der Definition (4.54) bestimmen. Da $\mathbf{r}$ ein reeller Vektor ist, gilt $\mathbf{r}_n = \mathbf{r}^*_{-n}$, es genügt also, die Matrizen S_n^+ zu kennen. Diese lassen sich iterativ über die Gleichung [Sie 91, Gleichung 35]

$$S_{n-1}^+ = -(A + in\Omega + B \cdot S_n^+)^{-1} \cdot B \tag{4.56}$$

bestimmen.

Die Matrizen S_n^+ können also iterativ durch einen Matrixkettenbruch berechnet werden. Hierzu wird eine der S-Matrizen mit genügend hohem $n = N$ gleich Null gesetzt, so daß nach Gleichung (4.54) gilt:

$$r_n = 0 \quad \text{für} \quad n \geq N \tag{4.57}$$

Hierbei muß die Anzahl der durchgeführten Iterationen mindestens in der Größenordnung des Modulationsindex sein.

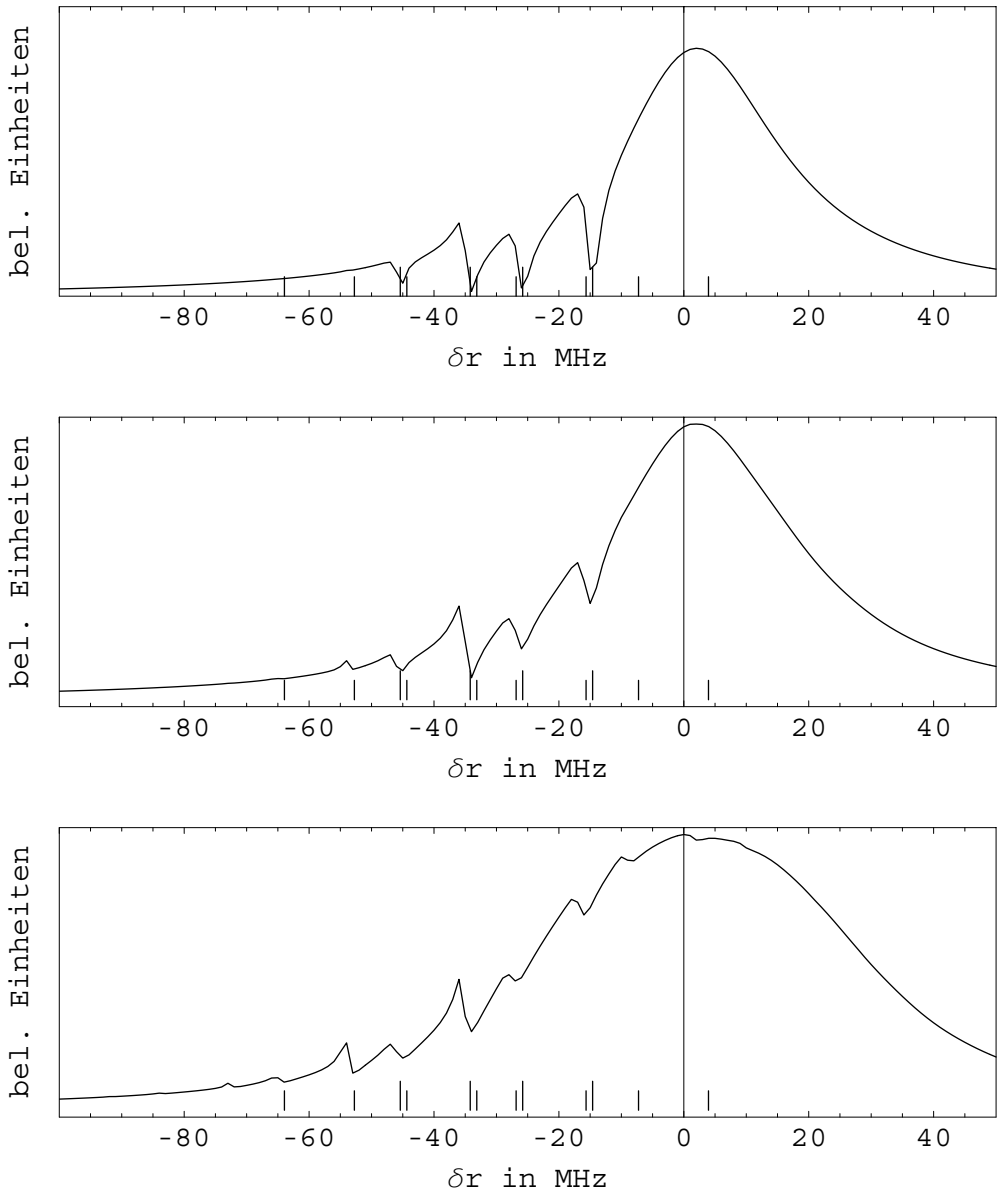

Abbildung 4.17: Wirkung einer Phasenmodulation des roten Lichtfeldes mit der Frequenz 18.55 Mhz auf das Fluoreszenzsignal. Oben: $M_r = 0.1$; Mitte: $M_r = 0.5$; Unten: $M_r = 1.15$.

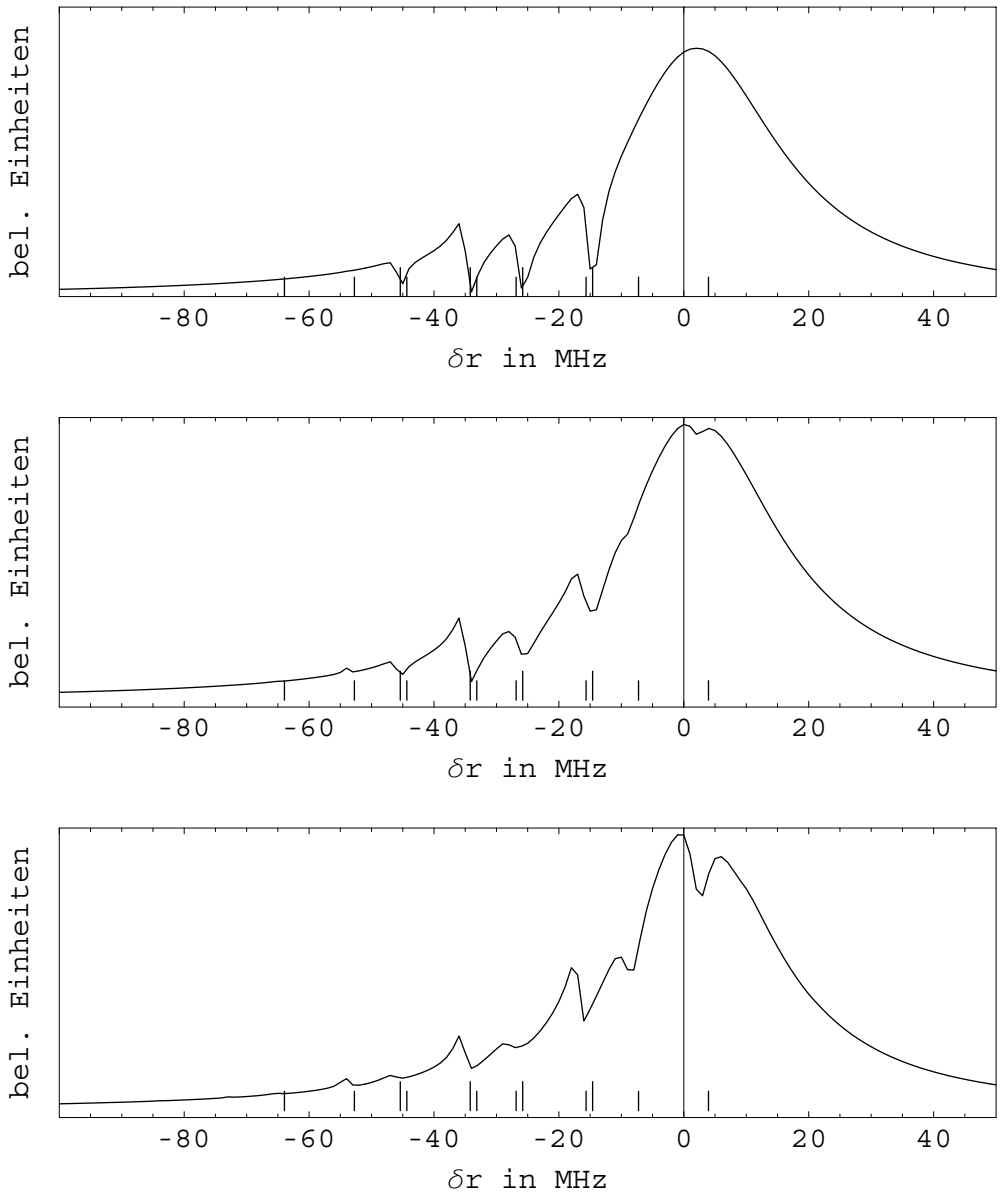

Abbildung 4.18: Wirkung einer Phasenmodulation des grünen Lichtfeldes mit der Frequenz 18.55 Mhz auf das Fluoreszenzsignal. Oben: $M_g = 0.1$; Mitte: $M_g = 0.5$; Unten: $M_g = 1.15$.

Die Abbildungen 4.17 und 4.18 zeigen die Auswirkung von phasenmodulierten Lichtfeldern auf das Fluoreszenzsignal. In diesen Rechnungen wurde die Verstimmung des grünen Lasers bei -30 Mhz gewählt. Die Verstimmungen des roten Lasers δ_r für die Dunkelresonanzen erwartet werden sind mit vier längeren Strichen am unteren Rand der Grafiken markiert. Mit steigendem Modulationsindex M_r bzw. M_g verlieren die Dunkelresonanzen an Tiefe. Dafür entstehen neue Strukturen, die gegen die Dunkelresonanzen um Vielfache der Modulationsfrequenz verstimmt sind. Diese Strukturen entstehen dadurch, daß die Seitenbänder des modulierten Lichtfeldes zusammen mit dem unmodulierten Lichtfeld Zwei-Photon-Resonanzen anregen. Die spektralen Positionen der Strukturen, die durch die ersten Seitenbänder verursacht werden, sind in den Grafiken durch kürzere Striche markiert.

Die Modulation des roten Lasers führt zur Verbreiterung der Linienform, bei Modulation des grünen Lichts bleibt die Breite dagegen konstant. Dieser Effekt kann — wie schon die Verbreiterung durch Erhöhung der Intensität — dadurch erklärt werden, daß das rote Licht als Probe über die Resonanz verstimmt wird, wärend die Verstimmung des Grünen Lichts konstant gehalten wird. Bei Modulation des roten Lichtes werden alo eine Trägerfrequenz, sowie die dazugehörigen Seitenbänder über die Resonanz verstimmt. Jede dieser Frequenzen erzeugt eine lorentzförmige Fluoreszenzlinie, deren Intensität von der Intensität des verursachendes Bandes abhängt. Die Überlagerung der Lorentzprofile dieser Bänder erzeugt eine breitere Verteilung, deren Schwerpunkt sich bei der Frequenz befindet, bei der der Träger resonant ist.

4.3 FM-Spektroskopie am Barium-Ion

Bei der Frequenzmodulationsspektroskopie (FM-Spektroskopie) wird das Lichtfeld phasenmoduliert, auf dem auch das Signal gemessen werden soll. Da die verwendete Photodiode im roten Spektralbereich empfindlicher reagiert, als im grünen, ist es zweckmäßig, den roten Laser für die Modulation und den Nachweis zu verwenden.

In Abschnitt 2.1 wurden Absorption $\delta(\omega)$ und Dispersion $\phi(\omega)$ als Lorentzfunktionen angenommen und in die Gleichungen (2.10) und (2.11) eingesetzt um das Frequenzmodulationssignal für ein Zwei-Niveau-System zu berechnen. Mit den optischen Blochgleichungen ist es nun möglich, die beiden Funktionen $\delta(\omega)$ und $\phi(\omega)$ direkt zu berechnen.

Aus der Elektrodynamik ist bekannt, daß ein oszillierender Dipol die Abstrahlung eines elektrischen Feldes zur Folge hat. Das transmittierte elektrische Feld setzt sich also zusammen aus dem ursprünglichen Feld und einem Polarisationsfeld das diesem überlagert ist:

$$E_f = E_i + E_{\text{pol}} \tag{4.58}$$

Der Zeitnullpunkt wurde so gewählt, daß das eingestrahlte Lichtfeld E_i einer reinen Cosinuswelle entspricht. Das durch die Polarisation des Atoms verursache Feld kann zerlegt werden in einen Cosinus- und einen Sinusanteil. Der Erstere ist proportional zur Absorption $\delta(\omega)$, der Letztere zur Dispersion $\phi(\omega)$:

$$E_f = E_0 \cos(\omega t) - E_0 \delta(\omega) \cos(\omega t) - E_0 \phi(\omega) \sin(\omega t) \tag{4.59}$$

Dabei eilt die Polarisation dem abgestrahltem Feld E_{pol} um 90^o voraus. Die Polarisation ist proportional zum Erwartungswert der Dipolmatrixelemente und damit zum Realteil[2] der Nichtdiagonalelemente der Dichtematrix. Den Beitrag eines dipolerlaubten Übergangs zwischen den Zuständen $|i\rangle$ und $|j\rangle$ erhält man durch einen Koeffizientenvergleich in der folgenden Gleichung.

$$-\delta_{ij}(\omega) \sin(\omega t) + \phi_{ij}(\omega) \cos(\omega t) \propto Re(\rho_{ij}(\omega)) \tag{4.60}$$

wobei δ_{ij} die Absorption, die durch den Übergang $|i\rangle \leftrightarrow |j\rangle$ verursacht wird, und ϕ_{ij} die entsprechende Dispersion bezeichnet.

Da die einzelnen Übergänge Eigenschwingungen des atomaren Systems darstellen, kann man die Schwingungen getrennt voneinander betrachten. Dispersion δ_{ij} und Absorption ϕ_{ij} sind aus Gleichung 4.60 für folgende Werte von i und j auszurechnen: $\{ij\} = \{35\}, \{36\}, \{37\}, \{46\}, \{47\}\text{und}\{48\}$. Um den ganzen Einfluß des Ions auf das Lichtfeld zu erhalten, sind diese Werte nun unter

[2] Daß es sich hierbei gerade um den Realteil der Nichtdiagonalelemente handelt, liegt an der in dieser Arbeit gewählten Ausrichtung des Koordinatensystems. Die Richtung, in die beide Lichtfelder propagieren ist als y-Achse definiert. Die Realteile geben gerade den Anteil der dielektrischen Polarisation an, der senkrecht auf der y-Achse liegt.

Berücksichtigung der relativen Wechselwirkungsstärken, wie sie schon in Abschnitt 4.2.5 Gleichung (4.42) verwendet wurden, zu addieren. Sie ergeben sich ebenfalls aus dem Wigner-Eckard Theorem. Man erhält also:

$$\begin{aligned}
\delta(\omega) &\propto \tfrac{1}{2}\left(\sqrt{3}(\delta_{35}(\omega)-\delta_{48}(\omega))+(\delta_{46}(\omega)-\delta_{37}(\omega))\right)\sin(\beta_r) \\
&- (\delta_{36}(\omega)+\delta_{47}(\omega))\cos(\beta_r) \\
\phi(\omega) &\propto \tfrac{1}{2}\left(\sqrt{3}(\phi_{35}(\omega)-\phi_{48}(\omega))+(\phi_{46}(\omega)-\phi_{37}(\omega))\right)\sin(\beta_r) \\
&+ (\phi_{36}(\omega)+\phi_{47}(\omega))\cos(\beta_r)
\end{aligned} \tag{4.61}$$

Es sind jetzt also noch die Dichtematrixelemente als Funktionen der Frequenz ω zu errechnen. Hierzu werden zunächst die Substitutionen aus den Gleichungen (4.36) und (4.49):

$$\rho_{ij} \to \rho_{ij}\exp\left(-i\omega_r t - iM\sin(\Omega t)\right) \tag{4.62}$$

zurückgenommen. Dadurch erhält man wieder die wirkliche Zeitabhängigkeit der Nichtdiagonalelemente. Jedes ρ_{ij} setzt sich nach der Definition (4.46) aus zwei Komponenten des Blochvektors zusammen. Bezeichnet man die beiden Komponenten mit r^R und r^I, so daß gilt

$$\rho_{ij} = r^R + ir^I \tag{4.63}$$

und setzt man für jede Komponente von $\mathbf{r}$ die Reihenentwicklung nach Gleichung (4.52) ein, so ergibt sich durch Einsetzen in (4.60) und anschließenden Koeffizientenvergleich:

$$\begin{aligned}
\phi_{ij}(\omega_r) &= J_0 r_0^R + 2J_1 Im(r_1^I) + 2J_2 Re(r_2^R) \\
\delta_{ij}(\omega_r) &= -J_0 r_0^I + 2J_1 Im(r_1^R) - 2J_2 Re(r_2^I) \\
\phi_{ij}(\omega_r+\Omega) &= J_0(Re(r_1^R)+Im(r_1^I)) + J_1(Re(r_2^R)+Im(r_2^I)-r_0^R) \\
&\quad +J_2(Re(r_1^R)-Im(r_1^I)) \\
\delta_{ij}(\omega_r+\Omega) &= -J_0(Re(r_1^I)-Im(r_1^R)) - J_1(Re(r_2^I)-Im(r_2^R)-r_0^I) \\
&\quad -J_2(Re(r_1^I)+Im(r_1^R)) \\
\phi_{ij}(\omega_r-\Omega) &= J_0(Re(r_1^R)-Im(r_1^I)) + J_1(r_0^R-Re(r_2^R)+Im(r_2^I)) \\
&\quad +J_2(Re(r_1^R)+Im(r_1^I)) \\
\delta_{ij}(\omega_r-\Omega) &= -J_0(Re(r_1^I)+Im(r_1^R)) - J_1(r_0^I-Re(r_2^I)-Im(r_2^R)) \\
&\quad -J_2(Re(r_1^I)-Im(r_1^R))
\end{aligned} \tag{4.64}$$

wobei J_k die Besselfunktionen $J_k(M)$ sind. Terme in denen k größer als zwei ist, sowie höhere Fourierkomponenten von $\mathbf{r}$ wurden vernachlässigt.

