

Kapitel 4

Die Wechselwirkung von Licht und Atomen

In diesem Kapitel wird ein Modell für die Wechselwirkung des Ions mit den eingestrahnten 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:

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

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

$$\Delta\mathbf{P} = \hbar\mathbf{k} \langle n \rangle \Delta t \quad (4.2)$$

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

$$\mathbf{F} = \hbar\mathbf{k} \langle n \rangle \quad (4.3)$$

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 und spontaner Emission schnell gegen die Bewegung des Ions im Käfigpotential ist. Dann kann das Ion während 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:

$$E_{\text{Doppler}} = \frac{\hbar\Gamma}{2} \quad (4.4)$$

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

$$E_{\text{Rück}} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \quad (4.5)$$

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

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

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 $|i\rangle, i = 1, 2, \dots, n$ 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:

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

Der Dichteoperator läßt sich also durch eine komplexe ($n \times n$)-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]:

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

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

Die zeitliche Entwicklung der Zustände im ungestörten Atom ist gegeben durch

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

wobei $\hbar\omega_n$ die Energie des n -ten Zustands ist. Unter Vernachlässigung von Spontanemission sind die Diagonalelemente ρ_{nn} also zeitlich konstant, während 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:

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

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

$$\sum_{i=1}^n \rho_{ii} = 1 \quad (4.11)$$

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

$$\dot{\mathbf{r}} = A \cdot \mathbf{r} + \mathbf{c} \quad (4.12)$$

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:

$$\hat{H}_I = -\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E} \quad (4.13)$$

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:

$$\hat{\mathbf{d}} = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \mathbf{d}_{ij} |i\rangle \langle j| \quad (4.14)$$

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

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

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

Die Diagonalelemente der Dipolmatrix \mathbf{d}_{ii} sind die Erwartungswerte des Dipolmoments für die Energieeigenzustände $|i\rangle$ 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 σ^\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:

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

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

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

Im ersten Fall schwingt der Erwartungswert also mit dem Realteil des Dichtematrixelements auf der Quantisierungsachse, während 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:

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

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 monochromatische 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

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

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:

$$\mathbf{e} = \mathbf{x} \sin \beta + \mathbf{z} \cos \beta \quad (4.20)$$

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):

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

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

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

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:

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

Bei einem π -Übergang ist das Dipolmatrixelement reell, es gilt also $Im(\mathbf{d}_{12}) = 0$. Für einen σ^\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:

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

wobei die Rabi-Frequenz Ω für π -Übergänge durch

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

und für σ^\pm -Übergänge durch

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

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:

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

Für die zeitliche Entwicklung des Blochvektors erhält man dann:

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

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:

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

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:

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

Durch Nullsetzen der Ableitungen \dot{r}_i erhält man nun ein lineares Gleichungssystem für den stationären Zustand des Blochvektors \mathbf{r} . Die Lösung dieses Gleichungssystems ergibt die stationäre Lösung des Blochvektors.

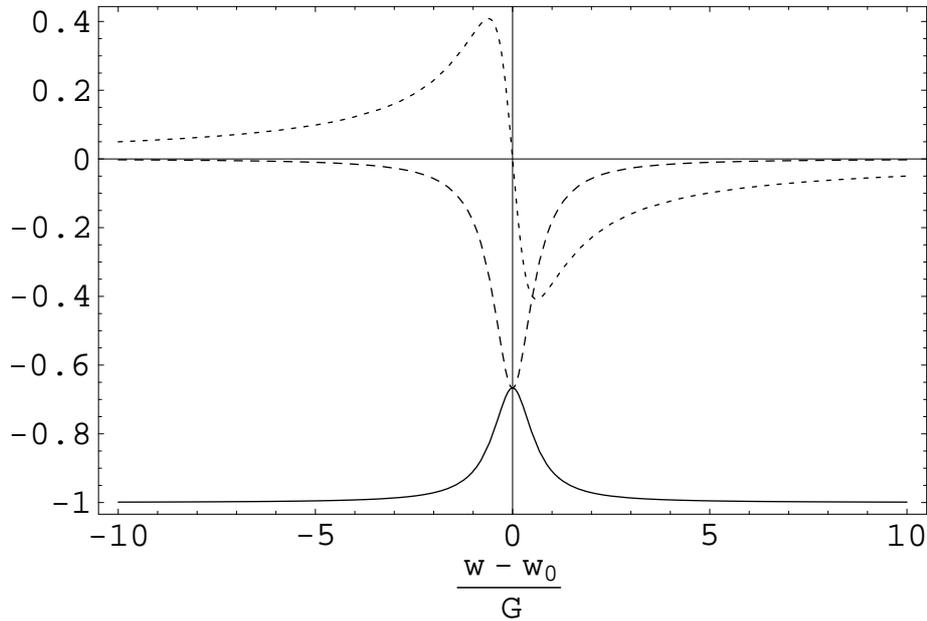


Abbildung 4.1: Stationäre Lösung der optischen Blochgleichungen im 2-Niveau-System. $\Omega = 0,5\Gamma$. (Gepunktet: r_1 ; Gestrichelt: r_2 ; Durchgezogen: r_3)

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 Rabi-Frequenzen in Abhängigkeit von der Verstimmung $\omega - \omega_0$. Bei großen Rabi-Frequenzen (Abb. 4.2) ist eine deutliche Linienverbreiterung durch Sättigung zu erkennen. Abbildung 4.3 zeigt die Inversion r_3 in Abhängigkeit von der Rabi-Frequenz 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.

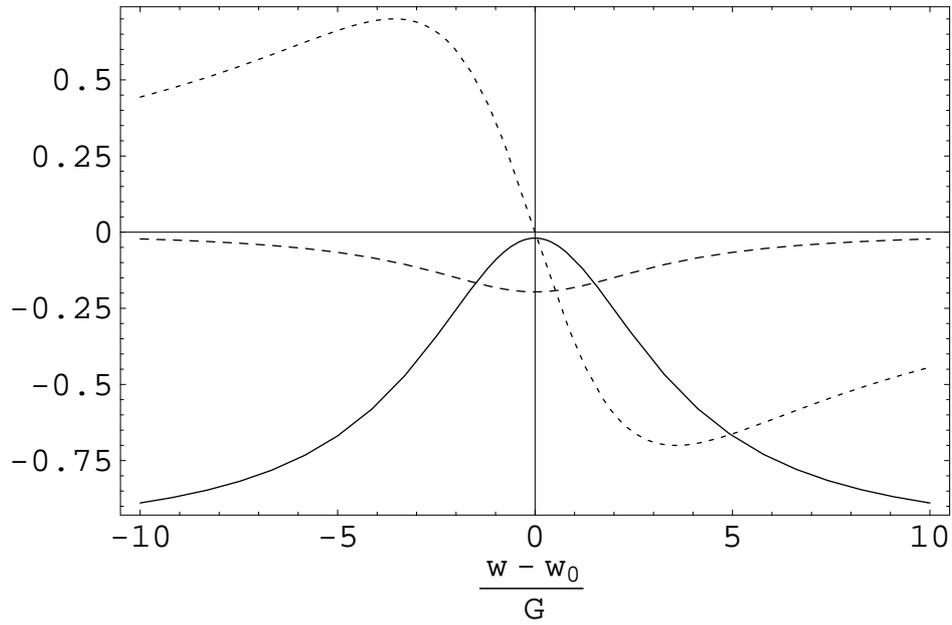


Abbildung 4.2: Stationäre Lösung der optischen Blochgleichungen im 2-Niveau-System. $\Omega = 5\Gamma$. (Gepunktet: r_1 ; Gestrichelt: r_2 ; Durchgezogen: r_3)

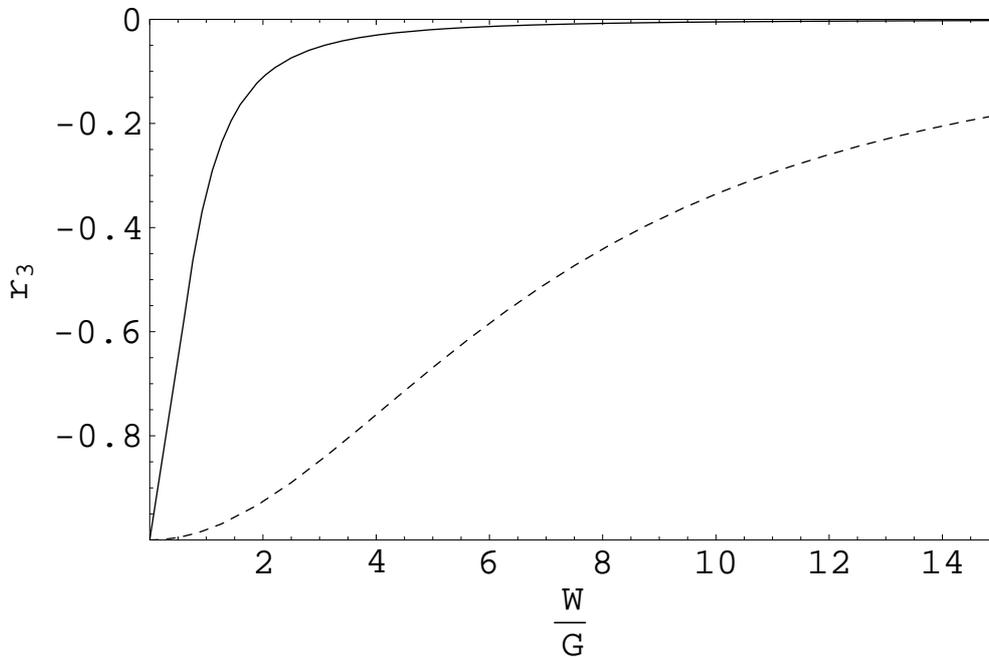


Abbildung 4.3: r_3 als Funktion der Rabifrequenz. (Durchgezogen: $\omega = \omega_0$; Gestrichelt: $\omega - \omega_0 = 5$)