Die Gleichungen (4.64) ergeben für jeden Übergang Absorption und Dispersion in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Eingesetzt in die Gleichungen (4.61) erhält man nun die vollständige Dispersion und Absorbtion in Abhängigkeit von der Wellenlänge ω. Dieses Ergebnis wird in die Gleichungen (2.10)

$$\begin{aligned}
I_{\Omega I}(t) = -\tfrac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2 \quad & [J_0(M)J_1(M)(2\phi_0-\phi_{-1}-\phi_1) \\
& +J_1(M)J_2(M)(\phi_1+\phi_{-1}-\phi_2-\phi_{-2})]\sin\Omega t
\end{aligned} \tag{4.65}$$

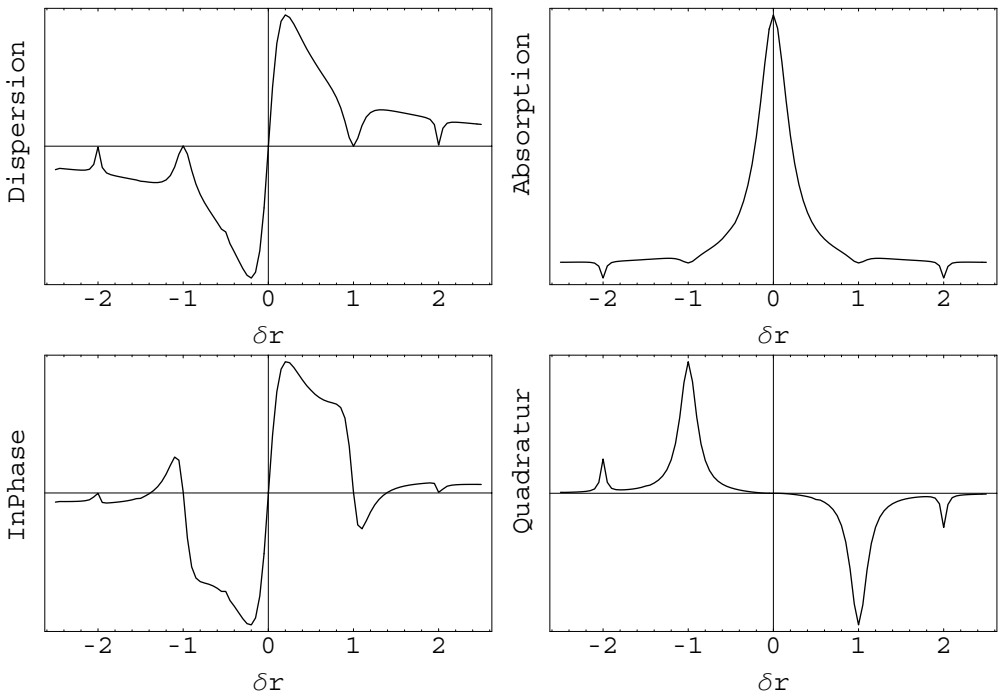

Abbildung 4.19: Frequenzmodulationsspektroskopie für eine annähernd lorentzförmige Absorption. Die rote Verstimmung δ_r ist in Einheiten der Modulationsfrequenz Ω angegeben. ($\delta_g = -1$GHz, $\Omega = 2$GHz, $M = 1$ $sat_g = 5$, $sat_r = 7.5$, $u = 7,5$MHz, $\beta = 90^o$.)

und (2.11)

$$I_{\Omega Q}(t) = -\tfrac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2 \quad [J_0(M)J_1(M)(\delta_1 - \delta_{-1}) + J_1(M)J_2(M)(\delta_1 - \delta_{-1} + \delta_2 - \delta_{-2})] \cos\Omega t \tag{4.66}$$

aus dem Abschnitt 2.1 (Seite 10) eingesetzt und man erhält das erwartete Frequenzmodulationssignal für das Acht-Niveau-System. Alle nichtlinearen Effekte, die in der ersten Betrachtung in Abschnitt 2.1 vernachlässigt wurden sind durch dir Verwendung der optischen Blochgleichungen berücksichtigt. Insbesondere gehen auch die Einflüsse der Zwei-Photon-Resonanzen sowie des Zerfalls von Kohärenzen in Kohärenzen, wie die in Abschnitt 4.2 eingeführt wurden, in das Ergebnis ein.

Zum Test dieser Gleichungen wurden sie auf das Acht-Niveau-System mit einer großen Verstimmung des grünen Lasers angewandt. Abbildung 4.19 stellt die Ergebnisse dar. Die Absorption ist in diesem Fall fast lorentzförmig. Es ergeben sich Signale, wie sie auch in linearer Näherung in Kapitel 2 herausgekommen sind. Es sind jedoch weitere Strukturen bei ganzzahligen Vielfachen der Modulationsfrequenz zu erkennen. Diese können durch nichtlineare Wechselwirkungen der Lichtfelder mit dem Ion erklärt werden. Bei der Verstimmung $\delta_r = \delta_g = -\frac{1}{2}$ erkennt man sehr kleine Unregelmäßigkeiten in der Dispersion sowie auf dem Inphase-Signal. Diese werden durch die Dunkelresonanzen verursacht und sind bei der Schrittweite, mit der die Kurven gerechnet wurden nicht aufgelöst.

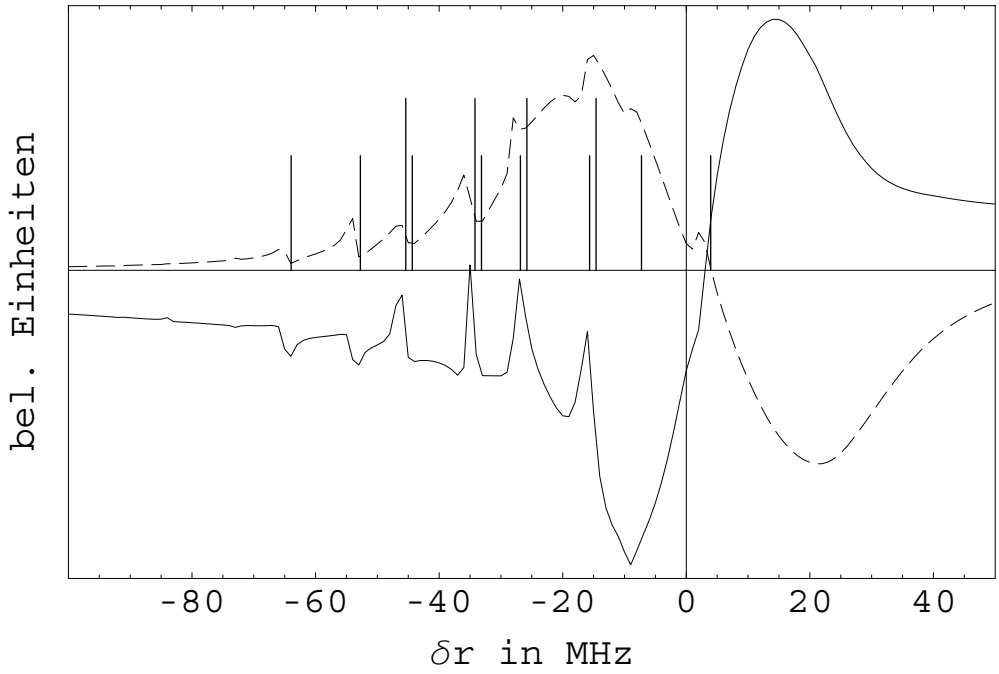

Abbildung 4.20: Frequenzmodulationssignal für das Acht-Niveau-System bei einfacher Sättigung ($\mathrm{sat}_g = \mathrm{sat}_r = 1$). Die Modulationsfrequenz beträgt 18.55 MHz bei einem Modulationsindex von 1.15.

In Abbildung 4.20 ist das FM-Signal für einen realistischen Fall dargestellt. Die Verstimmung des grünen Lasers befindet sich bei $\delta_g = -30$ MHz, beide Sättigungsparameter liegen bei Eins. Sowohl das Inphase-Signal als auch das Quadratursignal weisen einen dispersiven Verlauf auf, wie man das erwartet, wenn Modulationsfrequenz und Linienbreite etwa die gleiche Größe haben (Abb. 2.3). An den Stellen, an denen Dunkelresonanzen auftreten, sind in beiden Anteilen des Signals zusätzliche Strukturen zu erkennen. Diese Stellen sind durch die vier langen Striche im Bild gekennzeichnet. Weitere Strukturen treten auf, wenn die Seitenbänder des roten Lasers die Dunkelresonanzen überstreichen (kürze Striche). In Abbildung 4.21 wurden die Lichtintensitäten erhöht ($\mathrm{sat}_g = 3$, $\mathrm{sat}_r = 4.5$). Aufgrund der Sättigung sind die Einflüsse der Dunkelresonanzen verschmiert, eine Auflösung dieser Strukturen ist nicht mehr möglich.

4.4 MT-Spektroskopie am Barium-Ion

Bei der Modulationstransferspektroskopie (MT-Spektroskopie) wird das grüne Licht phasenmoduliert. Die Wechselwirkung des Ions mit den Feldern wird gemessen, indem man eine Modulation der Amplitude auf dem roten Lichtfeld nachweist.

Um das MT-Signal zu berechnen wird das nachgewiesene rote Lichtfeld als eine Überlagerung aus dem ursprünglichen Feld E_i und dem Polarisationsfeld E_{pol}

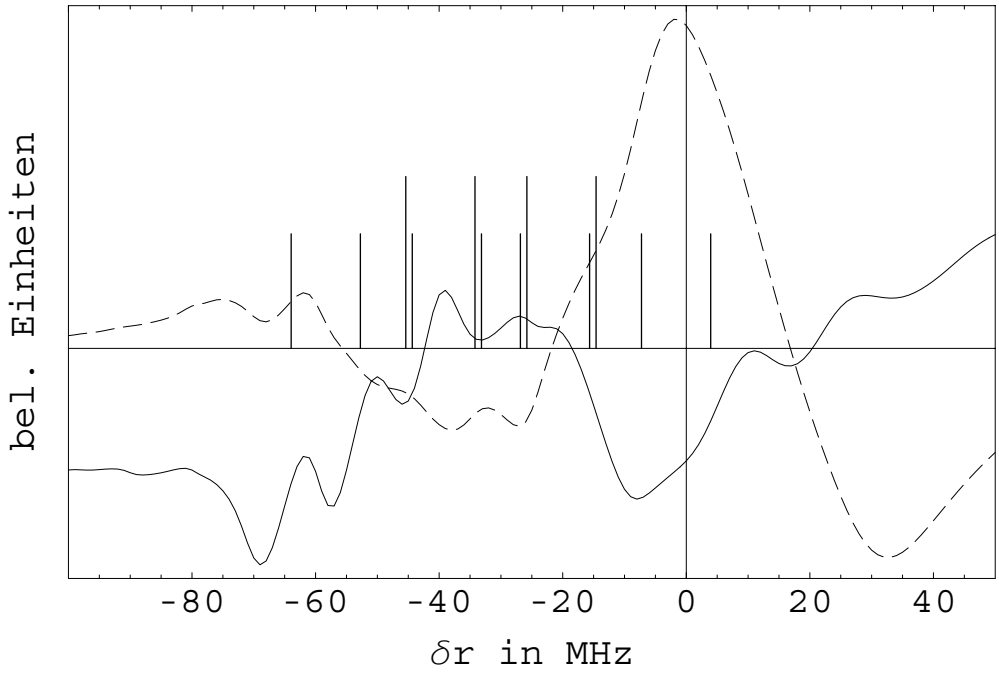

Abbildung 4.21: FM-Signal mit großer Sättigung ($\mathrm{sat}_g = 3$, $\mathrm{sat}_r = 4.5$). Alle anderen Parameter wie in Abb. 4.20.

angenommen. Das Polarisationsfeld ist auch hier wieder für jeden Übergang einzeln zu berechnen und dann dem Wigner-Eckard-Theorem entsprechend zu überlagern. Das gemessene Signal ist proportional zur Intensität

$$I \propto E_f E_f^* = E_i E_i^* + E_i E_{\mathrm{pol}}^* + E_{\mathrm{pol}} E_i^* + E_{\mathrm{pol}} E_{\mathrm{pol}}^* \tag{4.67}$$

Der erste Summand ist die Intensität des unveränderten Lichtfeldes, das im Experiment konstant gehalten wird. Da das Signal selektiv bei der Modulationsfrequenz Ω aufgenommen wird, verschwindet dieser Anteil. Der letzte Summand ist nur auf die Abstrahlung durch die Polarisation des Ions zurückzuführen. Da aber bei Absorption am einzelnen Ion $E_i \gg E_{\mathrm{pol}}$ gilt, ist dieser Anteil sehr viel kleiner, als der Mischterm $E_i E_{\mathrm{pol}}^* + \mathrm{c.c.}$. Dieser beschreibt die kohärente Überlagerung des Polarisationsfeldes mit dem eingestrahlten Feld. Das Verhältnis E_i/E_{pol} ist der Heterodyngewinn und bezeichnet die Verstärkung eines schwachen Wechselspannungssignals durch Mischung mit einem frequenz- und phasenstabilen externen Oszillator. Als Referenzoszillator dient hier das ursprüngliche Feld. Im folgenden wird nur der Mischterm betrachtet, der Anteil $E_{\mathrm{pol}} E_{\mathrm{pol}}^*$ kann in guter Näherung vernachläßigt werden.

Der Beitrag, den ein Übergang zur Polarisation beisteuert ist proportional zum Realteil des entsprechenden Dichtematrixelements, das wieder eine Summe zweier Blochvektorkomponenten ist:

$$P \propto Re(\rho_{ij}) = Re\left((r^R + ir^I)e^{-i\omega t}\right) \tag{4.68}$$

Setzt man für jede Blochvektorkomponente die Fourierreihe nach (4.52) ein,

wobei nur die Komponenten mit $n = \pm 1$ benötigt werden[3], so erhält man:

$$\begin{aligned} P \quad \propto \quad & Re(r_1^R)\cos(\omega t)\cos(\Omega t) \quad + \quad Im(r_1^R)\cos(\omega t)\sin(\Omega t) \\ + \quad & Re(r_1^I)\sin(\omega t)\cos(\Omega t) \quad + \quad Im(r_1^I)\sin(\omega t)\sin(\Omega t) \end{aligned} \tag{4.69}$$

Das elektrische Feld E_{pol} läuft der Polarisation um 90^o nach:

$$\begin{aligned} E_{\text{pol}} \quad \propto \quad & Re(r_1^R)\sin(\omega t)\cos(\Omega t) \quad + \quad Im(r_1^R)\sin(\omega t)\sin(\Omega t) \\ - \quad & Re(r_1^I)\cos(\omega t)\cos(\Omega t) \quad - \quad Im(r_1^I)\cos(\omega t)\sin(\Omega t) \end{aligned} \tag{4.70}$$

Nun läßt sich der Mischterm aus Gleichung (4.67) ausrechnen. Herterodynverstärkung tritt nur für den Anteil des Feldes E_{pol} auf, der mit dem eingestrahlten Feld in Phase schwingt. Der Mischterm enthält schnelle Oszillationen mit der doppelten Lichtfrequenz. Diese Schwebungen lassen sich mit keinem Detektor auflösen und werden deshalb über eine Periode $2\pi/\omega$ gemittelt. Für die Intentität ergibt sich nun:

$$I|_\omega \propto Im(r_1^I)\sin(\Omega t) + Re(r_1^I)\cos(\Omega t) \tag{4.71}$$

Durch Addition der einzelnen Signale erhält man nun das zu erwartende MT-Signal. Sowohl die Zwei-Photonen-Effekte, als auch die Effekte erster Ordnung werden durch die Blochgleichungen richtig wiedergegeben.

Abbildung 4.22 zeigt das zu erwartende MT-Signal bei großer Verstimmung δ_g des grünen Lasers. Im oberen Teilbild ist die Besetzung der angeregten Niveaus dargestellt. Diese weist eine lorentzartige Form auf, mit nur kleinen Unregelmäßigkeiten bei den Dunkelresonanzen $\delta_r \approx \delta_g$. Im mittleren Teilbild ist das MT-Signal dargestellt. Das große Lorentzprofil, das durch Absorption des roten Lichts zustande kommt, erzeugt nur geringen Modulationstransfer. An den Dunkelresonanzen erkennt man jedoch deutliche Signale. Diese Signale sind auf resonante Vier-Wellen-Mischung zurückzuführen. Eine Vergrößerung der Signale im unteren Teilbild zeigt, daß auch für $\delta_r \approx 0$ Modulationstransfer stattfindet. Dieser entsteht aufgrund der Modulation der Besetzungsdichte der P-Niveaus. Für diese Rechnung ist eine kleine Modulationsfrequenz von 10 kHz verwendet worden.

Auch für Modulationsfrequenzen, die viel kleiner sind, als die beteiligten Zerfallsraten erhält man also ein Signal, das fast ausschließlich durch Zwei-Photon-Resonanzen erzeugt wird. Der auf Ein-Photon-Effekte zurüchzuführende Anteil ist um mehr als eine Größenordnung geringer.

Abbildung 4.23 zeigt die MT-Signale für die gleichen Parameter wie in Abbildung 4.22 jedoch mit einer Modulationsfrequenz von 50 Mhz. Jede der vier Zwei-Photon-Resonanzen bei $\delta_r \approx \delta_g$ erzeugt nun mehrere Signale, da der Abstand der Seitenbänder größer ist, als die Linienbreiten der Resonanzen. Die absolute Stärke des Signals ist um zwei Größenordnungen größer, als für die kleine Modulationsfrequenz bei einigen kHz.

[3]Nur diese Komponenten führen zu einer Amplitudenmodulation bei der einfachen Modulationsfrequenz Ω.

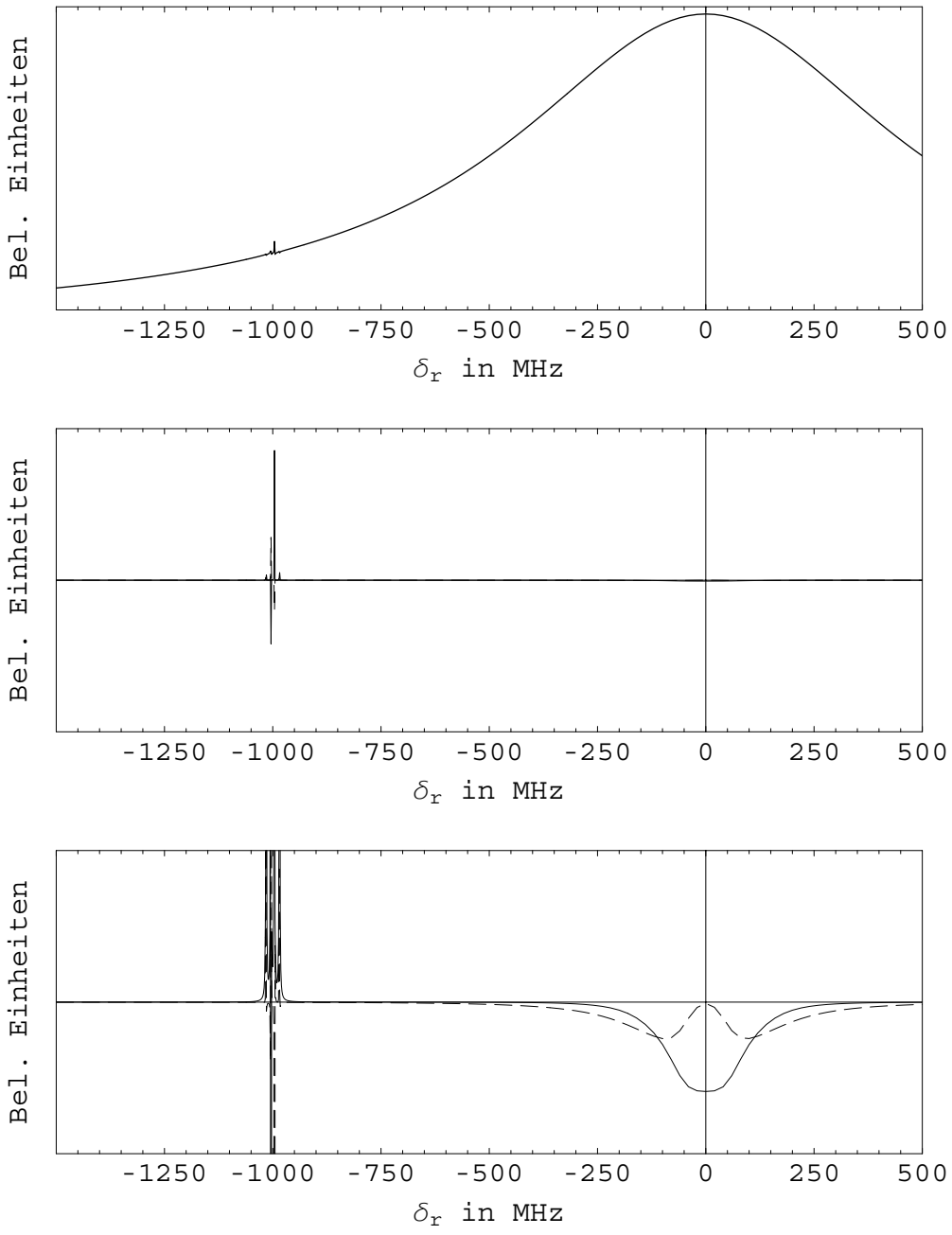

Abbildung 4.22: Modulationstransferspektroskopie für eine große Verstimmung des grünen Lasers $\delta_g = -1$ GHz bei langsamer Phasenmodulation von $\Omega = 10$ kHz. Oben: Fluoreszenz als Funktion der roten Verstimmung. Mitte: MT-Signal — das Zwei-Photon-Signal bei $\delta_r \approx \delta_g$ ist um mehr als eine Größenordnung größer, als das Signal bei $\delta_r \approx 0$, welches durch Oszillationen der Besetzungszahlen verursacht wird. Unten: Um den Faktor 100 vergrößerte Darstellung des MT-Signals. Der Inphase-Anteil ist durchgezogen dargestellt, der Quadratur-Anteil gestrichelt. ($M = 1.15$, $sat_g = 1$, $sat_r = 1.5$, $u = 7{,}0$ MHz, $\beta = 90^o$.)

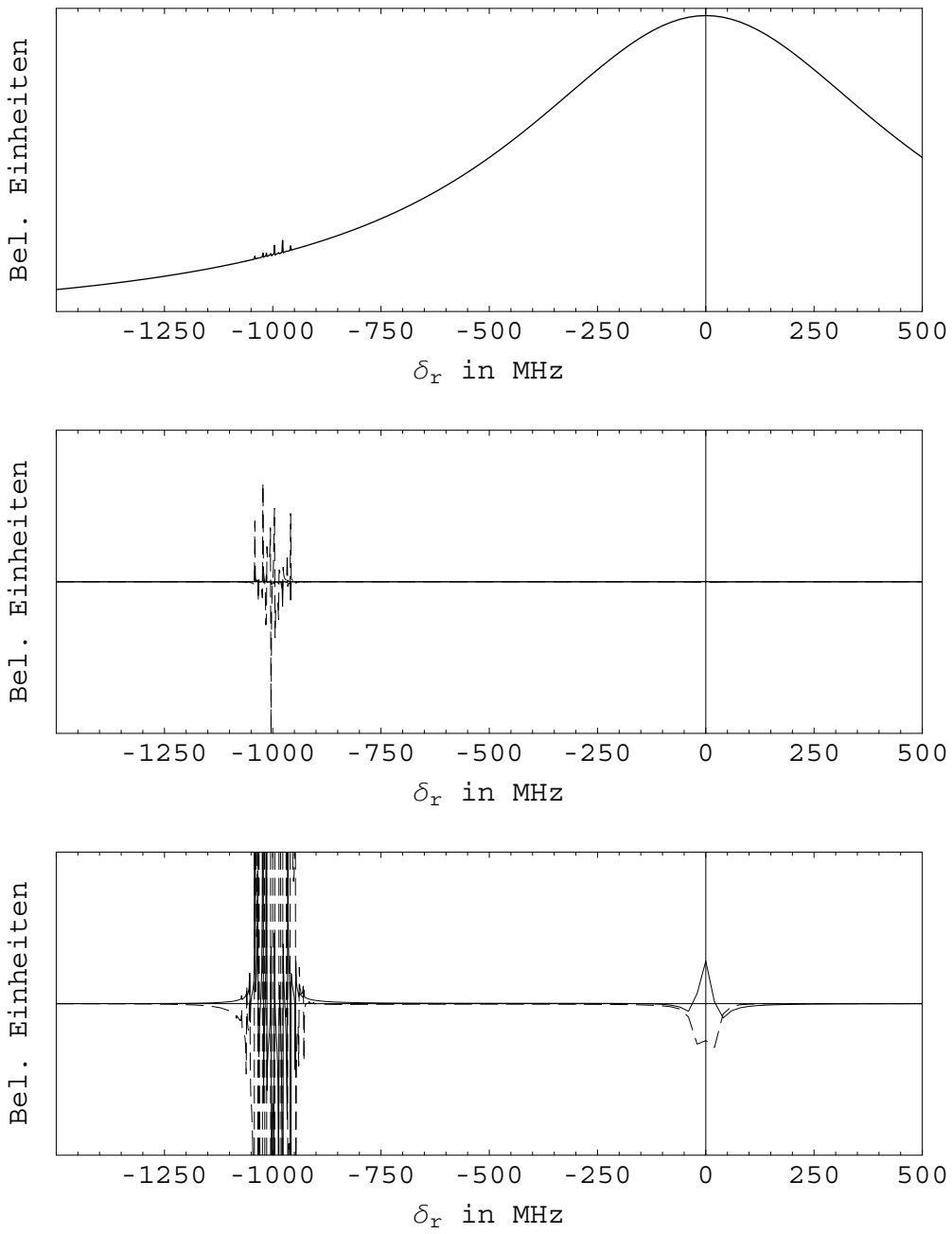

Abbildung 4.23: Modulationstransferspektroskopie für eine große Verstimmung des grünen Lasers $\delta_g = -1$GHz bei einer Modulationsfrequenz von $\Omega = 50$ MHz. Oben: Fluoreszenz als Funktion der roten Verstimmung. Mitte: MT-Signal — Das Signal bei $\delta_r \approx 0$ ist im Vergleich zu den Zwei-Photon-Resonanzen schwächer, als bei kleinen Modulationsfrequenzen. Unten: 100 fache Vergrößerung der mittleren Darstellung. Der Inphase-Anteil ist durchgezogen dargestellt, der Quadratur-Anteil gestrichelt. ($M = 1.15$, $sat_g = 1$, $sat_r = 1.5$, $u = 7,0$ MHz, $\beta = 90^o$.)

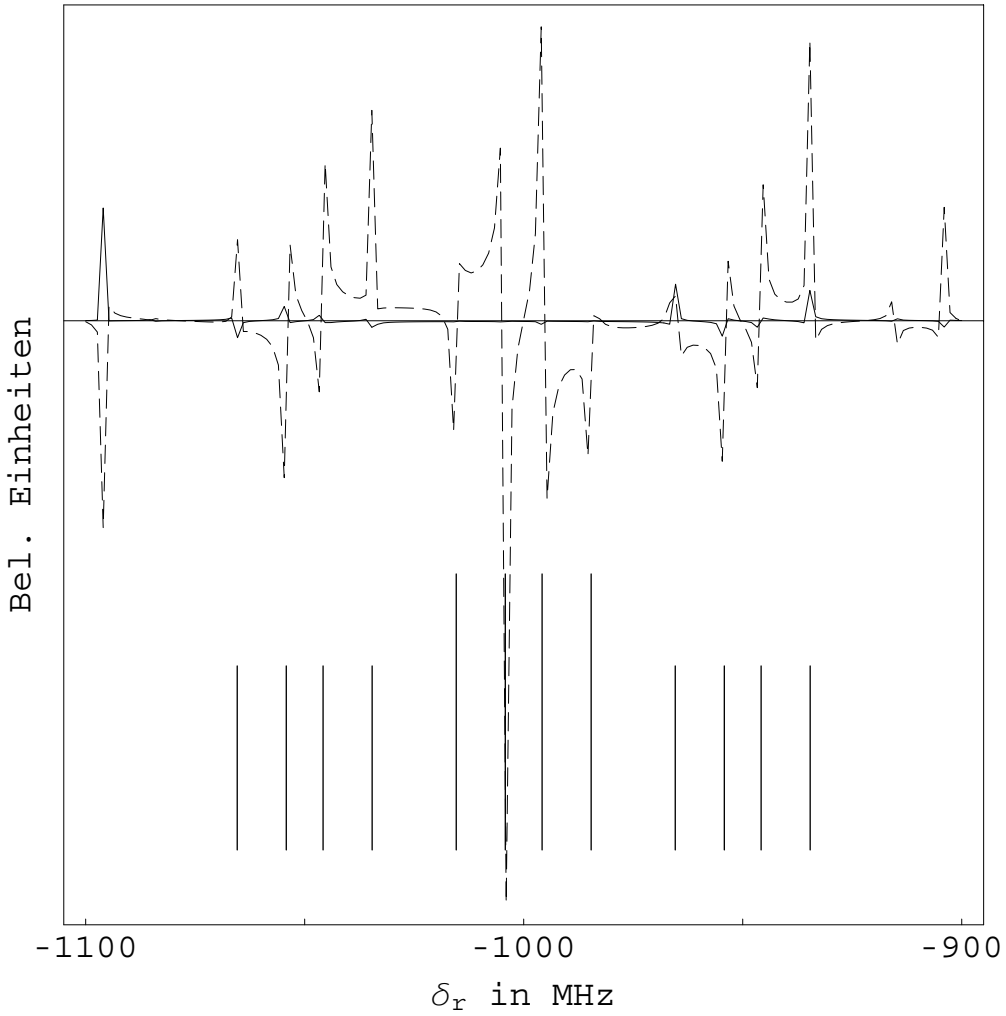

Abbildung 4.24: Vergrößerter Ausschnitt aus Abbildung 4.23. Im unteren Bereich sind die Verstimmungen, bei denen Zwei-Photonen-Resonanzen auftreten aufgezeigt. Die langen Striche markieren die Positionen, an denen das rote Licht mit dem Träger des grünen Lichtes eine Zwei-Photon-Resonanz anregt. Die kurzen Striche deuten Zwei-Photonen-Resonanzen zwischen dem roten Licht und den ersten Seitenbändern des grünen Lichtfeldes an.

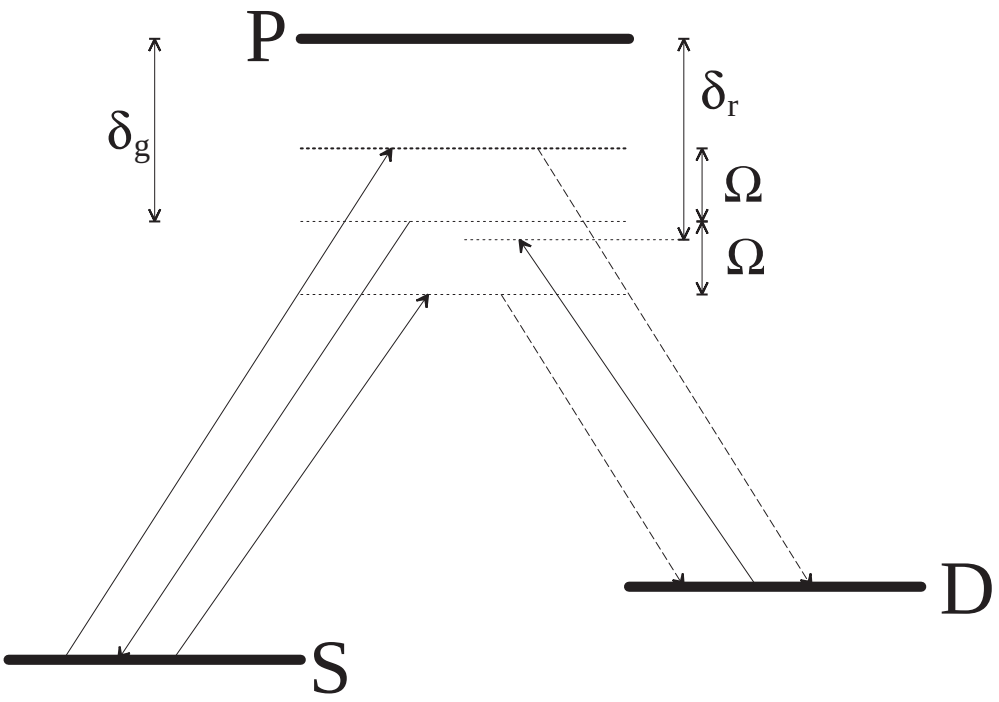

Abbildung 4.25: Termschema zur Erklärung der Signalform bei der MT-Spektroskopie im Drei-Niveau-System. Die Vier-Wellen-Mischung erzeugt zu dem monochromatischen roten Lichtfeld Seitenbänder (gestrichelte Pfeile). Sind die Amplituden dieser Seitenbänder identisch, so entsteht für $\delta_r = \delta_g$ ein rein phasenmoduliertes rotes Lichtfeld. Für ungleiche Amplituden der Seitenbänder oder eine Verstimmung des roten Lasers gegenüber der Resonanz ergibt sich eine meßbare Amplitudenmodulation.

In Abbildung 4.24 ist ein Ausschnitt aus Abbildung 4.23 dargestellt. Im unteren Bereich sind die Positionen der Dunkelresonanzen mit langen Strichen angedeutet. Jede Resonanz erzeugt ein dispersives Signal mit einer steilen Flanke bei der Zwei-Photon-Resonanz zwischen dem roten Licht und dem Träger des grünen Lichts. Die kurzen Striche zeigen die Stellen an, an denen der rote Laser um die Modulationsfrequenz gegenüber einer Zwei-Photon-Resonanz verstimmt ist. In diesem Fall ist der rote Laser mit einem der grünen Seitenbänder in Resonanz, so daß auch an diesen Stellen Signale zu beobachten sind.

Zur Erklärung der Signale verdeutlicht Abbildung 4.25 die Entstehung des MT-Signals im Drei-Niveau-System. Die drei Pfeile auf der linken Seite stellen das grüne, der durchgezogene Pfeil auf der rechten Seite das rote Licht dar. Für den Spezialfall $\delta_g = \delta_r = 0$ erzeugen die beiden Seitenbänder des grünen Lasers gleich starke Seitenbänder im roten Spektralbereich. Dem roten Licht wird in diesen Fall eine Phasenmodulation, nicht aber eine Amplitudenmodulation aufgeprägt und das Signal verschwindet. Eine kleine Verstimmung des roten Lasers aus der Resonanz sorgt dafür, daß die erzeugten Seitenbänder nicht mehr symmetrisch um den Träger liegen und führt zu einer Amplitudenmodulation. Für $\delta_g = 0$ ist das zu erwartende Signal also dispersiv, mit einem Nulldurchgang bei $\delta_r = \delta_g = 0$. Im gezeigten Fall, bei dem der grüne Laser gegen den Übergang zu

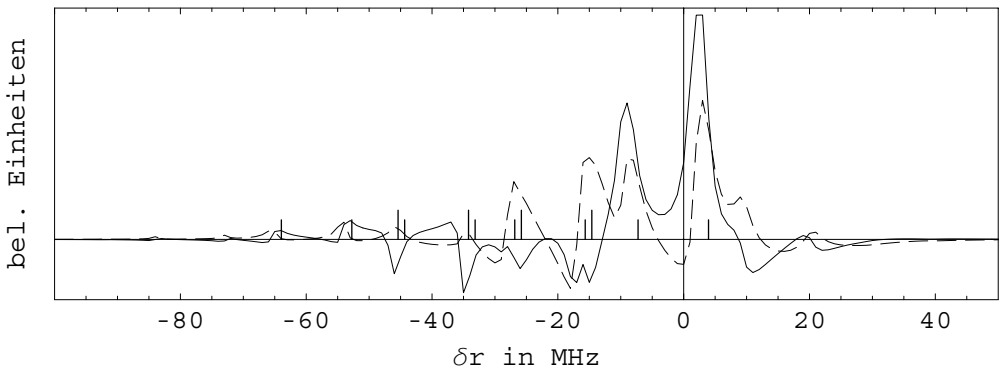

Abbildung 4.26: MT-Spektrum bei einfacher Sättigung ($\mathrm{sat}_g = \mathrm{sat}_r = 1$) und einer Verstimmung des grünen Lasers von $\delta_g = -30$ Mhz. Die Modulationsfrequenz beträgt 18.55 MHz bei einem Modulationsindex von M=1.15.

niedrigen Frequenzen verstimmt ist, wird das obere Seitenband, das näher an der Resonanz ist, stärker ausgeprägt sein, als das weiter verstimmte Seitenband. Es ist also bei $\delta_g = \delta_r$ eine Verstimmung zu erwarten. Das Signal ist nicht mehr rein dispersiv.

In Abbildung 4.24 ist die Verstimmung der Laser groß gegen die Modulationsfrequenz. Der Umstand, daß sich das obere Seitenband dichter an der Resonanz befindet führt also nur zu einem geringen Unterschied in der Stärke der Seitenbänder. Der Nulldurchgang befindet sich darum fast genau an den Stellen der Dunkelresonanzen.

Die Signale, die durch eine Zwei-Photon-Resonanz zwischen dem roten Licht und einem der Seitenbänder im grünen Lichtfeld entstehen, weisen keinen Nulldurchgang bei der Resonanz auf. Die im roten Frequenzbereich erzeugten Seitenbänder sind schon deshalb nicht gleich stark, weil das eine durch den Träger, das andere aber durch das kleinere Seitenband zweiter Ordnung erzeugt wird.

Abbildung 4.26 zeigt das MT-Signal für eine Verstimmung des grünen Lichts um -30 MHz und einfache Sättigung. Die Frequenzen, bei denen die Zwei-Photonen-Resonanzen zu erwarten sind, sind wieder durch Strichmarken angedeutet. Die Maxima des MT-Signals befinden sich links dieser Markierungen. Es ist weder eine absorptive noch eine rein dispersive Linienform zu erkennen.