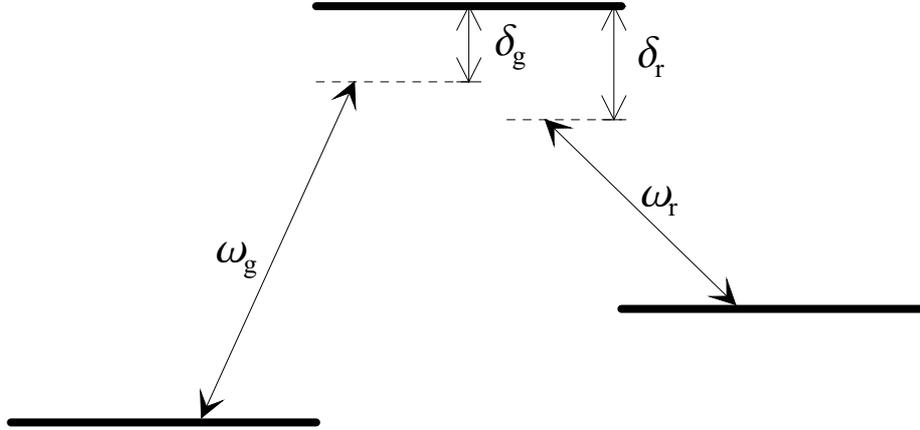


Abbildung 4.4: Das Drei-Niveau-System.

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 Halbwertszeit 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:

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

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

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

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

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

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 Blochvektors 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:

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

wobei die Verstimmungen durch $\delta_r = \omega_r - \omega_r^0$ und $\delta_g = \omega_g - \omega_r^0$ und die Rabi-Frequenzen 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 Fluoreszenzsignals, als Funktion der Verstimmung des roten Lichtes δ_r und für unterschiedliche Werte für die Verstimmung des grünen Lichtes ist in Abbildung 4.5

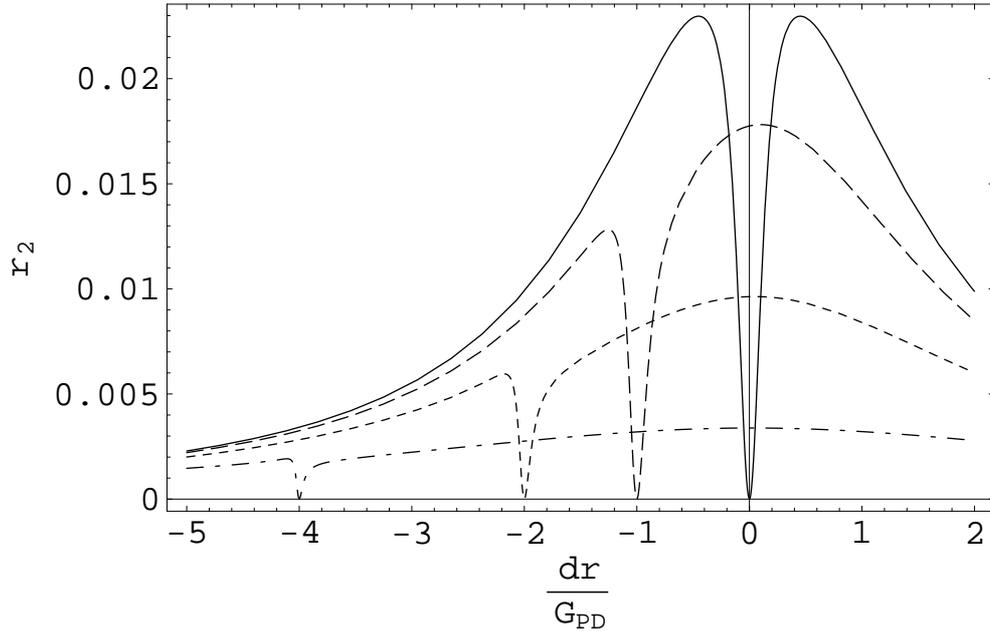


Abbildung 4.5: Dunkelresonanzen: Für $\delta_r = \delta_g$ wird die Besetzung des angeregten Zustands $|2\rangle$ null. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\Omega_g = \Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$, $\delta_g = 0, -1, -2, -4\Gamma_{PD}$.)

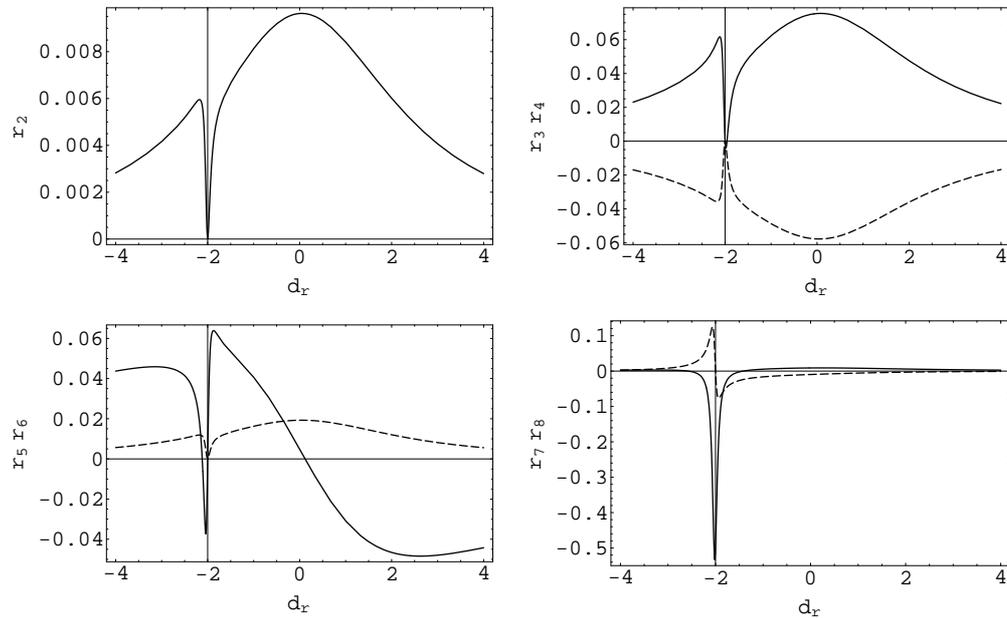


Abbildung 4.6: Besetzung des angeregten Zustands r_2 und die Real- und Imaginärteile der Nichtdiagonalelemente als Funktion der roten Verstimmung δ_r . Die senkrechte Linie markiert die Position der Dunkelresonanz. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -2\Gamma_{PD}$, $\Omega_g = \Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$.)

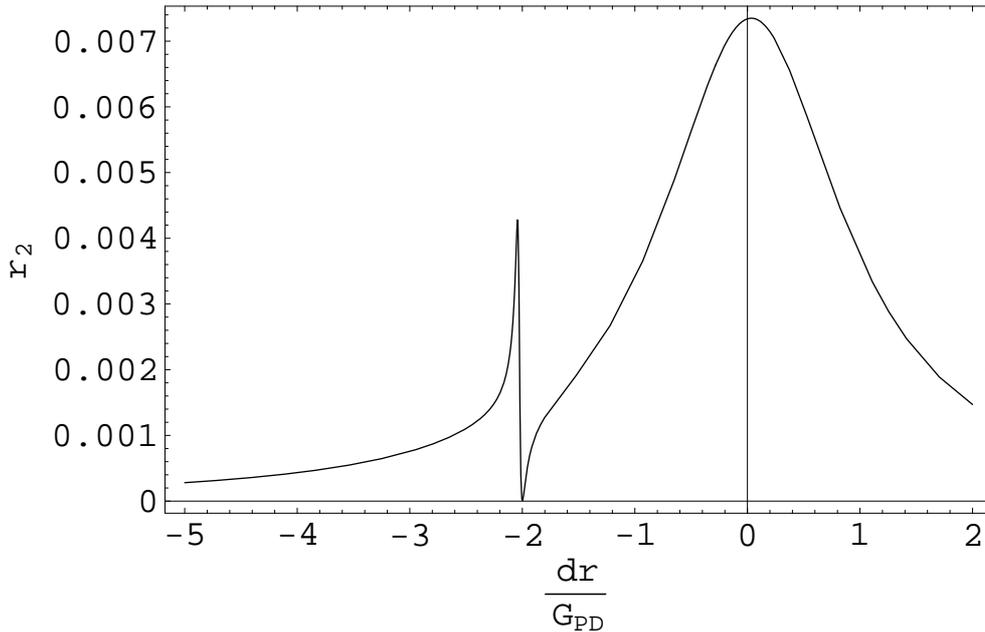


Abbildung 4.7: Zusätzliches Maximum in der Fluoreszenz neben der Dunkelresonanz für ungleiche Rabifrequenzen. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -2\Gamma_{PD}$, $\Omega_g = 3\Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$.)

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 Kohärenz 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-

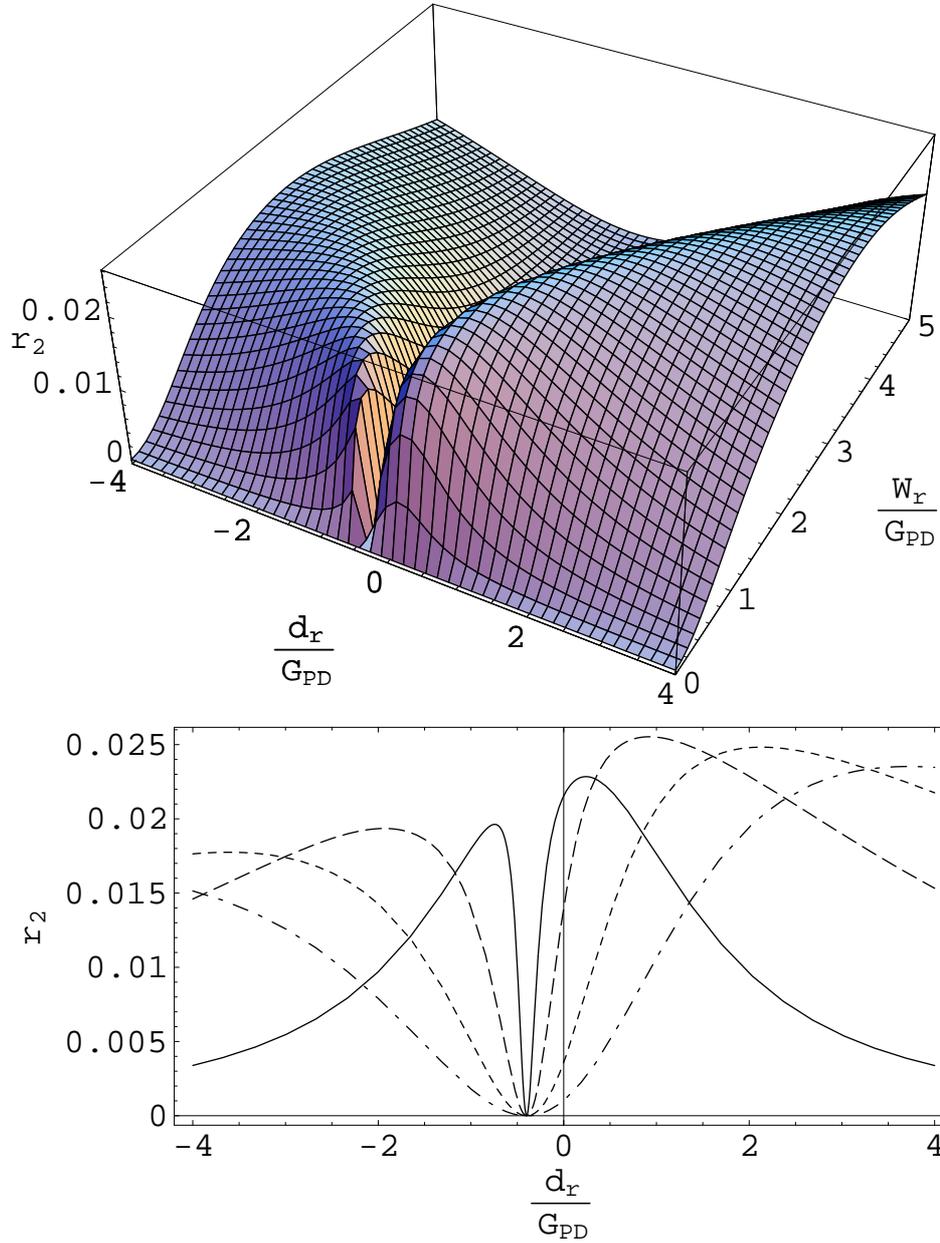


Abbildung 4.8: Fluoreszenz (r_2) als Funktion der Verstimmung δ_r und der Rabi-frequenz Ω_r des roten Lasers. Oben: dreidimensionale Darstellung; unten: Schnitte bei $\Omega_r = 0.5\Gamma_{PD}$, $1.5\Gamma_{PD}$, $2.5\Gamma_{PD}$ und $3.5\Gamma_{PD}$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -0.4\Gamma_{PD}$,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

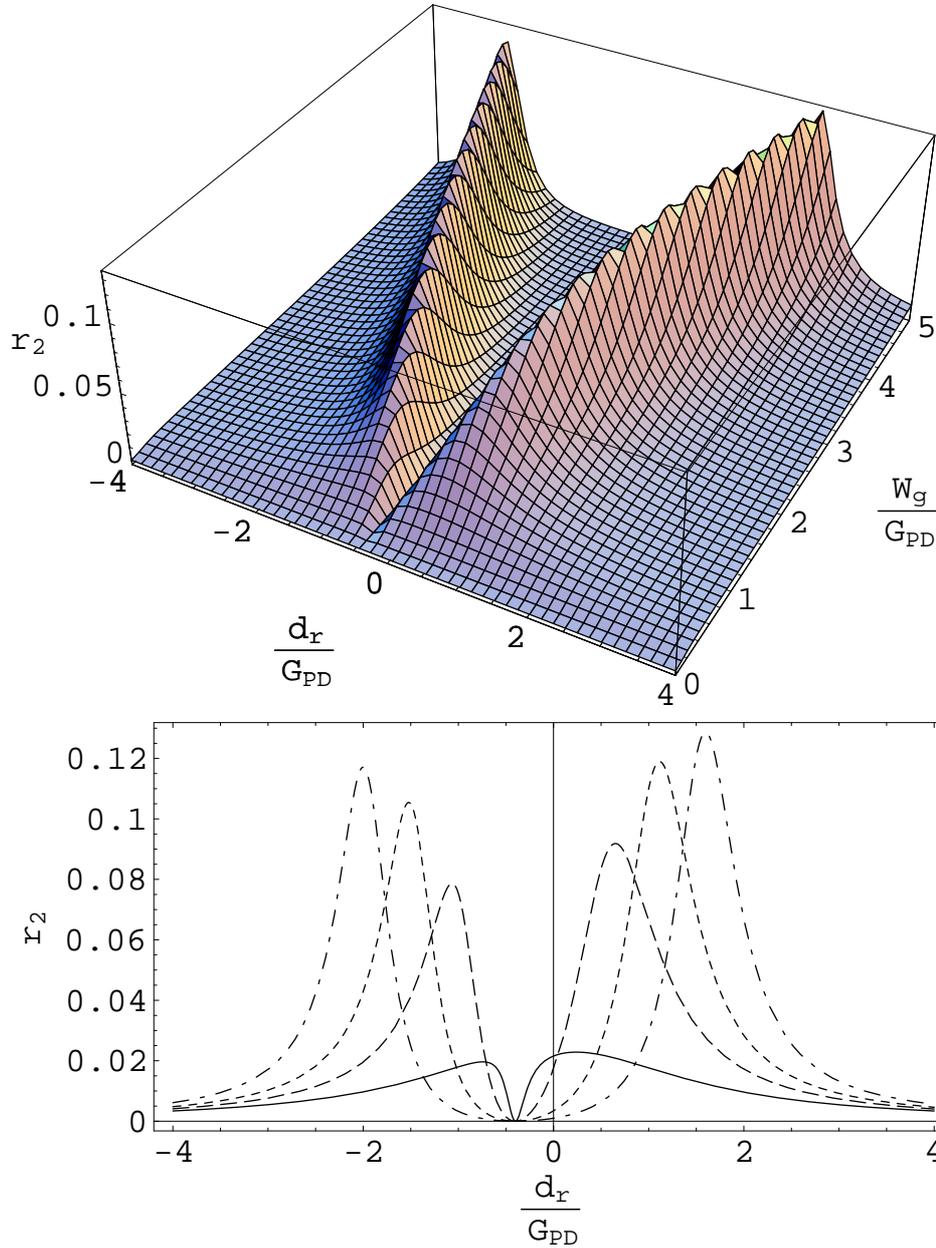


Abbildung 4.9: Fluoreszenz (r_2) als Funktion der Verstimmung δ_r des roten und der Rabi-Frequenz Ω_g des grünen Lasers. Oben: dreidimensionale Darstellung; unten: Schnitte bei $\Omega_g = 0.5\Gamma_{PD}$, $1.5\Gamma_{PD}$, $2.5\Gamma_{PD}$ und $3.5\Gamma_{PD}$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g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

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.