Kapitel 5

Experimenteller Aufbau

Um die Absorption eines einzelnen Ions zu messen, sind verschiedene experimentelle Voraussetzungen zu erfüllen. Für die Anregung der in dieser Arbeit untersuchten Übergänge im Λ-förmigen Drei-Niveau-System des Bariumions werden zwei durchstimmbare Farbstofflaser im sichtbaren Spektralbereich verwendet. Für die Phasenmodulation eines der Lichtfelder wird ein ADP-Kristall mit einem Überhöhungskreis zur Spannungsverstärkung verwendet. Die schnelle, frequenzselektive Signalaufnahme geschieht mit einer Lawinen-Photodiode (APD) und einem frequenz- und phasenselektiven Verstärker (Lock-In-Verstärker). Um ein einzelnes Ion festhalten und präparieren zu können, wird eine Hochfrequenzionenfalle (Paul-Falle) verwendet.

5.1 Elektrooptischer Modulator

In den Frequenz- und Intensitätsregelungen der Laser, sowie zur Modulation der Phase des Lichtfeldes bei 493nm werden elektrooptische Modulatoren (EOM) verwendet. Diese basieren auf dem Effekt, daß einige Kristalle, die keine Inversionssymmetrie aufweisen ihre doppelbrechenden Eigenschaften beim Anlegen eines elektromagnetischen Feldes linear mit diesem ändern. Dieser Effekt wird als linarer elektrooptischer Effekt oder Pockels-Effekt bezeichnet [Yar 88].

In einem doppelbrechenden Kristall spaltet sich ein Lichtstrahl beliebiger Polarisation in einen ordentlichen und einen außerordentlichen Strahl auf. Diese sind linear und senkrecht aufeinander polarisiert. Wärend der ordentliche Strahl sich nach den Gesetzen der klassischen Strahloptik ausbreitet, erfährt der außerordentliche Strahl einen zur Länge des Kristalls proportionalen Strahlversatz (Abb. 5.1). Für die beiden Strahlen gelten unterschiedliche Brechungsindizes n_o und n_a. Der lineare elektrooptische Effekt besteht nun darin, daß sich beim Anlegen eines elektrischen Feldes die Differenz der Brechungsindizes linear zur elektrischen Feldstärke E ändert.

Nutzt man den EOM zur Intensitätsregelung, so verwendet man in der Regel eine Anordnung von zwei Kristallen, wobei der zweite Kristall den Strahlversatz

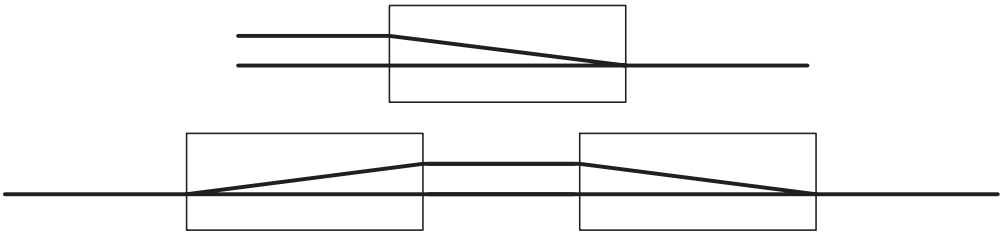

Abbildung 5.1: Oben: Aufspaltung eines Lichtstrahls (von rechts kommend) in einem doppelbrechenden Kristall. Unten: Durch eine geeignete Anordnung zweier Kristalle läßt sich der Strahlversatz kompensieren. Die Strahlen sind zueinander senkrecht linear polarisiert und erfahren unterschiedliche Dispersion.

des ersten wieder rückgängig macht und so für die Überlagerung von ordentlichem und außerordentlichem Strahl sorgt (Abb. 5.1 unten). Wählt man die Polarisationsrichtung des Lichtfeldes im Winkel von 45^o zum elektrischen Feld, so sind die beiden Strahlen im Kristall gleichstark und man erreicht, daß das Licht elliptisch polarisiert aus dem EOM austritt, wobei das Achsenverhältnis der Polarisationsellipse vom angelegten elektrischen Feld abhängt. Für den Spezialfall, daß der Gangunterschied $\delta\lambda = (n_o - n_a)l$ ein Vielfaches einer ganzen Wellenlänge ist, bleibt der Strahl unverändert. Dabei bezeichnet l die Länge der Strecke, die das Licht in den Kristallen zurücklegt. Beträgt der Gangunterschied ein ungerades Vielfaches einer halben Wellenlänge, so tritt ein linear polarisierter Strahl aus, dessen Polarisationsrichtung im rechten Winkel zur ursprünglichen Polarisation steht. Im nachfolgenden Polarisator wird der Strahl also vollständig ausgelöscht.

Ein EOM läßt sich außerdem zur spannungsabhängigen Änderung der optischen Weglänge einsetzen. Hierzu wird der EOM so eingerichtet, daß die Polarisation des Lichtfeldes mit der Polarisationsrichtung eines der beiden Strahlen übereinstimmt. Mit dem elektrischen Feld ändert sich dann der Brechungsindex für das Licht unter Beibehaltung der Polarisationseigenschaften. Dadurch kann man die optische Weglänge schnell ändern, ohne daß mechanische Stellelemente benötigt werden. Die beiden EOM, die zur Frequenzstabiliserung in den Farbstofflasern verwendet werden, bestehen aus je zwei ADP-Kristallen ($NH_4H_2PO_4$) in Kompensationsanordnung. Dadurch kann man sie in den Resonator einjustieren, ohne die Grundeinstellung der Spiegel nachjustieren zu müssen.

Zur Phasenmodulation des grünen Lichtfeldes wird ein EOM aus nur einem ADP-Kristall verwendet [G1]. Dieser wird so eingerichtet, daß nur ein Strahl durch den Kristall propagiert. Um eine Beimischung der eventuell noch schwach vorhandenen zweiten Polarisationskomponente zu verhindern, wird hinter dem EOM eine Lochblende in den Strahlengang eingebracht. Da der Brechungsindex des Kristalls mit der Modulationsfrequenz oszilliert, ist darauf zu achten, daß der Strahl senkrecht auf den Kristall auftritt. Eine Abweichung vom senkrechten Einfall würde zur Oszillation der Strahllage hinter dem Modulator führen. Da sich hinter dem EOM ein Lichtwellenleiter befindet, dessen Transmission sehr stark von der räumlichen Lage des Lichtstrahls abhängt, würde das zu einer

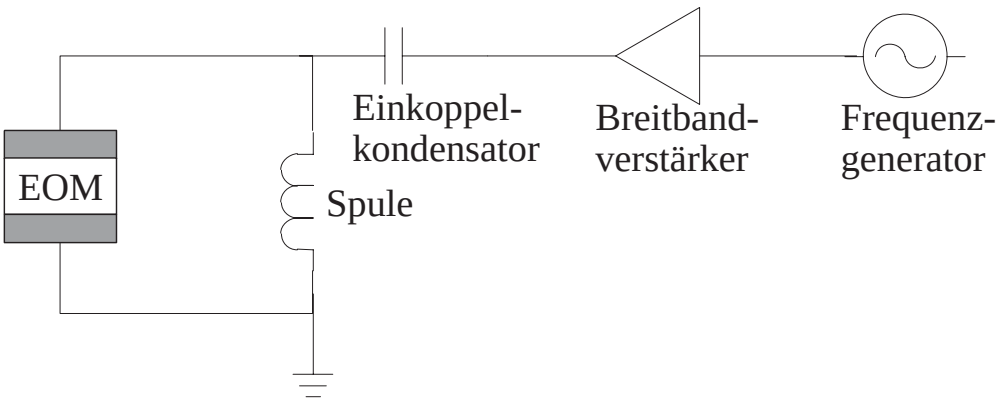

Abbildung 5.2: Parallelschwinkreis zur Spannungsüberhöhung am EOM.

unerwünschten Amplitudenmodulation des Lichtfeldes am Ort des Ions führen.

5.1.1 Schwingkreis zur Spannungsüberhöhung

Der EOM besteht aus einem Kristall in einem Plattenkondensator. Die beiden planparallelen Elektroden sorgen dafür, daß das elektrische Feld im Kristall homogen ist. Der EOM ist also in guter Näherung ein Kondensator, wobei die Einwirkung des elektrischen Feldes auf den Kristall zu Leistungsverlusten im Kondensator führt. Um dem EOM ein Wechselfeld genügend hoher Amplitude zuführen zu können, wird der EOM zusammen mit einer selbstgedrehten Spule zu einem Parallelschwingkreis verschaltet. Mit einem solchen Schwingkreis ist es möglich, ausreichende Überhöhung der Eingangsspannung zu erreichen.

Abbildung 5.2 zeigt die verwendete Schaltung zur Spannungsüberhöhung. Das im Frequenzgenerator [G2] mit hoher Genauigkeit produzierte Wechselfeld wird mit einem Breitbandverstärker [G3] um 40 dB verstärkt und über einen Einkoppelkondensator dem Parallelschwingkreis aus Spule und EOM zugeführt. Der Einkoppelkondensator dient hierbei zur Impedanzanpassung. Es handelt sich um die Parallelschaltung zweier Hochspannungskondensatoren mit Kapazitäten von je 3 pF.

Ein Parallelschwingkreis hat die Resonanzfrequenz $\omega_0 = (LC)^{-1}$. Unvermeidliche Verluste in diesem Kreis führen jedoch zu einer Dämpfung, die man mit dem Abklingkoeffizienten δ angeben kann. Dieser gibt an, wie schnell eine freie Schwingung im Resonanzkreis abklingen würde. Aufgrund der Dämpfung kommt es zur Verschiebung der Resonanzfrequenz:

$$\omega = \sqrt{\omega_0^2 - \delta^2} \tag{5.1}$$

für erzwungene Schwingungen.

Da die Dämpfung des Schwingkreises nicht bekannt ist und eine Messung am Schwingkreis nicht möglich ist, ohne seine Eigenschaften zu beeinflussen, wurde

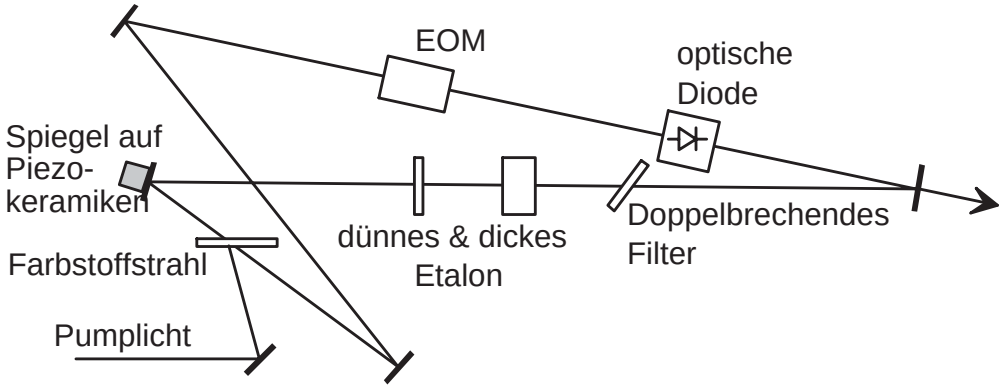

Abbildung 5.3: Skizze des Farbstofflasers bei 493 nm

die optimale Kombination von Spule und Einkoppelkondensator experimentell bestimmt. Als Maß für die erreichte Güte wurde die Erzeugung von Seitenbändern durch den EOM gemessen. Als optimale Resonanzfrequenz ergab sich 18.55 MHz.

5.2 Die Farbstofflaser

5.2.1 Farbstofflaser bei 493nm

Der Laser bei 493 nm ist ein modifizerter kommerzieller Farbstofflaser [G4] mit Ringresonator und wird von einem Krypton-Ionenlaser [G5] im violetten Frequenzbereich gepumpt. Eine Skizze des Lasers ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Um den Betrieb in einer einzelnem Resonatormode sicherzustellen sind zusätzliche frequenzselektive Elemente in den Resonator eingebracht. Diese sind ein doppelbrechendes Filter und ein dickes und ein dünnes Etalon. Außerdem wird eine optische Diode verwendet, um die Umlaufrichtung des Lichtfeldes festzulegen. Mit Hilfe einer drehbaren Glasplatte wird Durchstimmbarkeit von 29 GHz erreicht der Antrieb dieses Stellelementes besitzt mechanische Eigenresonanzen bei etwa 1 kHz und kann deshalb nur langsam verstellt werden. Schnellere Frequenzänderungen um bis zu etwa 400 MHz werden mit einem auf einer Piezokeramik gelagertem Spiegel erreicht, mit dem die Resonatorlänge verändert werden kann. Hiefür liegen die Resonanzen bei einigen 10 kHz. Die schnellste Regelung wird mit einem elektrooptischen Modulator (EOM) erreicht. Dieser besteht aus zwei ADP-Krsitallen in Kompensationsanordnung, es tritt also kein Strahlversatz zwischen dem ordentlichen und dem außerordentlichen Stahl auf. Der EOM ist so eingerichtet, daß durch Anlegen einer elektrischen Spannung an den Kristallen die optische Weglänge geändert wird, ohne daß die lineare Polarisation geändert wird. Die Änderung der optischen Weglänge führt zur schnellen Verstimmung der Resonanzfrequenz. Mit diesem schnellen Stellelement sind Regelbandbreiten von etwa 3 MHz erreichbar.

Die Farbstofflösung des Lasers besteht aus 0.77 g Coumarin 102 gelöst in 200 ml

Benzylalkohol und 800 ml Ethylenglykol. Dabei bestimmt das 1:4 Verhältnis von Benzylalkohol zu Ethylenglykol die Viskosität der Farbstofflösung. Um einen homogenen Farbstoffstrahl mit parallelen Seiten optischer Qualität zu erreichen wird diese Lösung unter hohem Druck von ca. 6.5 bar durch eine Düse aus massivem Edelstahl gepreßt.

Zur Einstellung der Wellenlänge auf den optischen Übergang des Bariums wird eine mit Heluim gefüllte Monitorzelle verwendet, in der ionisiertes Barium durch den Laser zur Fluoreszenz angeregt wird. Hierzu wird ein Bariumdraht in einer Gasentladung erhitzt, so daß Barium verdampft und durch die ständige Gasentladung ionisiert wird. Das Laserfeld wird in diese Zelle eingekoppelt und man sieht die grüne Fluoreszenz, wenn der Laser zur stoß- und dopplerverbreiterten Absorptionslinie resonant ist.

5.2.2 Farbstofflaser bei 650nm

Das rote Lichtfeld, das die $P \leftrightarrow D$-Übergänge treibt, und auf dem das Modulationstransfersignal gemessen wird, wird von einem Farbstofflaser mit V-förmigen Resonator erzeugt. Als Farbstoff wird hier DCM, gelöst in einem Gemisch aus zwei Teilen DMSO und je einem Teil Benzylalkohol und Glycerin, verwendet. Dieses wird von einem Argon-Ionenlaser [G7] im Wellenlängenbereich zwischen 458 und 515 nm gepumpt. Auch bei diesem Laser handelt es sich um ein modifiziertes kommerzielles System [G6], das auf die gleiche Weise wie der Laser bei 493 nm im Einmodenbetrieb gehalten wird. Als Resonator wird jedoch eine V-förmige Anordnung verwendet, so daß keine optische Diode benötigt wird.

Die Einstellung der Wellenlänge auf die exakte Resonanz erfolgt hier mit Hilfe der optogalvanischen Spektroskopie in einer Ba-Hohlkathode.

5.2.3 Pound-Drever-Regelung

Die Frequenzstabilisierung beider Laser erfolgt mit einem Verfahren, das auf ein Frequenzmodulationssignal wie es in Kapitel 2 gezeigt wurde basiert. Dieses wurde zunächst von R. Pound für Mikrowellenresonatoren entwickelt [Pou 46] und später von R. Drever für die Stabilisierung eines Lasers verwendet [Dre 83], es ist deshalb als Pound-Drever-Regelung bekannt. Bei diesem Verfahren wird das Laserlicht phasenmoduliert und an einem optischen Referenzresonator reflektiert (Abb. 5.4). Der Reflexionsindex eines optischen Resonators weist an dessen Eigenfrequenzen ein lorentzförmiges Minimum auf, das als eine Absorptionslinie interpretiert werden kann. Wird nun das reflektive Signal frequenz- und phasenselektiv bei der Modulationsfrequenz gemessen, so erhält man einen Signalverlauf, wie er in Abbildung 5.5 dargestellt ist. Die Herleitung dieses Signalverlaufs wurde in Abschnitt 2.1 gegeben. Im Pound-Drever-Verfahren macht man sich nun zunutze, daß das Inphase-Signal einen steilen Nulldurchgang bei der Resonanzfrequenz des optischen Resonators besitzt. Diese steile Flanke kann als Fehlersignal für eine elektronische Regelung genutzt werden.

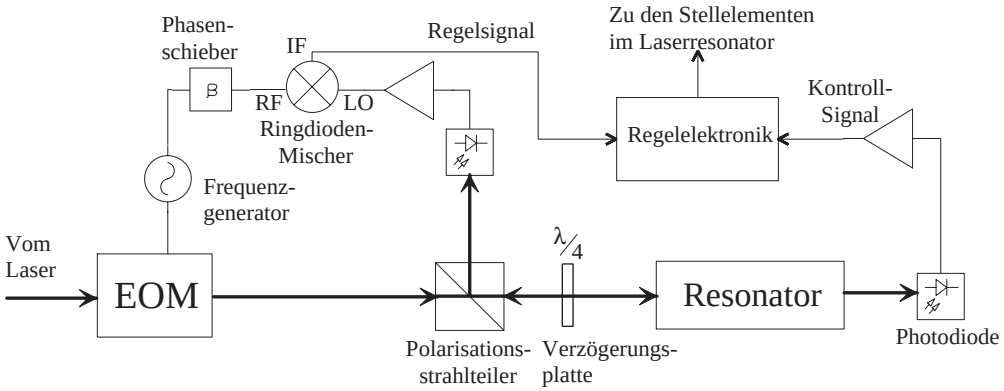

Abbildung 5.4: Skizze der Pound-Drever-Regelung: Das Laserlicht wird auf des Reflexionsminimun des optischen Resonators stabilisiert. Die Stärke des transmittierten Lichts dient zur Stabilitätskontrolle.