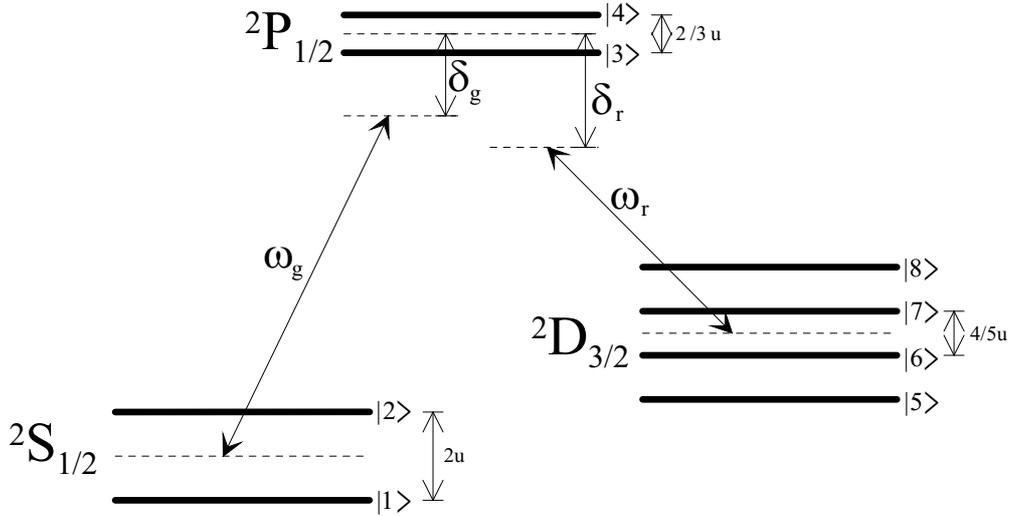


Abbildung 4.10: Das Acht-Niveau-System

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 Dunkelzustände¹ 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:

$$\Delta\omega = \pm\frac{1}{2}g_j u \quad (4.38)$$

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:

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

¹Unter 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:

$$\hat{H} = \hbar \sum_{j=1}^8 \omega_j |j\rangle \langle j| - \hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{E} \quad (4.40)$$

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 Polarisationsrichtung 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

$$\begin{aligned} \Omega_{13} &= -sat_g \Gamma_{PS} \cos \beta_g & \Omega_{14} &= sat_g \Gamma_{PS} \sin \beta_g \\ \Omega_{24} &= sat_g \Gamma_{PS} \cos \beta_g & \Omega_{23} &= sat_g \Gamma_{PS} \sin \beta_g \end{aligned} \quad (4.41)$$

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:

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

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 dipolverboden, 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 $\beta_r = \beta_g = 90^\circ$, in dem nur noch die in Abbildung 3.3 gezeigten Übergänge angeregt werden.

Spontanzerfälle

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

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

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

Die Zerfallsraten ergeben sich im Einzelnen zu:

$$\begin{aligned} \Gamma_{23} &= \Gamma_{14} = \frac{2}{3}\Gamma_{PS} & \Gamma_{37} &= \Gamma_{46} = \frac{1}{6}\Gamma_{PD} \\ \Gamma_{13} &= \Gamma_{24} = \frac{1}{3}\Gamma_{PS} & \Gamma_{36} &= \Gamma_{47} = \frac{1}{3}\Gamma_{PD} \\ & & \Gamma_{35} &= \Gamma_{48} = \frac{1}{2}\Gamma_{PD} \end{aligned} \quad (4.44)$$

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-Unterezuständen 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]:

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{12} &= -\frac{1}{3}\Gamma_{PS}\rho_{34} & \dot{\rho}_{56} &= \frac{1}{2\sqrt{3}}\Gamma_{PD}\rho_{34} \\ \dot{\rho}_{67} &= \frac{1}{3}\Gamma_{PD}\rho_{34} & \dot{\rho}_{78} &= \frac{1}{2\sqrt{3}}\Gamma_{PD}\rho_{34} \end{aligned} \quad (4.45)$$

Blochvektor und Drehwellennäherung

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

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

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

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

ein lineares Gleichungssystem für die stationären Lösungen, mit der 63×63 -Matrix \mathbf{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

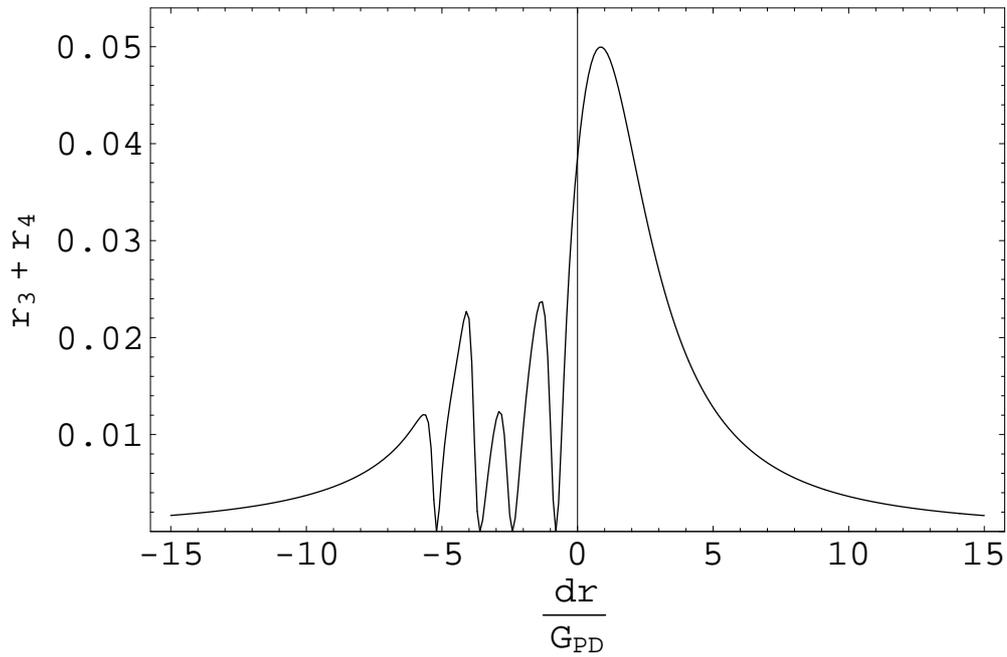


Abbildung 4.11: Stationäre Lösung der Blochgleichungen für das Acht-Niveau-System. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -3\Gamma_{PD}$, $sat_g = 1$, $sat_r = 1$, $u = \Gamma_{PD}$, $\beta = 90^\circ$.)

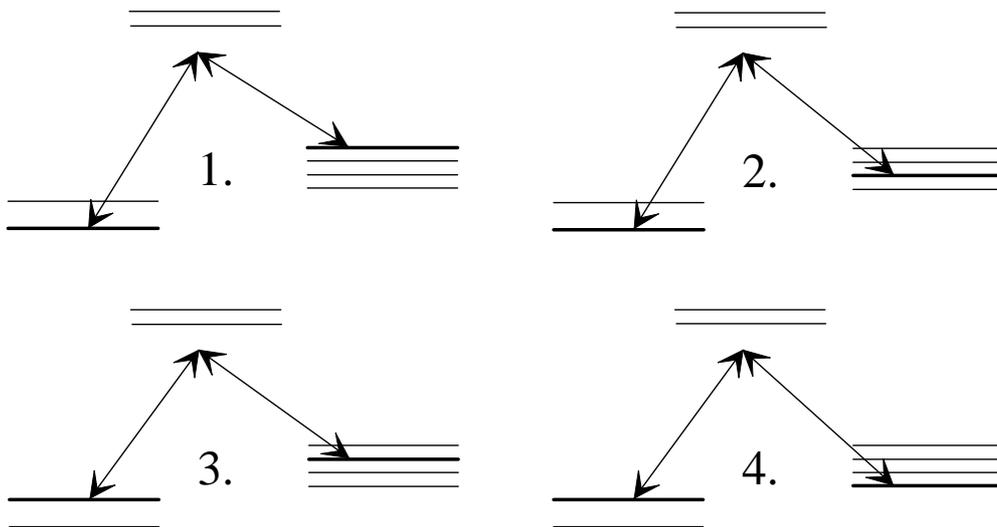


Abbildung 4.12: Zustandekommen der vier Dunkelresonanzen im Acht-Niveau-system. Das System kann bei senkrecht zum Magnetfeld polarisierten Lichtfeldern durch vier Drei-Niveau-Systeme erklärt werden.