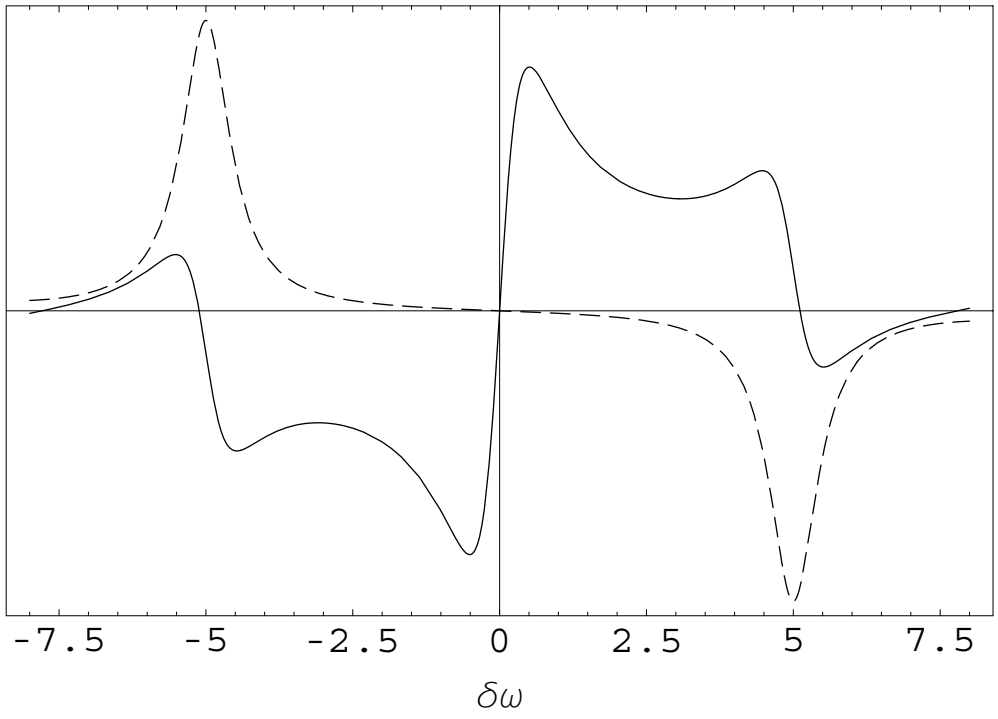

Abbildung 5.5: Inphase- (durchgezogen) und Quadratursignal (gestrichelt) bei der Pound-Drever-Regelung. Das Inphase-Signal weist einen steilen Nulldurchgang auf, der als Fehlersignal für eine elektronische Regelung dienen kann. $\delta\omega$ bezeichnet die Verstimmung des Lasers gegenüber der Resonanz des optischen Resonators. Sie ist in Einheiten der Linienbreite des Resonators angegeben.

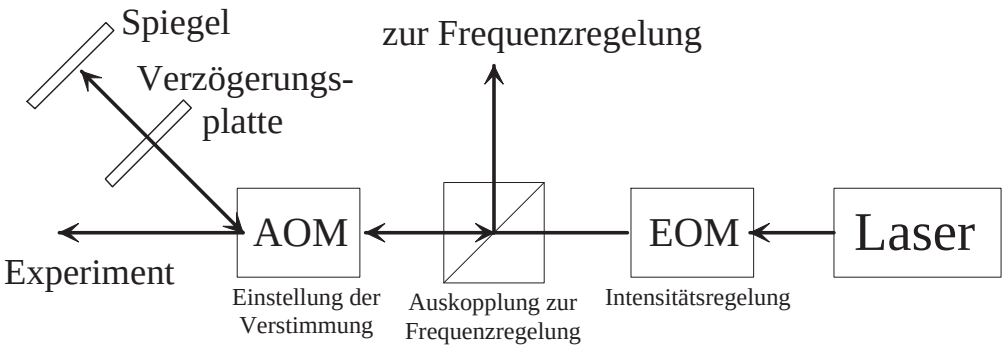

Abbildung 5.6: Skizze der verstimmbaren Auskopplung des roten Lasers in die Pound-Drever-Regelung.

Um eine stabile Referenzfrequenz zu erhalten wird der optische Resonator thermisch isoliert und möglichst vibrationsfrei gelagert. Um das Driften der Resonanzfrequenz durch thermische Ausdehnung des Referenzresonators klein zu halten, wird die Temperatur des Resonators mit Hilfe eines Heizdrahtes konstant gehalten.

Zusätzlich zum reflektierten Signal wird das transmittierte Signal mit einer Photodiode aufgenommen und der Regelelektronik zugeführt. Dieses Kontrollsignal stellt sicher, daß die Regelung auf einer der Hauptmoden des Resonators und nicht auf einer kleinen Nebenmode stabilisiert. Der freie Spektralbereich wird auf diese Weise voll ausgenutzt und Springen der Frequenz zwischen unterschiedlichen Resonatormoden verhindert. Fällt das Kontrollsignal unter einem wählbaren Sollpegel, so wird die Pound-Drever-Regelung ausgeschaltet und der Experimentator wird durch ein akustisches Signal auf ein mögliches Driften der Laserfrequenz aufmerksam gemacht.

Mit diesem Verfahren wurde für beide Laser eine Bandbreite von ca. 6 kHz am Ort des Ions erreicht [Sie 91].

5.2.4 kontrollierte Verstimmung

Die Verstimmung beider Laser kann erfolgen, indem die optischen Resonatoren mit Hilfe von eingebauten Piezokeramiken in ihrer Länge verstellt werden. Eine genauere Einstellung der Verstimmung ist jedoch mit einem Verfahren möglich, das bei dem roten Laser zum Einsatz kommt. Abbildung 5.6 verdeutlicht dieses Verfahren. Hierbei wird der Laser durch einen akustooptischen Modulator (AOM) [G8] geleitet, in dem mit einem Piezoschallwandler stehende Ultraschallwellen bei 150 bis 250 MHz erzeugt werden. An den stehenden Dichtewellen im Kristall des AOMs können nun inelastische Streuungen auftreten, bei denen ein Teil des Laserlichtes die Energie eines Phonons aufnimmt und dabei von der Stahlrichtung abgelenkt wird. Der abgelenkte Strahl wird an einem Spiegel in den AOM reflektiert und durchquert dabei zweimal eine $\frac{\lambda}{4}$-Verzögerungsplatte, deren Achse 45^o von der Polarisationsrichung des Lichtfeldes abweicht. Im AOM

wird ein Teil dieses Strahls wieder inelastisch in den ankommenden Laserstrahl hineingestreut. Dieser Strahl hat nun eine Frequenz, die um das doppelte der Frequenz, mit der der AOM getrieben wird, erhöht ist und eine zum einfallenden Laserlicht orthogonale Polarisation. Dieser Anteil kann nun von einem Polarisationsstrahlteiler ausgekoppelt und in die Pound-Drever-Regelung gegeben werden. Die Hochfrequenz des AOMs wird aus einem hochpräzisen Synthesizer [G9] gespeist. Die Verstimmung des Lasers geschieht, indem die Frequenz des Synthesizers kontrolliert verändert wird. Dadurch wird die Frequenz des Lichtes verstimmt, das der Pound-Drever-Regelung zugeführt wird. Die Regelung regelt die Stellelemente des Lasers so nach, daß die Frequenz dieses Lichts mit der Frequenz einer Mode des Referenzresonators übereinstimmt. Dem Experiment wird also ein Lichtfeld zugeführt, daß gegen den Referenzresonator um die doppelte AOM-Frequenz verstimmt ist.

5.2.5 Intensitätsregelungen

In Abschnitt 4.2 ist deutlich geworden, daß die Wechselwirkung des Ions mit dem Lichtfeld maßgeblich von den Intensitäten der Lichtfelder abhängt. Es ist also notwendig, die Intensitäten beider Laser unabhängig voneinander in einem weiten Bereich variieren zu können. Dies wird gewährleistet, indem jedes Lichtfeld zunächst auf eine feste Intensität stabilisiert und dann auf die gewünschte Intensität abgeschwächt wird. Bei beiden Lasern erfolgt die Stabilisierung mit Hilfe eines EOMs, dessen optische Achse im Winkel von 45^o zur Polarisationsachse gewählt ist. Der EOM erzeugt dann eine elliptische Polarisation oder, wenn der Gangunterschied in den Kristallen gerade eine halbe Wellenlänge erreicht eine Drehung der Polatisationsrichtung um 90^o. Mit einem Polarisator wird das Lichtfeld dann wieder linear in die ursprüngliche Richtung polarisiert, wodurch die Intensität des Lichts abgeschwächt wird.

Nach der Stabilisierung wird die gewünschte Intensität von Hand eingestellt. Hierzu wird eine $\frac{\lambda}{2}$-Verzögerungsplatte verwendet, also eine Verzögerungsplatte, in der die optische Weglänge für eine Polarisationsrichtung genau eine halbe Wellenlänge größer ist, als für die orthogonale Richtung. Durch Drehen der Verzögerungsplatte gegen die Polarisationsrichtung des Lasers erreicht man eine Drehung der Polarisation um den doppelten Winkel. Eine anschließende Polarisation in die ursprüngliche Polarisationsrichtung des Lasers bewirkt eine Abschwächung der Intensität um den Faktor $\cos^2 \alpha$, wobei α der Winkel ist, um den die Polarisationsrichtung gedreht wurde. Der für die Abschwächung zuständige Polarisator ist für die beiden Laser identisch und befindet sich direkt vor der Falle. Die Einstellung unterschiedlicher Winkel zwischen Polarisationsrichtung und Magnetfeld für die beiden Lichtfelder ist nicht vorgesehen, da für beide Winkel der optimale Wert von 90^o angestrebt wird.

5.3 Lichtwellenleiter

Um exakte Strahlformung und Überlagerung beider Laser zu gewährleisten werden die Lichtfelder in einen Lichtwellenleiter [G10] eingekoppelt. Unter einem Lichtwellenleiter versteht man eine Struktur aus einem wenige Mikrometer starken, in der Regel zylindrischen Kern, sowie einem den Kern umgebenden Mantel. Der Kern hat einen geringeren Brechungsindex, als der Mantel. Aufgrund von Totalreflexionen an der Grenzschicht zwischen Kern und Mantel propagiert ein Lichtstrahl, der mit genügend kleinem Winkel in die Faser eingestrahlt wird, nahezu verlustfrei durch den Wellenleiter. Die Verluste, die hierbei in der Faser auftreten sind für kurze Fasern von wenigen Metern Länge vernachlässigbar gering.

Für das hier beschriebene Experiment wesentlich ist die Eigenschaft von Wellenleitern nur diskrete transversal elektrische (TE) Eigenmoden zuzulassen. Diese diskreten Moden werden mit $\mathrm{TE}_{kl}, k = 0, 1, 2, \ldots$ bezeichnet. Für jede Mode gibt es eine Abschneidewellenlänge $\lambda_m = \frac{1}{m} 2dn$, oberhalb der Transmission der Mode aus geometrischen Gründen nicht möglich ist. n gibt hierbei den Brechungsindex des Kerns, d den Kerndurchmesser an. Speziell muß ein Lichtwellenleiter, der bei 493 nm nur noch die Grundmode TE_{00} transmittiert einen Kerndurchmesser kleiner als 246.5 nm/n aufweisen. Einen solchen Wellenleiter bezeichnet man als „single mode“-Wellenleiter, er erfüllt auch für die Wellenlänge des roten Lasers (650nm) die Abschneidebedingung für höhere Moden. Auch für das rote Licht wird die TE_{00} Mode transmittiert. Da die Grundmode ein gaußförmiges Strahlprofil aufweist, eignet sich ein Singlemode-Lichtwellenleiter hervorragend dazu, eine homogene, gaußförmige Feldverteilung zu erzeugen.

Die beiden Laser sind, nachdem sie durch den selben Lichtwellenleiter geführt wurden, optimal miteinander überlagert. Werden hinter dem Wellenleiter nur achromatische optische Elemente verwendet, so befinden sich die Fokusse beider Laser am selben Ort. Da der Wellenleiter als flexible Glasfaser aufgebaut ist, eignet er sich zudem zur exakten Ausrichtung des Lasers, ohne daß weitere Spiegel notwendig sind.

In diesem Experiment wird eine polarisationserhaltende Faser verwendet. Diese besteht aus einem doppelbrechenden Kern, der in zwei zueinander orthogonalen Polarisationsrichtungen unterschiedliche Brechungsindizes aufweist. Strahlt man ein linear polarisiertes Lichtfeld so ein, daß die Polarisationsachse mit einer der optischen Hauptachsen des Kristalls zusammenfällt, so bleibt die Polarisation bei Transmission durch die Faser erhalten.

Verluste ergeben sich bei Verwendung des Lichtwellenleiters durch die Einkopplung des Laserstrahls in die Faser. Ein Wirkungsgrad von 100% wäre nur zu erreichen, wenn der eingekoppelte Strahl schon ein der TE_{00}-Mode entsprechendes gaußförmiges Strahlprofil hätte. Bei der Verwendung des Wellenleiters zur Strahlformung geht also der Anteil des Lichtes, der nicht der gaußförmigen Intensitätsverteilung entspricht verloren. Ferner geht der Anteil des Lichts

verloren, der in einem großen Winkel auf das Faserende trifft und daher die Grenzschicht zwischen Kern und Mantel mit einem kleinern als den Grenzwinkel für Totalreflexion erreicht. In dem Experiment geschieht die Einkopplung mit Hilfe einer kommerziellen Einkoppeleinheit. Diese besteht aus einer Linse, die ungefähr eine Brennweite vom Faserende entfernt gelagert ist. Sie läßt sich im Abstand vom Faserende, sowie in zwei Winkeln verstellen, so daß nahezu kollimiertes Laserlicht mit einem Strahldurchmesser von weniger als 1 mm mit hinreichender Genauigkeit auf das Faserende fokussiert wird.

5.4 Die Hochfrequenzionenfalle

Zur Speicherung und Präparation des einzelnen Ions wird in dieser Arbeit eine Hochfrequenzionenfalle nach W. Paul [Pau 58] verwendet. Diese besteht aus einem Ring mit einem Innendurchmesser von 1 mm sowie aus zwei Endkappen im Abstand von je 0.5 mm zum Ringzentrum. Alle Elektroden bestehen aus 0.2 mm dickem Molybdändraht. An den Endkappen kann eine Spannung gegen den Ring angelegt werden. Das Anlegen einer solchen Spannung führt zu einem Quadrupolpotential der Form:

$$\Phi(r,z) = \frac{\Phi_0}{r_0^2 + 2z_0^2}(r^2 - 2z^2) \tag{5.2}$$

wobei die Richtungen in Zylinderkoordinaten gegeben sind und die z-Achse in Richtung der Endkappen gelegt ist. Das Potential ist exakt, falls die Endkappen die Form eines zweischaligen und der Ring die eines einschaligen Rotationshyperboloids hat. r_0 bezeichnet die radiale Halbachse, z_0 die dazu senkrechte Halbachse. In diesem Experiment weist die Falle nicht exakt diese Form auf. Die Symmetrie der Falle erzeugt aber ein Potential, daß im Zentrum einen Sattelpunkt hat, der in erster Näherung dem Potential aus Gleichung 5.2 entspricht.

Ein statisches Quadupolpotential ist in einer Raumrichtung fokussierend, in der anderen aber defokussierend. Legt man jedoch eine Gleichspannungsamplitude V_{dc}, sowie eine dieser überlagerte Wechselspannungsamplitude V_{ac} an, so kann man ein Potential erreichen, das im zeitlichen Mittel in allen Raumrichtungen fokussiernd wirkt. Es ergibt sich also das zeitlich veränderliche Potential

$$\Phi_0(t) = V_{dc} + V_{ac}\cos(\Omega t) \tag{5.3}$$

dabei ist $\Omega/2\pi$ die Frequenz der Wechselspannung.

Das Potential führt nun zu den Bewegungsgleichungen [Sie 91]

$$\begin{aligned} \ddot{r} + \tfrac{e}{mr_0^2}\left(V_{dc} + V_{ac}\cos(\Omega t)\right) r &= 0 \\ \ddot{z} - \tfrac{2e}{mr_0^2}\left(V_{dc} + V_{ac}\cos(\Omega t)\right) z &= 0 \end{aligned} \tag{5.4}$$

Diese lassen sich in Form der Mathieuschen Differentialgleichungen schreiben:

$$\ddot{x}_i(\nu) + (a_i - 2q_i\cos(2\nu))x_i(\nu) = 0 \qquad \text{mit } i = x, z \tag{5.5}$$

wobei $\nu = \Omega/2t$ ist und a_i proportional zur Gleichspannungsamplitude, q_i proportional zur Wechselspannungsamplitude ist. Die Lösung dieser Differentialgleichungen ist

$$x(\nu) = A \sum_{-\infty}^{\infty} C_{2n} \cos((\beta + 2n)\nu) + B \sum_{-\infty}^{\infty} C_{2n} \sin((\beta + 2n)\nu) \qquad (5.6)$$

wobei die Entwicklungskoeffizienten C_{2n} sowie die Größe β Funktionen der Parameter a_i und q_i sind.

Nur für spezielle Werte von a_i und q_i ergeben sich Lösungen, bei denen die Bewegungsamplitude des Ions für lange Zeiten innerhalb des Fallenbereiches bleibt. Diese Werte befinden sich innerhalb eines Stabilitätsbereiches. Für Werte von a_i und q_i, die klein gegen eins sind, gehen die Koeffizienten C_{2n} mit wachsendem n schnell gegen Null. Es ergibt sich dann, indem nur die Koeffizienten C_0, C_2 und C_{-2} berücksichtigt werden:

$$x_i(t) = \sqrt{A^2 + B^2}(1 - \frac{q_i}{2}\cos(\Omega t))\cos(\frac{\beta_i \Omega}{2}t - \phi) \qquad (5.7)$$

Die Ionen oszillieren also mit der Frequenz $\omega_i = \frac{\beta_i \Omega}{2}$, der Säkularfrequenz. Die Amplitude oszilliert dabei mit der treibenden Frequenz Ω. β_i ist kleiner als Eins und wird näherungsweise durch $\beta_i = a_i + q_i^2/2$ bestimmt. Die Oszillation mit der treibenden Frequenz wird als Mikrobewegung bezeichnet, die Oszillation mit der Säkularfrequenz als Makrobewegung.

Gemittelt über eine Periode der Mikrobewegung ergibt sich nun eine harmonische Schwingung des Ions, mit unterschiedlichen Säkularfrequenzen in z- und in r-Richtung, ω_z und ω_r.

5.4.1 Vakuumapparatur

Um das Ion beobachten zu können, ohne daß es durch Stöße mit anderen Molekülen gestört wird, befindet sich die Ionenfalle im Hochvakuum. Durch eine Ionengetterpumpe mit einer Saugleistung von 8 l/s wird ein Druck von ca. $4 \cdot 10^{-10}$ Torr aufrechterhalten. Der Strom durch die Ionengetterpumpe ist proportional zum Druck, so daß dieser zur Kontrolle des Vakuums herangezogen werden kann.

5.4.2 Speichern des Ions

In der Vakuumapparatur befinden sich außer der Ionenfalle eine Elektronenkanone und ein Bariumofen. Als Ofen wird ein dünnes, mit Barium gefülltes Metallrohr verwendet. Dieses wird durch einen elektrischen Strom aufgeheizt und verdampft auf diese Weise elektrisch neutrale Bariumatome. Aufgrund der geringen Wärmekapazität des Ofens kann dieser schnell aufgeheizt werden und kühlt wieder rasch ab.