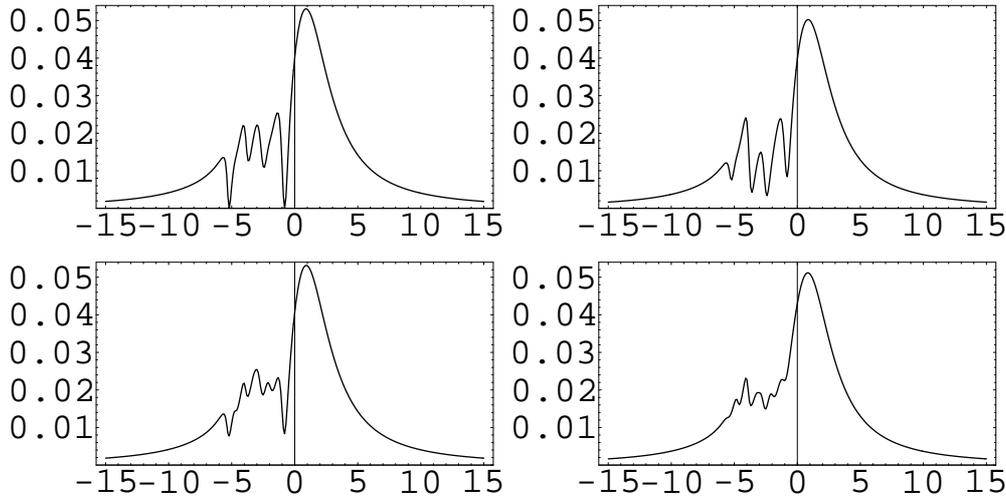


Abbildung 4.13: Einfluß der Winkel β_g und β_r auf die Dunkelresonanzen: Oben links: $\beta_g = 90^\circ$, $\beta_r = 75^\circ$; oben rechts: $\beta_g = 75^\circ$, $\beta_r = 90^\circ$; unten links: $\beta_g = 75^\circ$, $\beta_r = 75^\circ$; unten rechts: $\beta_g = 50^\circ$, $\beta_r = 90^\circ$. (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 Polarisierungen. Ist nur die rote Polarisationsrichtung verkippert (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 Polarisierung genau zu kontrollieren und den Winkel zwischen Polarisations- und Quantisierungsachse auf 90° 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 $|1\rangle$

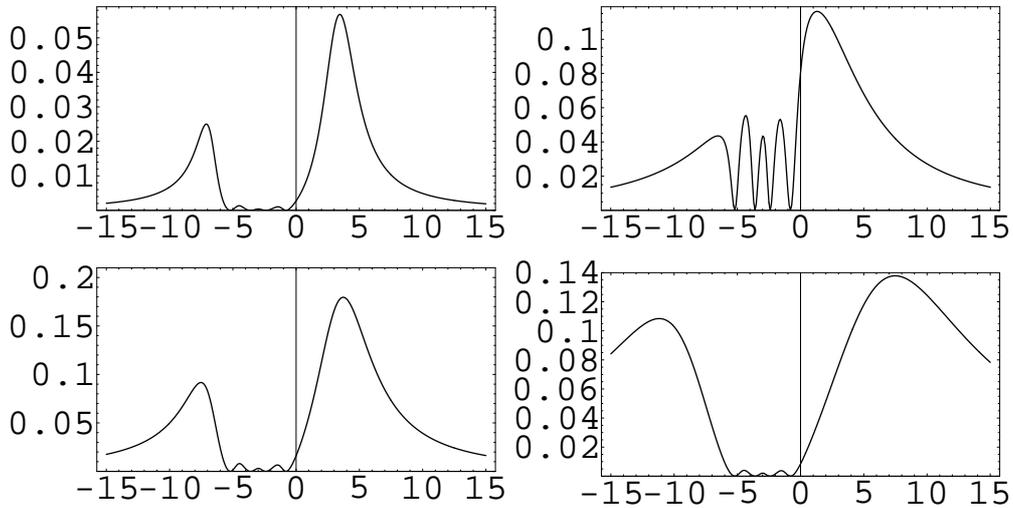


Abbildung 4.14: Einfluß der Lichtintensitäten sat_g und sat_r auf die Dunkelresonanzen: Oben links: $sat_g = 3.0, sat_r = 1.0$; oben rechts: $sat_g = 1.0, sat_r = 3.0$; unten links: $sat_g = 3.0, sat_r = 3.0$; unten rechts: $sat_g = 5.0, sat_r = 7.5$. (Bedeutung der Achsen wie in Abb. 4.11.)

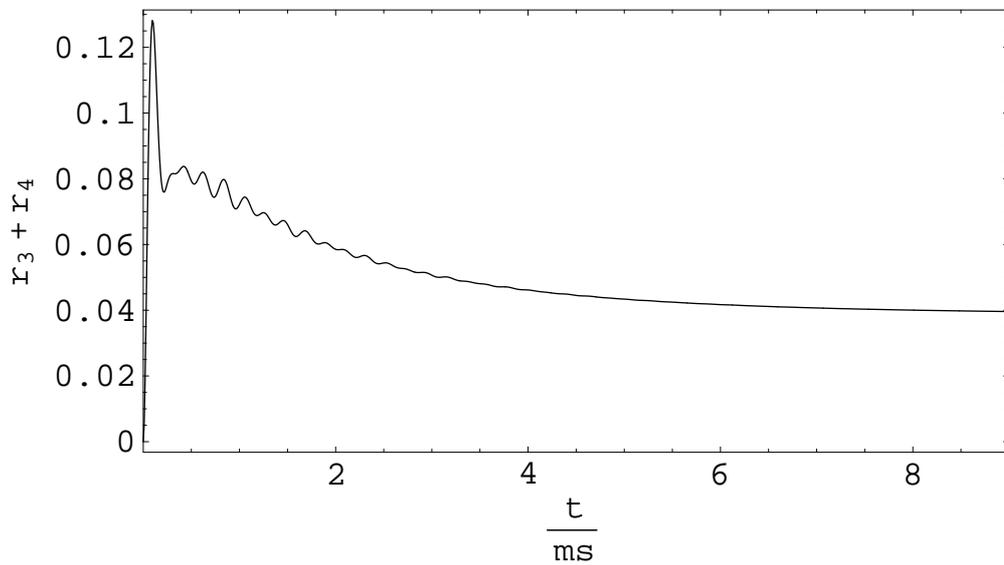


Abbildung 4.15: Zeitliche Entwicklung der Besetzung des angeregten Zustands im Acht-Niveau-System. Zur Zeit $t = 0$ befindet sich das System im unteren Grundzustand $|1\rangle$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -3\Gamma_{PD}$, $\delta_r = 0$, $sat_g = 1$, $sat_r = 1$, $u = \Gamma_{PD}$, $\beta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

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

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

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:

$$\omega_g \rightarrow \omega_g + M_g \Omega \cos(\Omega t) \quad (4.49)$$

Ebenso erhält man für den roten Laser die Frequenz:

$$\omega_r \rightarrow \omega_r + M_r \Omega \cos(\Omega t) \quad (4.50)$$

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]

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

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:

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

Einsetzen dieser Reihenentwicklung in die Bewegungsgleichung führt auf das Gleichungssystem

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

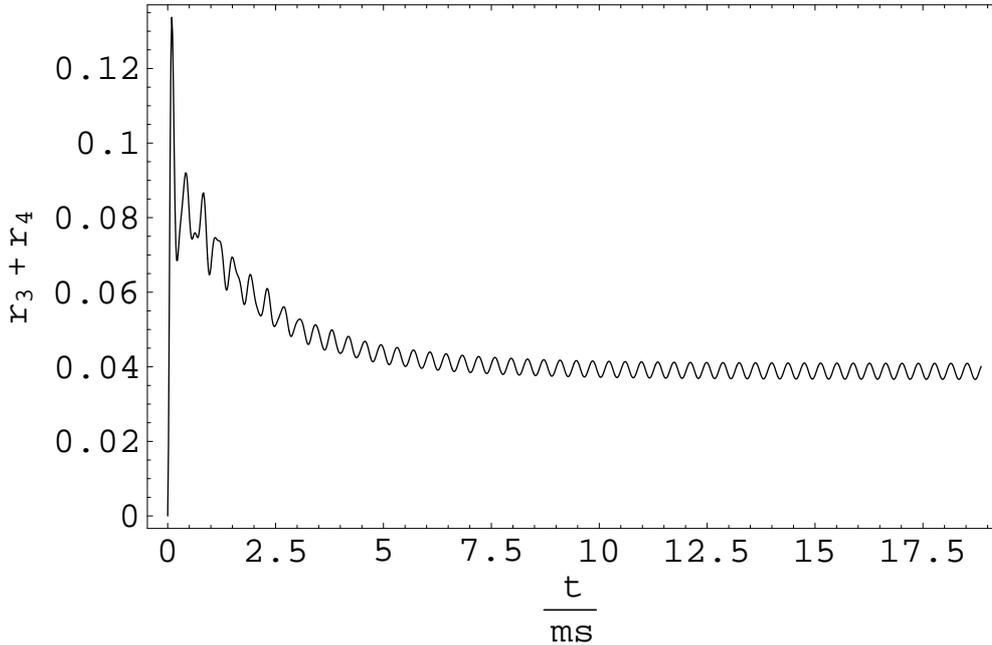


Abbildung 4.16: Zeitliche Entwicklung der Besetzung des angeregten Zustands im Acht-Niveau-System mit einer Phasenmodulation des grünen Lasers von 2.65 MHz. Zur Zeit $t = 0$ befindet sich das System im unteren Grundzustand $|1\rangle$. ($\Gamma_{PS} = 3\Gamma_{PD}$, $\delta_g = -3\Gamma_{PD}$, $\delta_r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

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

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

so folgt für $n = 0$

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

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]

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

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:

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

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

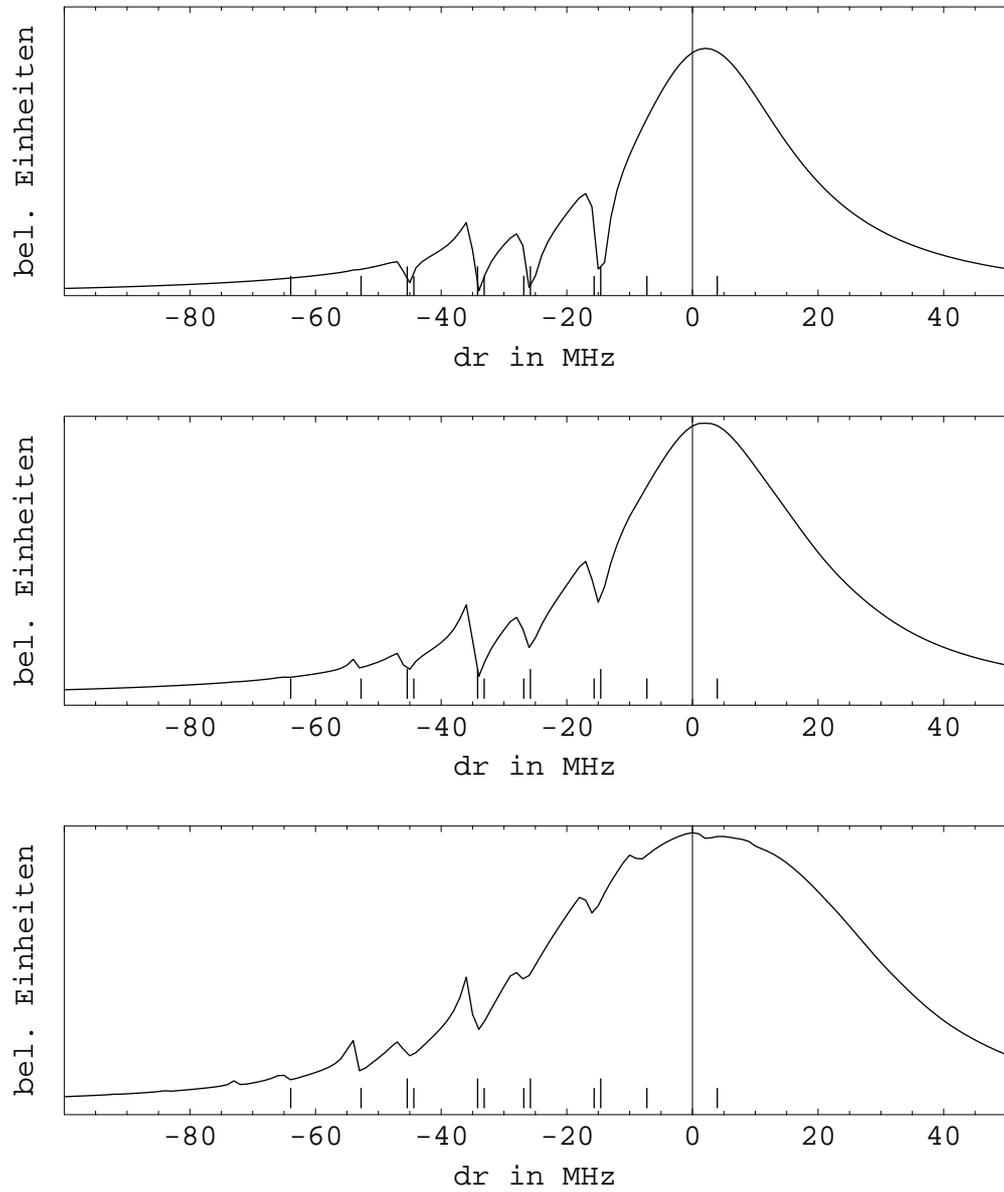


Abbildung 4.17: Wirkung einer Phasenmodulation des roten Lichtfeldes mit der Frequenz 18.55 Mhz auf das Fluoreszenzsignal. Oben: $M_r = 0.1$; Mitte: $M_r = 0.5$; Unten: $M_r = 1.15$.

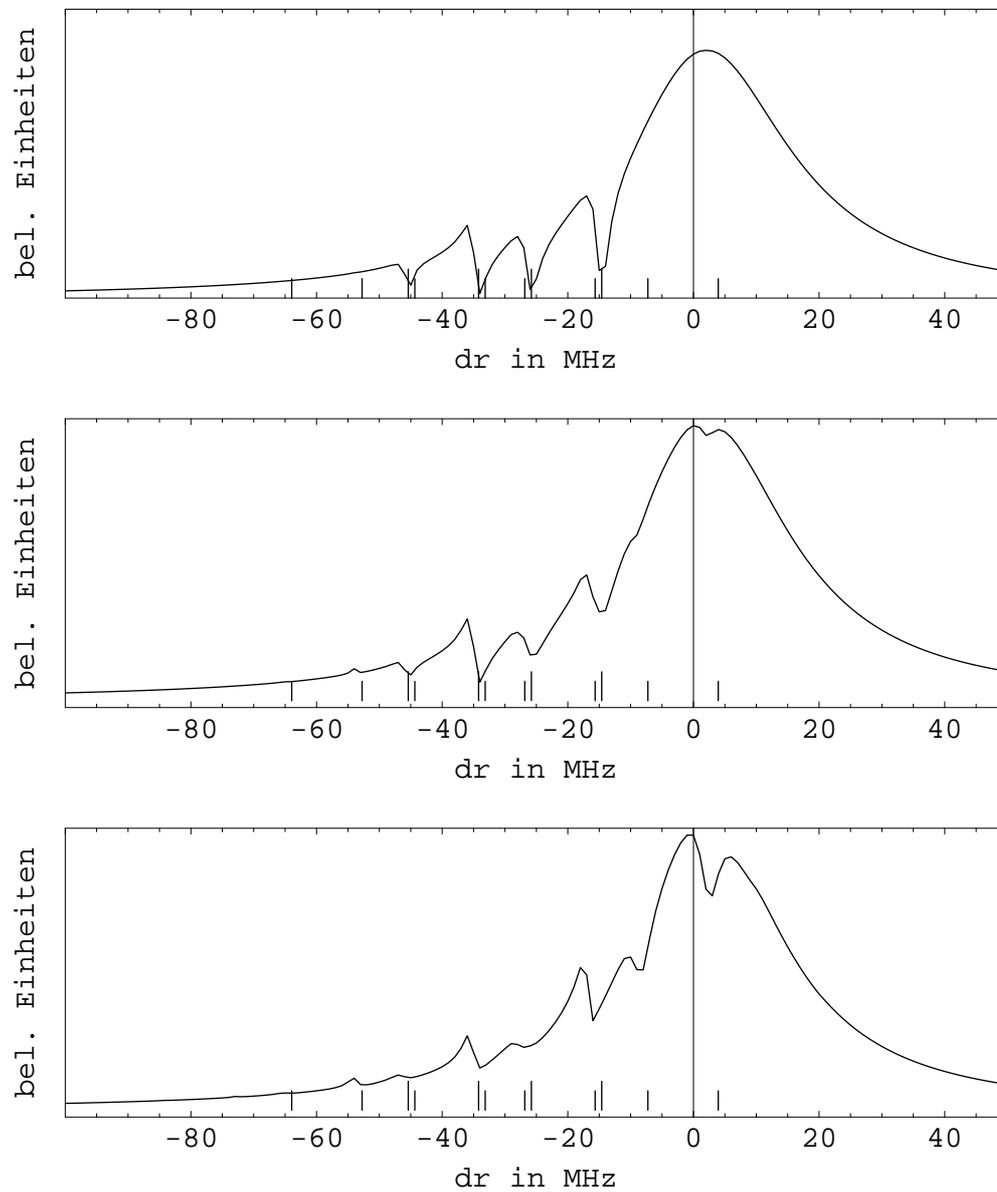


Abbildung 4.18: Wirkung einer Phasenmodulation des grünen Lichtfeldes mit der Frequenz 18.55 Mhz auf das Fluoreszenzsignal. Oben: $M_g = 0.1$; Mitte: $M_g = 0.5$; Unten: $M_g = 1.15$.