Es wurde bereits gezeigt, daß die Ionenfalle im zeitlichen Mittel über die Mikrobewegung ein annähernd harmonisches Potential darstellt. Ein Ion, das in dieses Potential hineinfällt, wird in das Potential genügend stark hineinbeschleunigt werden, um das Potential auch wieder verlassen zu können. Um ein Ion in die Falle einzuspeichern ist es also nötig, ein Ion in der Falle zu präparieren, dessen kinetische Energie nicht ausreicht, um die Falle zu verlassen. Man verwendet hierzu neutrale Bariumatome, die aus dem Bariumofen durch die Falle fliegen. Da das elektrische Feld an die neutralen Atome nicht angreift, werden diese auch nicht in die Falle hineinbeschleunigt. Schaltet man nun die Elektronenkanone ein, so daß ein Strom von Elektronen genügender Energie ebenfalls durch die Falle geht, so kommt es vor, daß ein Bariumatom innerhalb der Falle durch Stoß mit einem Elektron ionisiert wird. Das nun in der Falle entstandene Bariumion erfährt das speichernde Potential und kann, sofern seine kinetische Energie nicht ausreicht, die Falle nicht mehr verlassen. Die Dopplerkühlung durch den grünen Laser sorgt nun dafür, daß das Ion weiter abgekühlt wird und die Falle nicht mehr verläßt. Außerdem sorgen die Laser dafür, daß ein gespeichertes Ion sofort fluoresziert, wodurch der Speichervorgang mit bloßem Auge kontrollierbar ist.

Damit die Dopplerkühlung funktioniert, muß der grüne Laser zur niederfrequenten Seite der Resonanz verstimmt sein. Um zu kontrollieren ob in der Falle ein oder mehrere Ionen gespeichert sind, wird der grüne Laser für kurze Zeit zu höheren Frequenzen verstimmt. Das Ion oder die Wolke von Ionen beginnt dann sich aufzuheizen. Ist nun eine Wolke von mehreren Ionen gespeichert, so beginnt diese sich aufzublähen. Ein einzelnes Ion bleibt punktförmig, oder es wird auf eine Bahn beschleunigt, deren Projektion man im Mikroskop erkennen kann.

5.5 Detektor und Signalaufnahme

Hinter der Ionenfalle wird das grüne Licht durch einen Farbfilter ausgeblendet. Das rote Licht wird mit Hilfe einer Lawinen-Photodiode (APD) [G11] aufgenommen und einem empfindlichen Verstärker [G12] zugeführt. Abbildung 5.7 zeigt ein schematisches Bild der Signalaufnahme. Das verstärkte Signal wird mit einem Lock-In-Verstärker [G13] selektiv bei der Modulationsfrequenz verstärkt. Hierzu wird das Signal im Lock-In-Verstärker aufgeteilt und mit zwei Referenzfrequenzen gemischt. Die eine Referenzfrequenz entspricht in Frequenz und Phase der Modulationsfrequenz, die andere Frequenz ist dieser gegenüber um 90^o phasenverschoben. Die Ausgangssignale der beiden Mischer enthalten nun je einen Gleichstromanteil, der zum Signal bei der Modulationsfrequenz proportional ist. Diese werden durch Ausgangsverstärker mit Tiefpassverhalten von höheren Frequenzen befreit und weiter verstärkt. Die Ausgänge werden getrennt je einem Analog-Digital-Konverter [G15] zugeführt und zur Auswertung gespeichert.

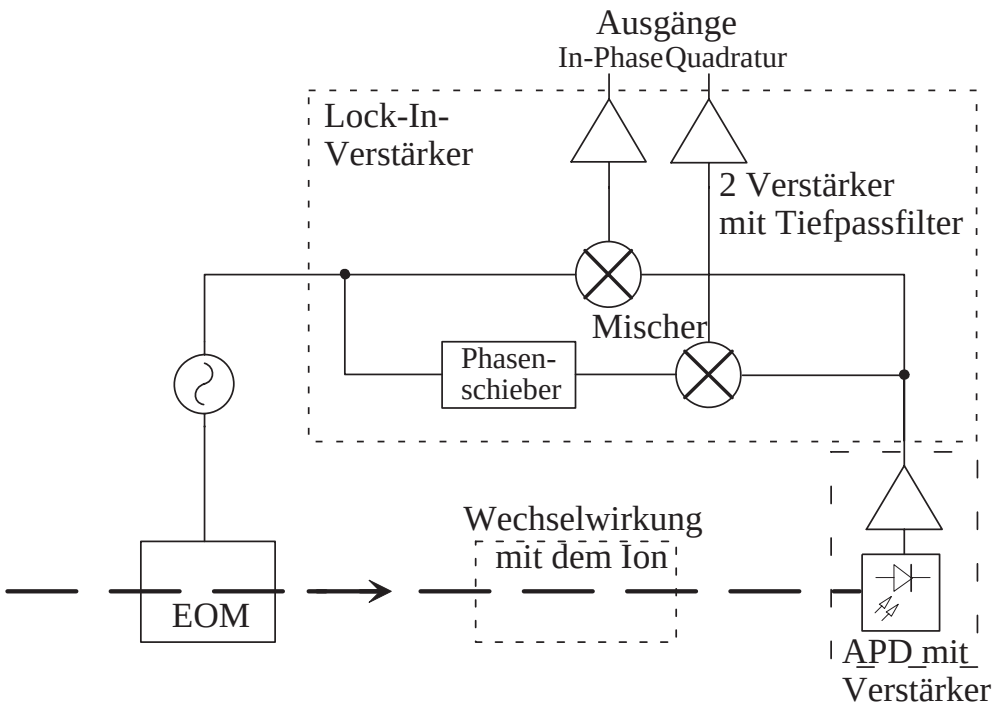

Abbildung 5.7: Schematiche Darstellung der Signalaufname mit einem Lock-In-Verstärker.

Kapitel 6

MT-Spektrum eines einzelnen Barium-Ions

6.1 Übersicht über das Experiment

Abbildung 6.1 gibt einen Überblick über das durchgeführte Experiment zur Modulationstransferspektroskopie. Die Laserstrahlen bei 493 nm und 650 nm werden jeweils in einem Strahlteiler aufgeteilt, wobei ca. 80% der Intensität durch den vorderen und 20% durch den seitlichen Strahlengang gelangen. Der vordere Strahlengang wird benutzt um ein Ion zu speichern und zu kühlen, wärend das Mikroskop [G14] im seitlichen Strahlengang zur Kontrolle der Speicherung Verwendung findet. Ist das Ion gefangen, so wird es durch den seitlichen Strahlengang beleuchtet und der vordere Strahlengang wird abgeschattet. Das ist sinnvoll, weil das Mikroskop einen wesentlich kleineren Fokus ($< 15\mu m$) erreicht, als es mit der Optik im vorderen Strahlengang möglich ist (ca. $200\mu m$). Auf diese Weise kann man die gleiche Feldstärke am Ort des Ions mit wesentlich geringerer Strahlintensität erreichen. Das Hintergrungsignal an der APD wird also geringer.

Der Polarisator, welcher sich direkt vor der Vakuumapparatur im vorderen Strahlengang befindet gehört zu der Intensitätseinstellung, wie sie in Abschnitt 5.2.5 beschrieben ist. Um die Intensität der Strahlen im seitlichen Strahlengang einstellen zu können, befindet sich im seitlichen Strahlengang direkt vor dem Lichtwellenleiter ebenfalls ein Polarisator. Mit Hilfe der $\frac{\lambda}{2}$-Verzögerungsplatten in den Strahlengängen beider Laser lassen sich die Intensitäten der Laser im seitlichen Strahlengang regeln.

Der Polarisator und der Wellenleiter sind so aufeinander abgestimmt, daß die Polarisation bei Durchgang durch die Faser erhalten bleibt. Die Polarisation am Ort des Ions kann durch Drehen der Auskoppeleinheit des Wellenleiters gewählt werden. Durch Verschieben des Mikroskopes, wird der Fokus auf das Fallenzentrum gelenkt, in dem sich das Ions befindet.

Im Mikroskop ist ein Strahlteiler integriert. Mit diesem wird ein Teil des vom

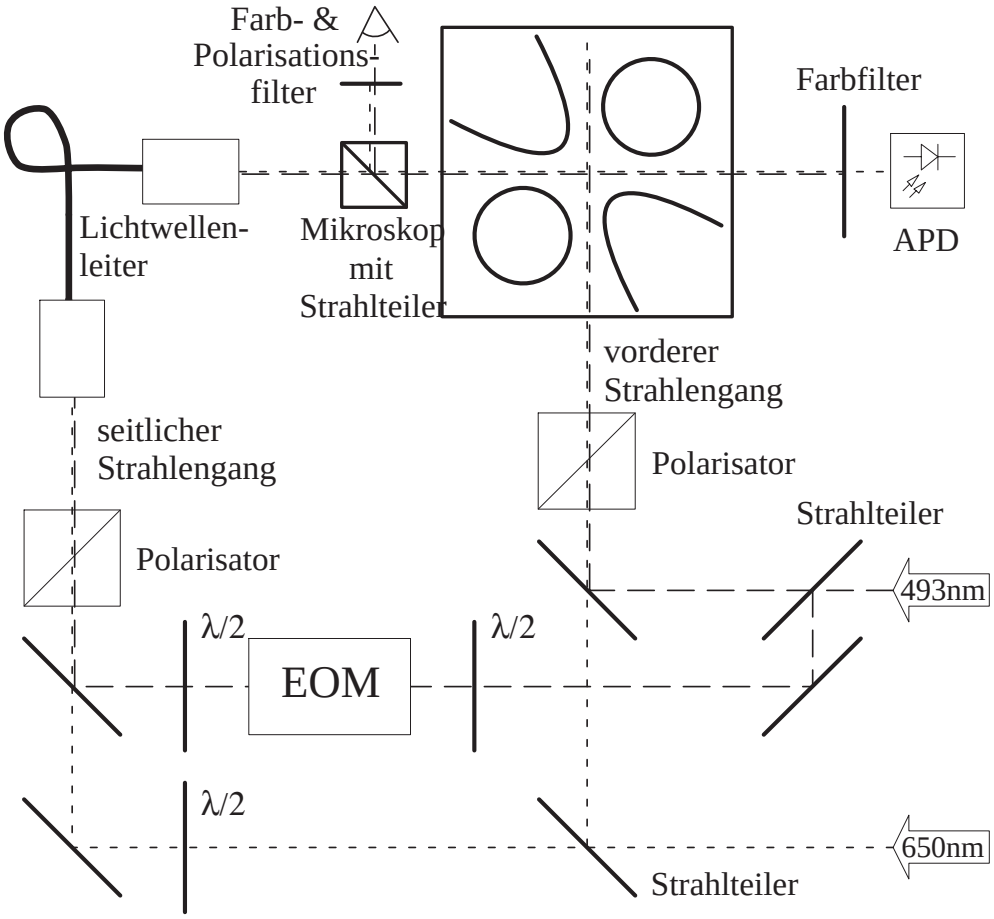

Abbildung 6.1: Experimenteller Aufbau für die Modulationstransfer-Spektroskopie

Ion kommenden Fluoreszenzlichts ausgekoppelt und kann mit dem bloßen Auge betrachtet werden. Das menschliche Auge ist so empfindlich, daß auch einzelne Photonen noch wahrgenommen werden können, es eignet sich jedoch nicht zur quantitativen Bestimmung der Lichtstärke. Da die Fluoreszenz des Ions zu drei Vierteln aus grünem Licht bei 493 nm besteht und das Auge zudem in diesem Bereich empfindlicher ist als im roten Spektralbereich, wird das rote Licht mit einem Farbfilter herausgefiltert. Zusätzlich befindet sich im Beobachtungskanal ein Polarisationsfilter, das das linear polarisierte Streulicht des grünen Lasers herausfiltert. Die Polarisation des Fluoreszenzlichts ist zufällig verteilt, so daß durch dieses Filter die Hälfte des Floureszenzlichts herausgefiltert wird. Das Polarisationsfilter verschlechtert also die absolute Intensität des Fluoreszenzlicht, verbessert aber den Kontrast von Fluoreszenz- zu Streulicht und erhöht damit die Sichtbarkeit des Ions.

Das grüne Lichtfeld wird mit Hilfe des EOMs im seitlichen Strahlengang phasenmoduliert. Hierbei ist es wichtig, daß das Licht genau senkrecht durch die Kristalloberflächen tritt. Um das zu gewährleisten ist der Modulator auf einem Dreh- und Verschiebetisch mit zwei Translations- und drei Rotationsachsen ge-

lagert. Mit Hilfe der $\frac{\lambda}{2}$-Verzögerungsplatte vor dem EOM wird die Polarisation so eingestellt, daß hinter dem Kristall nur ein Strahl — der ordentliche, also nicht versetzte Strahl — zu sehen ist. Die Verzögerungsplatte hinter dem EOM wird in Verbindung mit dem Polarisator vor der Faser zur Intensitätsregelung verwendet.

6.2 Durchführung der Messung

Zunächst werden beide Laser im seitlichen Strahlengang abgeschattet und das Fallenzentrum wird nur durch den vorderen Strahlengang beleuchtet. In dieser Konstellation wird mit Bariumofen und Elektronenkanone ein Ion eingespeichert, wie es im vorherigen Kapitel beschrieben wurde. Dieses wird, sobald es gespeichert ist, durch die beiden Laser gekühlt.

Nun wird zunächst nur der rote Laser in dem seitlichen Strahlengang geöffnet. Da sich im Beobachtungskanal ein grünes Farbfilter befindet, wird dadurch kein Streulicht sichtbar, so daß sich der Kontrast nicht verschlechtert. Die Strahllage des seitlichen Strahlengangs wird so einjustiert, daß das Ion beim Abschatten des roten Lasers im vorderen Strahlengang sichtbar bleibt. Liegt der Brennpunkt des seitlich eingestrahlten Lichts nicht genau im Fallenzentrum, so verschwindet die Fluoreszenz des Ions beim Abschatten des vorderen Strahlengangs.

Gelingt es durch räumliches Verschieben der Strahllage nicht, das Ion wieder zur Fluoreszenz anzuregen, so ist es notwendig, die Intensität des Lasers im seitlichen Strahlengang, oder die Verstimmungen der Laser zu ändern. Das ist deshalb erforderlich, weil die Intensitäten der Lichtfelder am Ort des Ions einen starken Einfluß auf die Linienform der Fluoreszenz haben. Beim Einspeichern des Ions wurden die Intensitäten im vorderen Strahlengang so gewählt, daß das Ion optimal sichtbar wird. Die Intensitäten des seitlichen Strahlengangs am Ort des Ions können aber nicht direkt gemessen werden. Es ist darum nicht möglich, sie zu denen in vorderen Strahlengang identisch einzustellen. Durch Probieren wird eine Kombination von Verstimmungen und Intensitäten eingestellt, die dazu führt, daß das Ion sichtbar aufleuchtet, wenn es mit dem Brennpunkt des seitlichen Strahlengangs getroffen wird.

Ist der seitliche Strahlengang räumlich richtig justiert, so wird zusätzlich der grüne Laser im seitlichen Strahlengang geöffnet. Da auch mit dem Polarisationsfilter die vollständige Unterdrückung des Streulichts nicht möglich ist, verschlechtert sich hierdurch der Kontrast von Fluoreszenzlicht zu Streulicht erheblich. Der vordere Strahlengang wird nun vollständig abgeschattet und für das weitere Experiment nicht mehr benötigt. Die Intensitäten und Wellenlängen der Laser im seitlichen Strahlengang werden so eingestellt, daß die Fluoreszenz des Ions gut zu sehen ist.

War die Falle mit einer Wolke von mehreren Ionen bestückt, so sind bei dem Versuch, die Laser im seitlichen Strahlengang einzurichten, jedesmal alle Io-

nen außer eines verloren gegangen. Es ist also mit dem hier beschriebenen Aufbau nicht möglich gewesen, eine Wolke von Ionen zu untersuchen. Eine mögliche Erklärung hierfür ist in der Laserkühlung zu finden. Die Kühlung enthält drei Anteile: Zum einen trägt die Absorption jedes der beiden Laser dann zur Kühlung bei, wenn die Laserfrequenz gegenüber einer Resonanz zu kleinen Energien verstimmt ist. Zum anderen bewirken Zwei-Photon-Prozesse dann Kühlung, wenn die Differenzfrequenz zwischen beiden Lasern gegenüber der Raman-Resonanz zwischen dem S- und dem D-Niveau zu kleinen Energien verstimmt ist. Der letzte Anteil, der als Raman-Kühlung bezeichnet ist, erreicht aufgrund der schmalen Resonanz sehr kleine Bewegungsenergien. Befindet sich der Versuchsaufbau in der Konstellation, daß das grüne Licht durch den vorderen, daß rote Licht aber durch den seitlichen Strahlengang eingestrahlt wird, so wirkt die Dopplerverschiebung nicht mehr für beide Lichtfelder in die gleiche Richtung. In bestimmten Bewegungsrichtungen eines Ions kann sich so die Verstimmung der Laser zueinander Umkehren. Das Ion wir dann aus der Falle herausbeschleunigt. Befinden sich nun mehrere Ionen in der Falle, so befindet sich nur eines genau im Fallenzentrum, die anderen bewegen sich um dieses Ion herum, und haben größere Geschwindigkeiten, so daß sie leicht herausbeschleunigt werden können.

Nun können die MT-Signale aufgenommen werden. Dazu wird an dem EOM eine Modulationsfrequenz von 18.55 MHz angelegt, die zur Phasenmodulation des grünen Lichts führt. Diese Frequenz wird dem Lock-In-Verstärker als Referenz zugeführt. Das Licht, das das Ion durch den seitlichen Strahlengang durchleuchtet hat, wird durch ein Farbfilter von den modulierten grünen Komponenten befreit. Dann wird das rote Licht mit der APD aufgenommen und dem Lock-In-Verstärker zugeführt. Die Ausgänge des Lock-In-Verstärkers werden mit dem CAMAC-Datennahmesystem digitalisiert und zur Auswertung gespeichern.

6.3 Nachweis eines MT-Signals

Abbildung 6.2 zeigt eine zeitliche Messung des MT-Signals über 930 Sekunden. Vom Anfang der Messung bis zum Zeitpunkt 1 wurden die Parameter im Rahmen der Kontrollierbarkeit konstant gehalten. Die Modulationsfrequenz beträgt 18.55 MHz der Modulationsindex liegt bei 1.15 ± 0.06. Die Konstante u für die Zeeman-Aufspaltung beträgt ca. 7 MHz, konnte aber nicht direkt vor der Messung kontrolliert werden.

Am Zeitpunkt 1 wurde dann der rote Laser zu kleineren Frequenzen verstimmt, bis die Fluoreszenz des Ions nicht mehr beobachtbar war. Die Intensität der Lichtfelder wurde hierbei nicht beeinflußt. Nun wurden die Parameter wieder bis zum Zeitpunkt 2 konstant gehalten. An diesem Zeitpunkt wurde der rote Laser wieder von Hand in Richtung der Resonanz abgestimmt, bis das Ion wieder deutlich zu erkennen war. Von da an wurden die Parameter wieder konstant gehalten.