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, während die Verstimmung des Grünen Lichts konstant gehalten wird. Bei Modulation des roten Lichtes werden also eine Trägerfrequenz, sowie die dazugehörigen Seitenbänder über die Resonanz verstimmt. Jede dieser Frequenzen erzeugt eine lorentzförmige Fluoreszenzlinie, deren Intensität von der Intensität des verursachenden 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:

$$E_f = E_i + E_{\text{pol}} \quad (4.58)$$

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

$$E_f = E_0 \cos(\omega t) - E_0 \delta(\omega) \cos(\omega t) - E_0 \phi(\omega) \sin(\omega t) \quad (4.59)$$

Dabei eilt die Polarisation dem abgestrahltem Feld E_{pol} um 90° voraus. Die Polarisation ist proportional zum Erwartungswert der Dipolmatrixelemente und damit zum Realteil² 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.

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

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: $\{ij\} = \{35\}, \{36\}, \{37\}, \{46\}, \{47\}$ und $\{48\}$. Um den ganzen Einfluß des Ions auf das Lichtfeld zu erhalten, sind diese Werte nun unter

²Daß 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:

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

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):

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

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:

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

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 Absorption in Abhängigkeit von der Wellenlänge ω . Dieses Ergebnis wird in die Gleichungen (2.10)

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

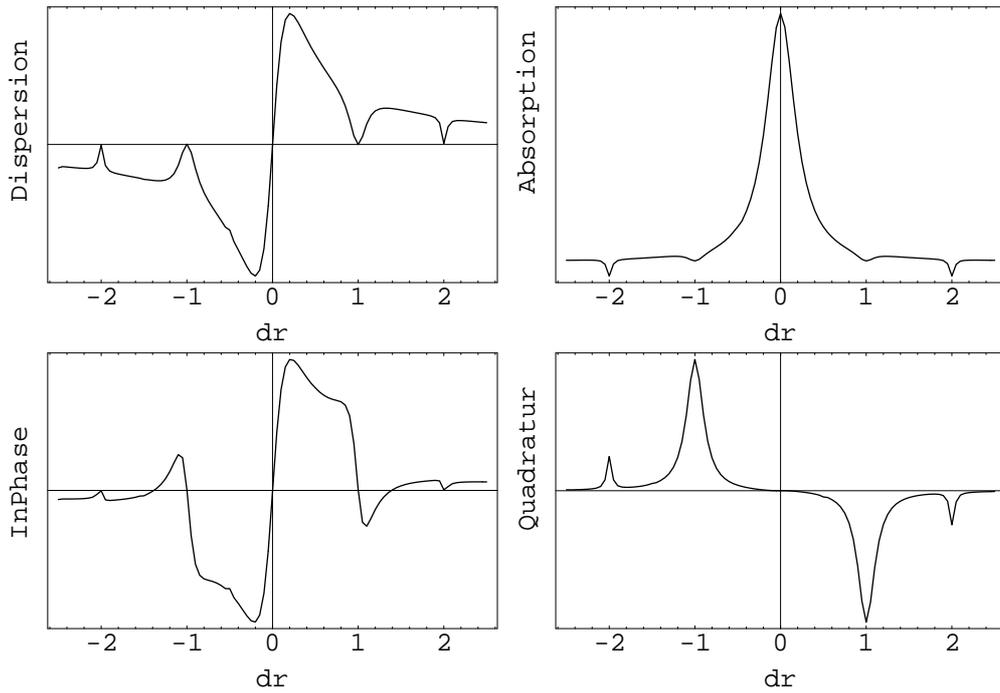


Abbildung 4.19: Frequenzmodulationsspektroskopie für eine annähernd lorentzförmige Absorption. Die rote Verstimmung δ_r ist in Einheiten der Modulationsfrequenz Ω angegeben. ($\delta_g = -1\text{GHz}$, $\Omega = 2\text{GHz}$, $M = 1$ $sat_g = 5$, $sat_r = 7.5$, $u = 7.5\text{MHz}$, $\beta = 90^\circ$.)

und (2.11)

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

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 die 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.

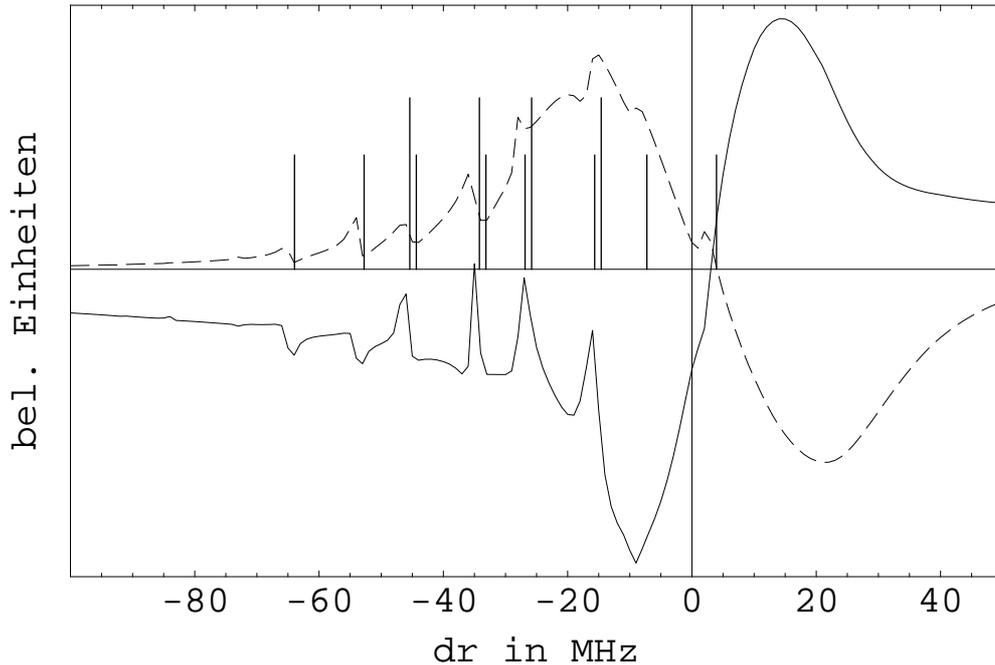


Abbildung 4.20: Frequenzmodulationssignal für das Acht-Niveau-System bei einfacher Sättigung ($\text{sat}_g = \text{sat}_r = 1$). Die Modulationsfrequenz beträgt 18.55 MHz bei einem Modulationsindex von 1.15.

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 ($\text{sat}_g = 3$, $\text{sat}_r = 4.5$). 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}

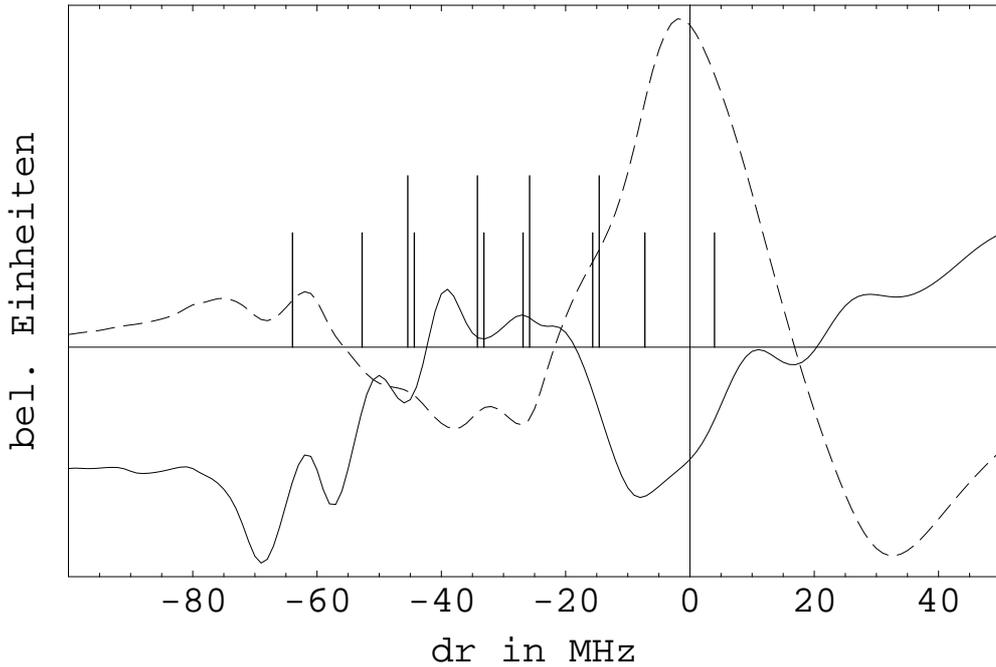


Abbildung 4.21: FM-Signal mit großer Sättigung ($\text{sat}_g = 3$, $\text{sat}_r = 4.5$). Alle anderen Parameter wie in Abb. 4.20.

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

$$I \propto E_f E_f^* = E_i E_i^* + E_i E_{\text{pol}}^* + E_{\text{pol}} E_i^* + E_{\text{pol}} E_{\text{pol}}^* \quad (4.67)$$

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 $E_i \gg E_{\text{pol}}$ gilt, ist dieser Anteil sehr viel kleiner, als der Mischterm $E_i E_{\text{pol}}^* + \text{c.c.}$. Dieser beschreibt die kohärente Überlagerung des Polarisationsfeldes mit dem eingestrahltten Feld. Das Verhältnis E_i/E_{pol} ist der Heterodyngewinn und bezeichnet die Verstärkung eines schwachen Wechselnungssignals 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 $E_{\text{pol}} E_{\text{pol}}^*$ 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:

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

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

wobei nur die Komponenten mit $n = \pm 1$ benötigt werden³, so erhält man:

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

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

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

Nun läßt sich der Mischterm aus Gleichung (4.67) ausrechnen. Herterodynverstärkung tritt nur für den Anteil des Feldes E_{pol} auf, der mit dem einestrahlten 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 Intensität ergibt sich nun:

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

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 zurückzuführende 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.