Bei dieser Messung wurde nur ein Kanal des Lock-In-Verstärkers ausgelesen.

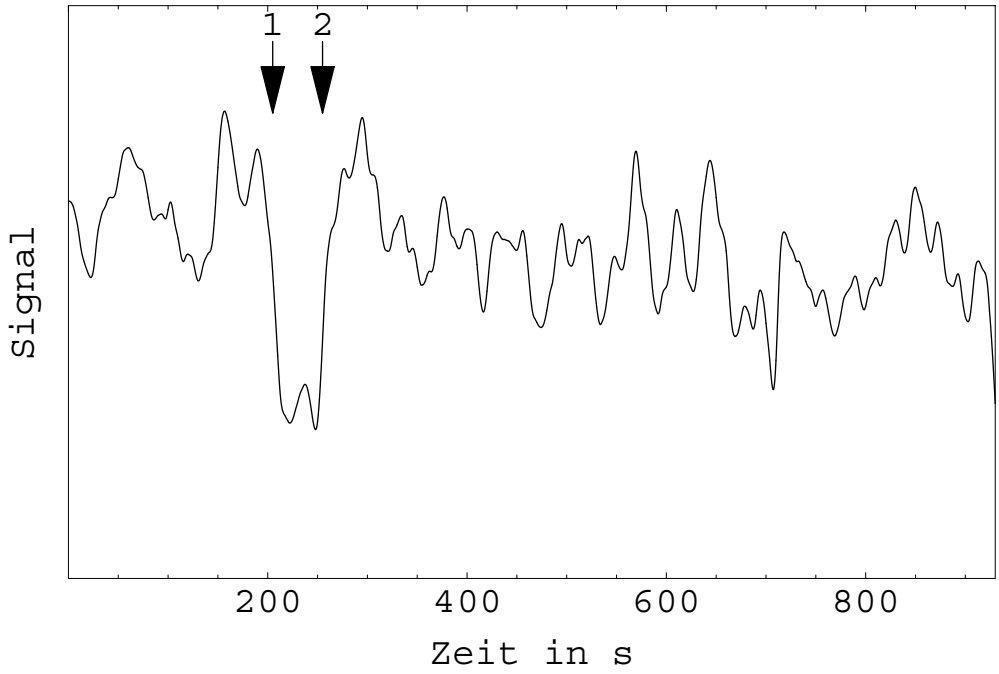

Abbildung 6.2: Zeitlicher Verlauf des MT-Signals: Zur Zeit 1 wurde der rote Laser so weit zu kleineren Frequenzen Verstimmt, daß die Floureszenz verschwand. Zur Zeit 2 wurde der Laser wieder auf die Resonanz gefahren, so daß das Ion sichtbar wurde.

Zusätzlich wurden die Kontrollsignale der Frequenzstabilisierungen beider Laser aufgenommen, so daß mit Sicherheit angenommen werden kann, daß die Frequenzen stabil waren. Auch die Intensitätsregelungen beider Laser wurden wärend der Messung überwacht und nicht verändert.

Es ist eine deutlich Abnahme des Signals an dem Zeitpunkt zu erkennen, an dem die Frequenz des roten Lasers verstimmt wurde. Am Zeitpunkt 2, an dem die Frequenz wieder auf die Resonanz zurückgestellt wurde nimmt auch das Signal wieder erkennbar zu. Ein solcher Signalverlauf wurde mehrfach beobachtet, so daß eine zufällige Korrelation zwischen Verstimmung und Absinken des Signals ausgeschlossen werden kann. Auch ist kein Effekt bekannt, der den Untergrund bei Verstimmung im Bereich von einigen zehn MHz so stark ändern könnte, daß das beobachtete Signal als Untergrundeffekt gedeutet werden könnte. Die Wirkung des EOM ist zwar wellenlängenabhängig, die Verstimmung der Laserfrequenz um 100 MHz würde aber nur eine Wellenlängenänderung von ca. 0.2 ppm bewirken. Um die Fluoreszenz des Ions auf ein nicht mehr sichtbares Maß herunterzuregeln ist jedoch eine deutlich geringere Verstimmung als 100 MHz nötig (Siehe Fluoreszenzlinien in Abschnitt 4.2 oder bei [Sie 91]).

Der beobachtete Signalverlauf ist also auf eine Wechselwirkung der Lichtfelder mit dem Ion zurückzuführen. Die Absorption eines einzelnen Ions wurde zweifelsfrei nachgewiesen.

Aus dieser Messung läßt sich ein Signal-zu-Rausch-Verhältnis von ca. 2:1 ab-

schätzen. Außerdem ist eine langsame Drift des Signals zu beobachten, die im Zeitbereich von ca. 400–700 Sekunden zur tendenziellen Abnahme des gemessenen Signals führt.

6.4 MT-Spektrum

Als nächstes wurden MT-Spektren aufgenommen, bei denen der rote Laser mittels des AOMs durchgestimmt wurde. Ein solches Spektrum ist in Abbildung 6.3 dargestellt. Im oberen Teilbild wurde begonnen, die Frequenz des roten Lasers zu höheren Frequenzen zu verstimmen. Nach einer Verweildauer von wenigen Sekunden am rechten Rand wurde die Verstimmung wieder in die Gegenrichtung gefahren. Den Verlauf der Signale wärend des Rücklaufs gibt das mittlere Teilbild wieder. Im unteren Teilbild wurde die Frequenz erneut in positiver Richtung verstimmt. Der Nullpunkt der Verstimmung ist willkürlich.

Abbildung 6.4 zeigt drei theoretische Spektren im gleichen Frequenzmaßstab zum Vergleich. Dabei wurden verschiedene Sättigungsparameter gewählt. Die längeren Markierungen am unteren Rand geben die Positionen der Dunkelresonanzen an, die kürzeren Markierungen sind den langen gegenüber um die Modulationsfrequenz 18.55 MHz verschoben. Bei großen Intensitäten sind die Einflüsse unterschiedlicher Resonanzen offensichtlich nicht mehr aufzulösen. Die Markierungen befinden sich weder an den Spitzen der Signale, noch an deren größten Steigungen, so daß die Signalform weder rein dispersiv noch absorptiv verstanden werden kann.

Die Markierungen, wie sie sich im Abbildung 6.4 befinden wurden auch in die Messung (Abb. 6.3) eingetragen, wobei eine Verstimmung des grünen Lasers von -28 MHz angenommen wurde. Im unteren Teilbild stimmen die Abstände der gefundenen Strukturen in etwa mit denen der Strichmarken überein. Dies ist jedoch nicht in den beiden oberen Teilbildern reproduziert. Hierfür könnte die Drift unbekannten Ursprungs verantwortlich sein, die auch in Abblidung 6.2 zu erkennen ist. Lineares Driften der Laserfrequenz würde zu Verzerrungen im Spektrum führen, die sich durch Verbreiterung der Strukturen bei Verstimmung in Richtung der Drift, sowie durch Stauchung der Strukturen bei Verstimmung gegen die Drift bemerkbar machen würde. Auch der stark verrauschte Untergrund kann dazu führen, daß die gemessenen Strukturen durch zufällige Schwankungen überdeckt werden.

Für das Vorhandensein einer Linearen Frequenzdrift spricht die aus zwei Spitzen bestehende Struktur in der Mitte des oberen Teilbildes. Eine solche Struktur ist auch im mittleren Teilbild zu erkennen, dort ist sie jedoch um ca. 5 MHz zu niedrigen Frequenzen verschoben. Der Abstand der beiden Maxima ist ein wenig größer. Im unteren Teilbild ist diese Struktur in der Form nicht mehr zu erkennen.

Starkes Rauschen, mit einem Signal-zu-Rausch-Verhältnis von nur etwa 2:1 wurde bereits Abbildung 6.2 nachgewiesen.

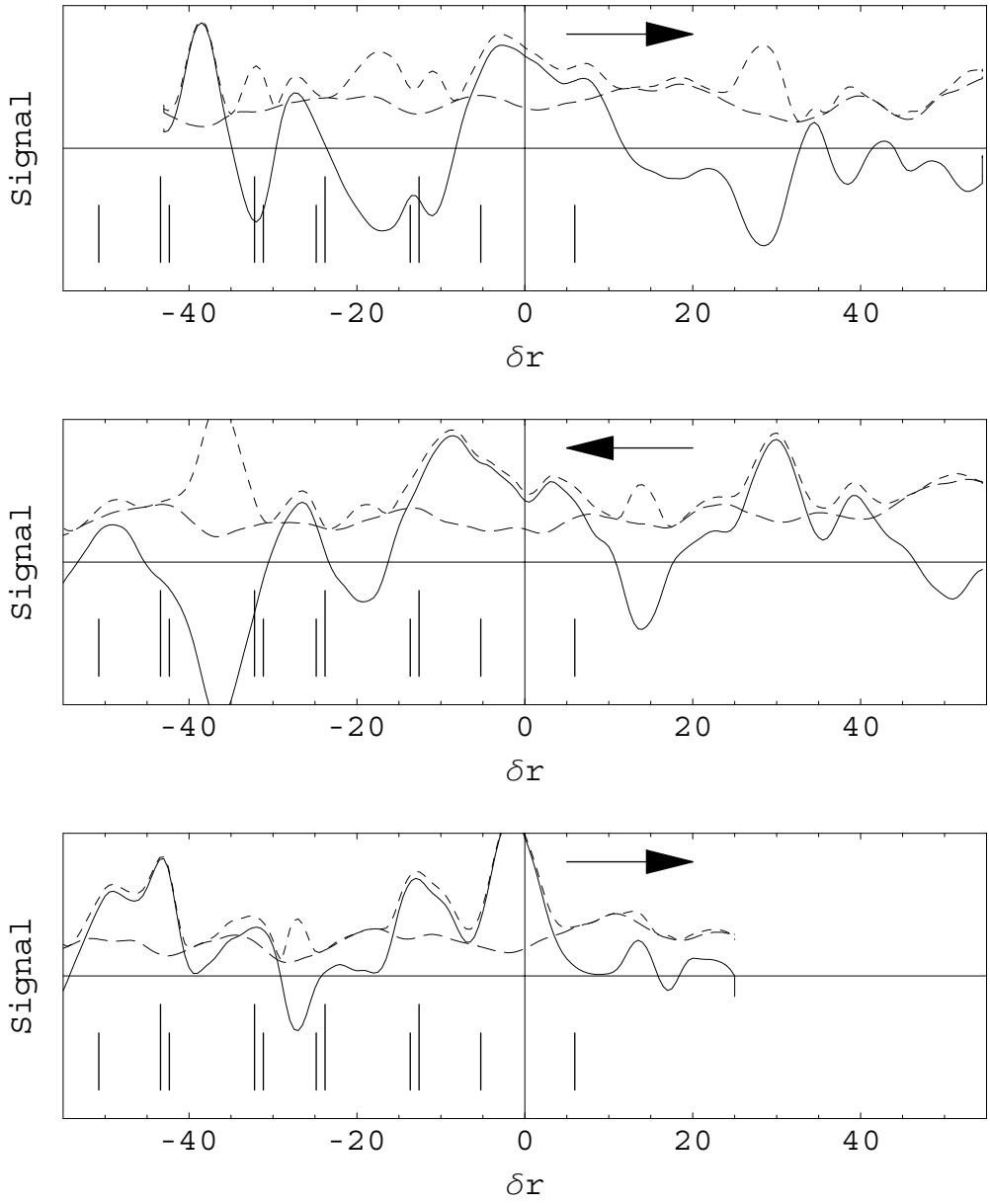

Abbildung 6.3: MT-Spektrum: Inphase- (duchgezogen) und Quadratursignal (grob gestrichelt), wie sie mit dem Lock-In-Verstärker gemessen wurden. Fein gestrichelt ist der Betrag der Signale eingezeichnet. Oben: Beginn der Messung mit positiver Verstimmung des roten Lasers. Mitte: Der Laser wird über den gleichen Bereich zurück Verstimmt. Unten: Zweites Abfahren des Bereichs in positiver Richtung. Der Nullpunkt der Verstimmung ist willkürlich gewählt. Jeweils im unteren Bereich der Bilder befindet sich ein Streifenmuster, das mögliche Positionen der Dunkelresonanzen sowie der um die Modulationsfrequenz verschobenen Dunkelresonanzen anzeigt.

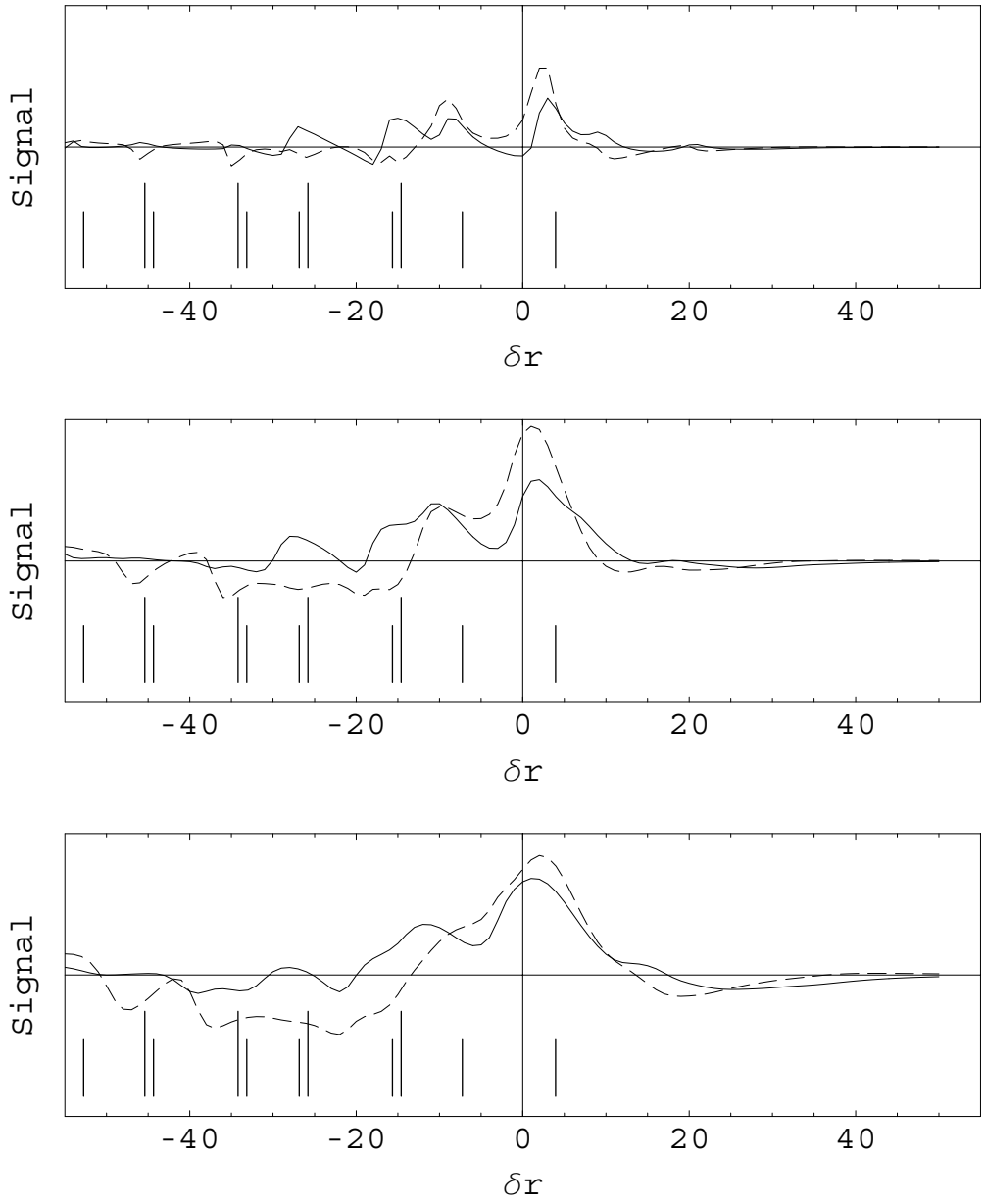

Abbildung 6.4: Theoretische Spektren zum Vergleich mit der Messung: Die Zeeman-Aufspaltung wurde mit $u = 7$ MHz angenommen. Modulationsfrequenz und Modulationsindex wurde wie im Experiment auf $\Omega = 18.55$ MHz und $M = 1.15$ gesetzt. Die Verstimmung des grünen Lasers beträgt $\delta g = -30$ MHz. Die Dunkelresonanzen sind durch lange Striche angedeutet. Die kurzen Striche zeigen die um Ω verschobenen Dunkelresonanzen an. Die Sättigungsparameter sind: Im oberen Teilbild: $\mathrm{sat}_g = \mathrm{sat}_r = 1$. Im mittleren Teilbild: $\mathrm{sat}_g = \mathrm{sat}_r = 1.6$. Im unteren Teilbild: $\mathrm{sat}_g = 2.2$ und $\mathrm{sat}_r = 1.6$.

Die eindeutige Zuordnung von gemessenem Inphase- und Quadratursignal zu den Anteilen des theoretisch berechneten Signals ist deshalb nicht möglich, weil in den zwischengeschalteten Verstärkern und im Schwingkreis am EOM unbekannte Phasenverschiebungen auftreten. Die Übereinstimmung der Meßkurve mit den theoretischen Signalen reicht nicht aus, um eine Anpassung zur Eichung der Phasenlage vornehmen zu können.

Die theoretischen Kurven in Abbildung 6.4 zeigen ein Problem bei der günstigsten Wahl der Intensitäten auf: Für kleinere Intensitäten werden die Strukturen schmaler und das Signal ist leichter zu interpretieren. Die Stärke der Signale nimmt jedoch ab, so daß ein ungünstigeres Signal-zu-Rausch Verhältnis zu erwarten ist. In der Messung wurden die Intensitäten so gewählt, daß das Ion im Mikroskop gut sichtbar ist.

Kapitel 7

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden zwei Verfahren der hochauflösenden Absorptionsspektroskopie am einzelnen Barium-Ion theoretisch untersucht. Eines davon wurde experimentell durchzuführen versucht.

Zur theoretischen Untersuchung wurde das Verfahren der optischen Blochgleichungen verwendet, das sich zur Berechnung der Wechselwirkung von Atomen mit klassischen Lichtfeldern eignet. Ausgehend vom Zwei-Niveau-System wurde das Verfahren auf ein Λ-förmiges Drei-Niveau-System erweitert. In diesem System können Zwei-Photon-Effekte, wie die Dunkelresonanzen und die damit verbundenen Hellresonanzen studiert und verstanden werden. Aufgrund der Entartung des D-Niveaus kann das Modellsystem — ein einfach positiv geladenes Bariumion — jedoch nicht als Drei-Niveau-System beschrieben werden. Durch Einführung eines externen Magnetfeldes, welches die Entartung aufhebt und eine Quantisierungsachse festlegt, ergibt sich ein Acht-Niveau-System, für das im nächsten Schritt die optischen Blochgleichungen aufgestellt und die sich einstellenden stationären Zustände untersucht wurden. Zur Lösung der stationären Zustände ergibt sich ein lineares Gleichungssystem mit 63 Unbekannten.

Unter Verwendung eines Matrixkettenbruchverfahrens wurde der Einfluß untersucht, den die Modulation des einen oder anderen Lichtfeldes auf den stationären Zustand des Systems hat. Davon ausgehend konnten mit Hilfe der Dipolmatrixelemente des Ions Aussagen über das von dem Ion abgestrahlte elektromagnetische Feld gemacht werden. Die Überlagerung vom ursprünglichen Feld mit dem vom Ion erzeugten Feld ergab das hinter dem Ion beobachtete Feld. Dieses trägt Informationen über das Ion, die mit den Methoden der Modulationsspektroskopie nachgewiesen werden können. Aus den errechneten Feldern konnten theoretische Vorhersagen für Frequenzmodulations-(FM) und Modulationstransfer-(MT) Signale gemacht werden.

In der FM-Spektroskopie wird die Amplitudenmodulation gemessen, die einem phasenmodulierten Lichtfeld aufgeprägt wird, wenn es ein absorptives Medium durchquert. Das Verfahren kann in linearer Näherung erklärt werden. Das Signal weist eine typische dispersive Struktur auf, auf der der Einfluß der Zwei-Photon-Resonanzen sowie anderer nichtlinearer Effekte zusätzliche Strukturen aufprägt.

Bei der MT-Spektroskopie wird die erzeugte Amplitudenmodulation auf einem Lichtfeld nachgewiesen, das vorher weder phasen- noch amplitudenmoduliert war. Der Modulationstransfer entsteht zum einen durch Vier-Wellen-Mischung, bei der aus Träger und Seitenband des einen Lichtfelds dem anderen Lichtfeld ein Seitenband aufgeprägt wird. Zum anderen gibt es dadurch Modulationsübertrag, daß das unmodulierte Lichtfeld eine oszillierende Suszeptibilität vorfindet, die durch das modulierte Lichtfeld verursacht wurde. Der Effekt der Vier-Wellen-Mischung ist dabei wesentlich stärker. Die Vier-Wellen-Mischung kann als Zwei-Photon-Prozess verstanden werden. Im MT-Signal werden daher fast ausschließlich die Einflüsse der Dunkelresonanzen im Acht-Niveau-System des Barium-Ions gesehen. Es hat sich herausgestellt, daß die Leistungsverbreiterung schon sehr schnell zu Überlappungen der durch die einzelnen Resonanzen erzeugten Signalen führt.

Wärend die MT-Spektroskopie ein Signal produziert, das vorwiegend die Breite der Ein-Photon-Resonanz hat, werden mit der MT-Spektroskopie fast ausschließlich die feinen Strukturen der Dunkelresonanzen gesehen.

Im Falle der FM-Spektroskopie wird eine Amplitudenmodulation auf dem Signal nachgewiesen, das zuvor phasenmoduliert wurde. Da es technisch schwierig ist, ein rein phasenmoduliertes Lichtfeld zu erzeugen, ist eine untergrundfreie Messung praktisch nicht möglich. Ein Untergrund aufgrund unerwünschter Amplitudenmodulation des eingestrahlten Feldes ist nicht zu vermeiden. Da bei der schwachen Wechselwirkung eines einzelnen Ions mit dem Lichtfeld eine möglichst untergrundfreie Messung unumgänglich ist, wurde für den experimentellen Teil dieser Arbeit das Verfahren der MT-Spektroskopie verwendet. Hier gibt es deshalb keine Probleme mit dem Untergrund, weil die Amplitudenmodulation auf einem Lichtfeld nachgewiesen wird, daß zuvor nicht moduliert wurde. Untergrund ergibt sich nur aufgrund von stochastischen Fluktuationen in der Lichtintensität sowie durch elektronische Einstrahlungen in die Nachweisapparaturen.

Wie bei Messung eines sehr kleinen Signals zu erwarten war, ist das aufgenommene Signal stark verrauscht. Es wurde ein Signal-zu-Rausch-Verhältnis von etwa 2:1 gemessen. Das starke Rauschen und wahrscheinlich auch eine Drift unbekannten Ursprungs haben es unmöglich gemacht, die berechnete Linienform zweifelsfrei zu verifizieren. Es läßt sich jedoch eindeutig feststellen, daß im Rahmen dieser Arbeiten das MT-Signal eines einzelnen Ions gemessen wurde.

Anhang A

Dipoloperator im Ein-Elektron-Atom

In Abschnitt 4.2 werden die Wechselwirkungen zwischen Lichtfeld und Atom mit Hilfe des elektrischen Dipoloperators $\hat{\mathbf{d}}$ beschrieben. Der Erwartungswert des Dipolmoments ergibt sich dann zu (Gleichung (4.15))

$$\langle \hat{\mathbf{d}} \rangle = \text{Spur}(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}) = \sum_{i=1}^{n} \sum_{j=1}^{n} \mathbf{d}_{ij}\rho_{ji} \tag{A.1}$$

wobei $\mathbf{d}_{ij}$ die elektrischen Dipolmatrixelemente sind.

In diesem Kapitel soll gezeigt werden, wie die Dipolmatrixelemente in einem wasserstoffähnlichen Atom berechnet werden können. Ein wasserstoffähnliches Atom besteht aus einem Z-fach positiv geladenen Kern und einem negativ geladenen Elektron. Da es sich hierbei um ein Zweikörperproblem handelt, ist das System analytisch lösbar und es können die Wellenfunktionen zu den Energie- und Drehimpulseigenwerten angegeben werden.

Das Barium-Ion ist insofern wasserstoffähnlich, als das die 54 Rumpfelektronen abgeschlossene Schalen in Xenon-Konfiguration bilden und damit gemeinsam mit dem Atomkern einen kugelsymmetrischen, zweifach positiv geladenen Atomrumpf bilden, der bei den in dieser Arbeit betrachteten Übergängen nicht angeregt wird. Das Barium-Ion kann man also vereinfachen zu einem Zwei-Körper-System bestehend aus einem zweifach positiv geladenen Rumpf und einem einfach negativ geladenen Valenzelektron.

Abweichungen von dem Wasserstoffpotential ergeben sich dadurch, daß das Valenzelektron eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit im inneren des Rumpfs hat und dort einer stärkeren Ladung durch den Kern ausgesetzt ist. Da aber diese Korrekturen keinerlei Einfluß auf die Rotationssymmetrien haben, können sie nur die Beträge, nicht aber die Richtungen der berechneten Dipolmatrixelemente beeinflussen.

A.1 Wellenfunktionen

Die Wellenfunktion eines Ein-Elektron-Atoms läßt sich als ein Produkt einer radialen und einer sphärischen Komponente darstellen [Bra 83]:

$$\Psi(r,\theta,\phi) = R_{nl}(r)Y_{lm}(\theta,\phi) \tag{A.2}$$

Die radiale Wellenfunktion ist definiert als:

$$R_{nl}(r) = N_{nl}e^{-\rho/2}\rho^l L_{n+l}^{2l+1}(\rho) \qquad , \qquad \rho = \frac{2Z}{na_\mu}r \tag{A.3}$$

wobei $L_{n+l}^{2l+1}(\rho)$ die zugeordneten Laguerre-Polynome sind. Explizit sind sie definiert durch:

$$L_{n+l}^{2l+1}(\rho) = \sum_{k=0}^{n-l-1}(-1)^{k+1}\frac{((n+l)!)^2}{(n-l-1-k)!(2l+1+k)!}\frac{\rho^k}{k!} \tag{A.4}$$

Der Faktor N_{nl} ist ein Normierungsfaktor und hängt von den Quantenzahlen n und l, nicht aber vom Radius ab.

Die sphärischen Komponenten der Wellenfunktion Y_{lm} sind die Kugelflächenfunktionen:

$$Y_{lm}(\theta,\phi) = (-1)m\left(\tfrac{(2l+1)(l-m)!}{4\pi(l+m)!}\right)^{\frac{1}{2}}P_l^m(\cos\theta)e^{im\phi} \quad ,m \geq 0$$

$$Y_{l,-m}(\theta,\phi) = (-1)^m Y_{lm}^*(\theta,\phi) \tag{A.5}$$

mit den zugeordneten Legendre Polynomen $P_l^m(\omega)$.

A.2 Dipolmatrixelemente

Sind die Wellenfunktionen bekannt, so lassen sich die Dipolmatrixelemente in Ortsdarstellung durch das Integral

$$\mathbf{d}_{ij} = \iiint \Psi_i^*(\mathbf{r})e\mathbf{r}\Psi_j(\mathbf{r})\,d^3\mathbf{r} \tag{A.6}$$

berechnen. In Kugelkoordinaten erhält man:

$$\mathbf{d}_{ij} = e\int_0^\infty\int_0^\pi\int_0^{2\pi}\Psi_i^*(r,\theta,\phi)\mathbf{r}\Psi_j(r,\theta,\phi)\,d\phi\sin(\theta)d\theta r^2 dr \tag{A.7}$$

Der Ortsvektor ist hier definiert als

$$\mathbf{r} = (r\sin(\theta)\cos(\phi)\mathbf{x} + r\sin(\theta)\sin(\phi)\mathbf{y} + r\cos(\theta)\mathbf{z}) \tag{A.8}$$

wobei $\mathbf{x}$, $\mathbf{y}$ und $\mathbf{z}$ die kartesischen Einheitvektoren sind.

Die Auswertung des Integrals (A.7) ergibt für einen Übergang, mit gleichen magnetischen Quantenzahlen m der Zustände i und j (π-Übergang) ein reelles Dipolmatrixelement in Richtung der **z**-Achse:

$$\mathbf{d}_{ij} \propto \mathbf{z} \tag{A.9}$$

Bei magnetischen Quantenzahlen, die sich um ± 1 unterscheiden ($\sigma^{\pm}$-Übergang) ergeben sich komplexe Dipolmatrixelemente der Form:

$$\mathbf{d}_{ij} \propto \mathbf{x} \pm i\mathbf{y} \tag{A.10}$$

Für größere Unterschiede in den magnetischen Quantenzahlen verschwindet das Dipolmatrixelement. Übergänge zwischen solchen Zuständen sind dipolverboten. Sie treten mit geringerer Rate auf und sind mit magnetischen Momenten oder elektrischen Momenten höherer Ordnung verbunden.

Geräteliste

[G1] Elektrooptischer Modulator: Gsänger LM0202 PHAS (Sonderanfertigung)

[G2] Frequenzgenerator: Rhode & Schwarz, SMT, 0.005–1500 MHz

[G3] Breitbandverstärker: Kalmus, Model 110C, 40dB Gain

[G4] Farbstofflaser: Coherent CR 699-21 (modifiziert [Sie 91])

[G5] Krypton Ionenlaser: Coherent Inova 400

[G6] Farbstofflaser: Spectra Physics, Model 375 (modifiziert [Sch 91]

[G7] Argon Ionenlaser: Spectra Physics, Model 2030

[G8] Akustooptischer Modulator: Isomet, Modell 1250C

[G9] Signalgenerator: Rhode & Schwarz, SMG, 0.1–1000 Mhz mit Powersplitter: Mini Circuits, 2FSC-2-1

[G10] Spindler & Hoyer: PM-Faser QPMJ-3-3-488-3.5/125 mit Einkoppler A15VIS und Kollimator MB10

[G11] Avalance Photodiode: C30902 S-TC (thermoelectrical cooling)

[G12] NF- & HF-Stromverstärker: Sonderanfertigung der Firma Femto

[G13] Lock-In-Verstärker: EG&G Model 5202 bzw. Stanford Research SR-844

[G14] Stereomakroskop, Wild Heerbrugg, M400

[G15] Analog-Digital Wandler: LeCroy, LG 8213 (CAMAC)

Literaturverzeichnis

[Abr 70] M. Abramowitz und I. A. Stegun, Hrsg. „Handbook of Mathematical Functions“, ninth printing, Dover Publications, Inc., New York (1970)

[Alz 76] G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi und G. Orriols, *Nuovo Cimento B*, **36**, 5 (1976)

[Bia 86] J. Bialas, R. Blatt, W. Neuhauser und P. E. Toschek, „Ultrasensitive detection of light absorption by few ions“, *Optics Communications* **59**, 27 (1986)

[Bjo 80] G. C. Bjorklund, „Frequency-modulation spectroscopy: a new method for measuring weak absorptions and dispersions“, *Optics Letters* **5**, 15 (1980)

[Blo 46] F. Bloch, „Nuclear Induction“, *Phys. Rev.* **70**, 460 (1946)

[Bra 83] B. H. Bransden und C. J. Joachain, „Physics of Atoms and Molecules“, John Wiley & Sons, Inc., New York (1983)

[Cow 81] R. D. Cowan, „The Theory of Atomic Structure and Spectra“, University of California Press (1981)

[Dre 83] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kovalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Mulley und H. Ward, „Laser Phase and Frequency Stabilisation Using an Optical Resonator“, *Appl. Phys. B* **31**, 97 (1983)

[Fey 57] R. P. Feynman, F.L. Vernon, Jr. und R. W. Hellwarth, „Geometrical Representation of the Schrödinger Equation for Solving Maser Problems“, *J. Appl. Phys* **28**, 49 (1957)

[Gal 67] A. Gallagher, „Oszillator Strengths of CaII, SrII and BaII“, *Phys. Rev.* **157**, 24 (1967)

[Hak 93] H. Haken, H.C. Wolf, „Atom und Quantenphysik“, Springer-Verlag, 5. Aufl. (1993)

[Hän 69] T. W. Hänsch, R. Keil, A. Schabert, C. Schmelzer und P. E. Toschek, „Interaction of Laser Light Waves by Dynamic Stark Splitting“, *Z. Phys*, **226**, 293 (1969)

[Hän 70] T. W. Hänsch und P. E. Toschek, „Theory of a Three-Level Gas Laser Amplifier“, *Z. Phys*, **236**, 213 (1970)

[Hän 75] T. W. Hänsch und A. L. Schawlow, „Cooling of Gases by Laser Radiation“, *Opt. Commun.* **13**, 68 (1975)

[Lid 93] D. R. Lide, Hrsg., „Handbook of Chemistry and Physics“, 74th Edition, CRC-Press (1993)

[Man 95] L. Mandel, E. Wolf, „Opticle Coherence and Quantum Optics“, Cambridge University Press (1995)

[Neu 78] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. E. Toschek und H.G. Dehmelt, „Optical Sideband Cooling of Visible Atom Cloud Confined in Parabolic Well“, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 233 (1978)

[Neu 80] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. E. Toschek und H.G. Dehmelt, „Localized Visible Ba^+ Mono-Ion Oscillator“, *Phys. Rev. A* **22**, 1137 (1980)

[Pau 58] W. Paul, O. Osberghaus, E. Fischer in „Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrhein-Westfalen“, L. Brand, Hrsg., Nr. *415* Köln und Opladen: Westdeutscher Verlag (1958)

[Pou 46] R. V. Pound, „Electronic Frequency Stabilisation of Microwave Oszillators“, *Rev. Sci. Instr.* **17**, 490 (1946)

[Sch 91] M. Schubert, „Intensitätskorrelationen in der Resonanzfluoreszenz eines einzelnen gespeicherten Ions“, Dissertation am Fachbereich Physik der Universität Hamburg (1991)

[Sie 91] I. Siemers, „Über die Dunkelresonanz im Anregungsspektrum eines einzelnen gespeicherten Ions“, Dissertation am Fachbereich Physik der Universität Hamburg (1991)

[Sta 93] Y. Stalgies, „Lichtverschiebung und Fano-Resonanzen in einem einzelnen Ba^+-Ion“, Diplomarbeit am Fachbereich Physik der Universität Hamburg (1993)

[Win 78] D.J. Wineland, R. E. Drullinger, F. L. Walls, „Radiation-Pressure of Bound Resonant Absorbers“, *Rhys. Rev. Lett.* **40**, 1639 (1978)

[Win 87] D.J. Wineland, W. M. Itano und J.C. Bergquist, „Absorption Spectroscopy at the Limit: Detection of a Single Atom“, *Optics Letters* **12**, 389 (1987)

[Yar 88] A. Yariv, „Quantum Electronics“, 3rd. ed., John Wiley & Sons (1988)

[Yu 97] N. Yu, W. Nagourney, H.Dehmelt, „Radiative Lifetime Measurement of the Ba^+ Metastable $D_{3/2}$ State“, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4898 (1997)

Danksagungen

Ich danke Herrn Prof. Dr. Peter E. Toschek für die interessante Aufgabenstellung, für die Möglichkeit, diese Arbeit in seiner Arbeitsgruppe durchzuführen und für fruchtbare Diskussionen und hilfreiche Ratschläge.

Besonders dankbar bin ich Herrn Dipl. Phys. Yves Stalgies für die unkomplizierte und freundschaftliche Zusammenarbeit und für die ständige Hilfsbereitschaft.

Herrn Dipl. Phys. Valentin Bühner danke ich für zahlreiche Tips zum Umgang mit optischen und elektronischen Geräten. Für die produktive Zusammenarbeit möchte ich mich bei Herrn Dipl. Phys. Klaus Abich bedanken.

Bei der ganzen Ionenfallen-Crew — In alphabetischer Reihenfolge: Herrn Dr. Bernd Appasamy, Herrn Dipl. Phys. Christoph Balzer, Herrn Volker Burgarth, Herrn Stefan Heitmann, Herrn Dipl. Phys. Ralf Huesmann, Herrn Prof. Dr. Werner Neuhauser und Herrn Dr. Christof Wunderlich. — bedanke ich mich für die angenehme und lockere Atmosphäre und die gute Zusammenarbeit.

Für einige hilfreiche Ratschläge und viele nette Gespräche danke ich Herrn Dipl. Phys. Dirk Reiß und Herrn Dipl. Phys. Arnold Stark.

Meinen Schreibtischnachbarn Herrn David Ong, Herrn Markus Henke, Frau Gabriele Weihrauch sowie Herrn Mark Teichmann danke ich für gute Gemeinschaft und Interesse an meiner Arbeit.

Allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe für Quantenoptik und Spektroskopie an der Universität Hamburg danke ich herzlich für den vielen Kuchen, das Badmintonturnier und die gute Zusammenarbeit. — Vielen Dank.

Vor allem aber bedanke ich mich bei meiner Verlobten Sabine Grundt für die liebevolle und geduldige Unterstützung während der ganzen Diplomarbeit, sowie bei meinen Eltern Herbert und Helga Schulz, die mir das Studium durch finanzielle und moralische Unterstützung erst ermöglicht haben.

Erklärung

Ich versichere diese Arbeit selbstständig unter alleiniger Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt zu haben.

Hamburg, der 15. Januar 1998