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

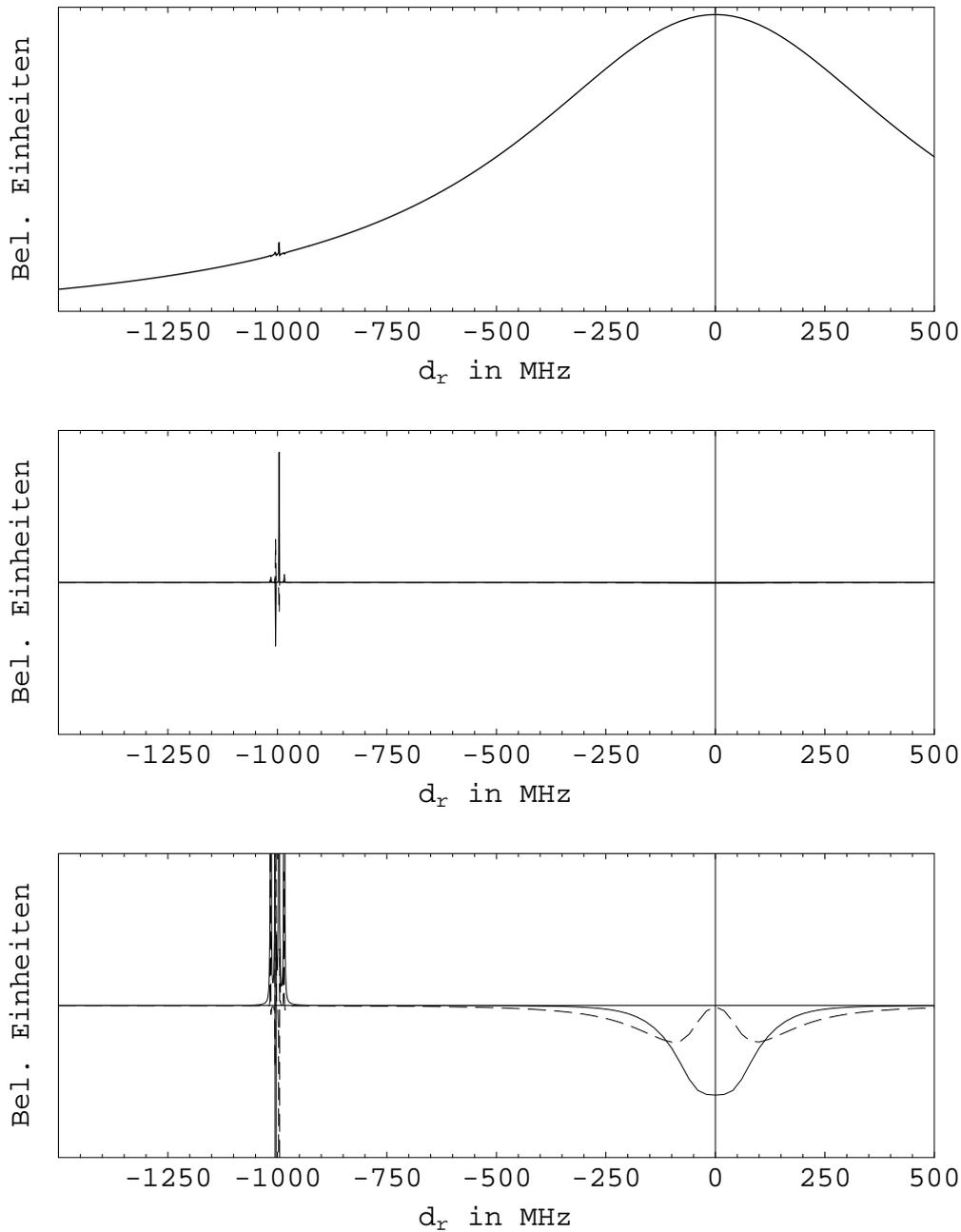


Abbildung 4.22: Modulationstransferspektroskopie für eine große Verstimmung des grünen Lasers $\delta_g = -1$ GHz bei langsamer Phasenmodulation von $\Omega = 10$ kHz. Oben: Fluoreszenz als Funktion der roten Verstimmung. Mitte: MT-Signal — das Zwei-Photon-Signal bei $\delta_r \approx \delta_g$ ist um 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, $\beta = 90^\circ$.)

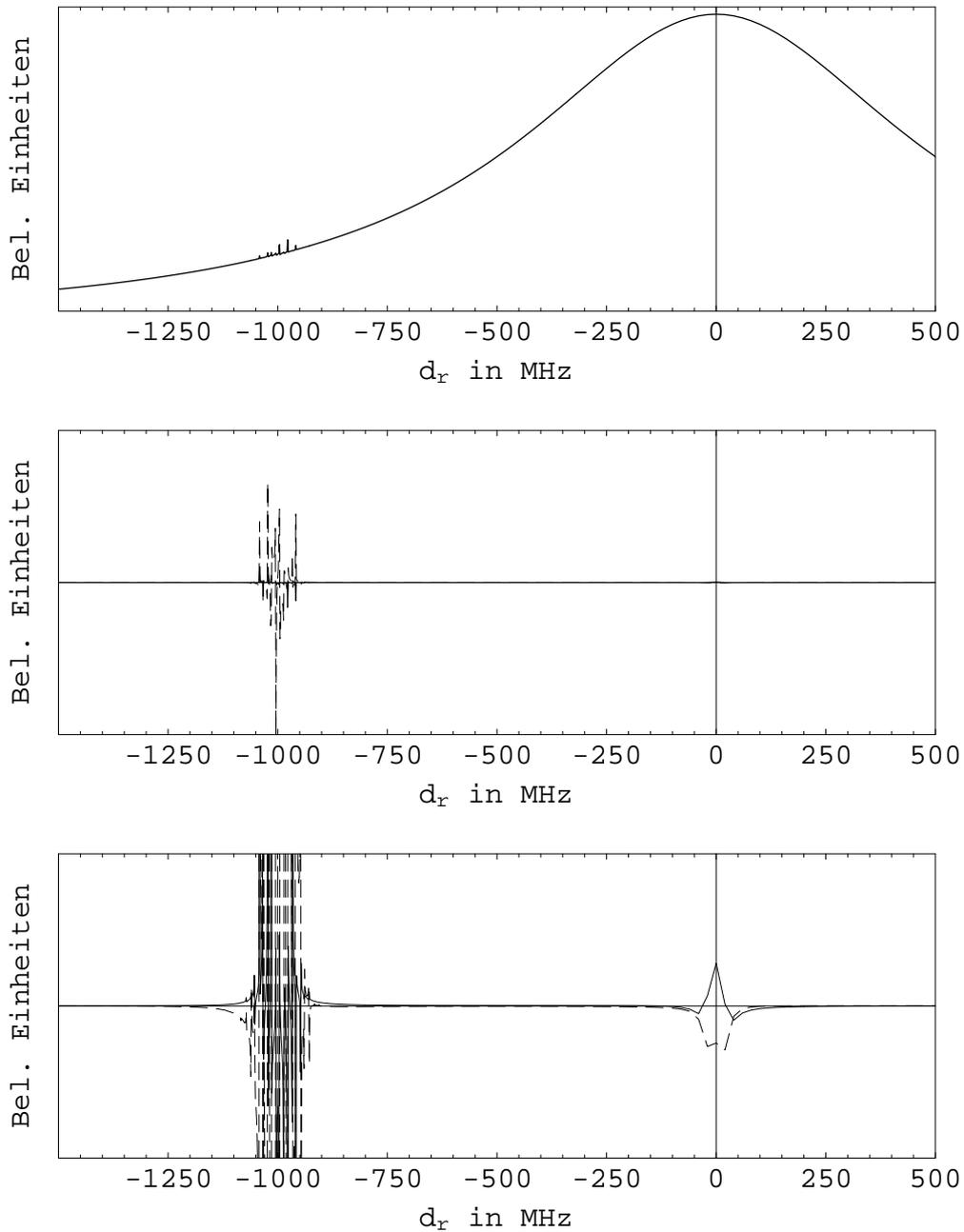


Abbildung 4.23: Modulationstransferspektroskopie für eine große Verstimmung des grünen Lasers $\delta_g = -1\text{GHz}$ bei einer Modulationsfrequenz von $\Omega = 50$ MHz. Oben: Fluoreszenz als Funktion der roten Verstimmung. Mitte: MT-Signal — Das Signal bei $\delta_r \approx 0$ ist im Vergleich zu 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, $\beta = 90^\circ$.)

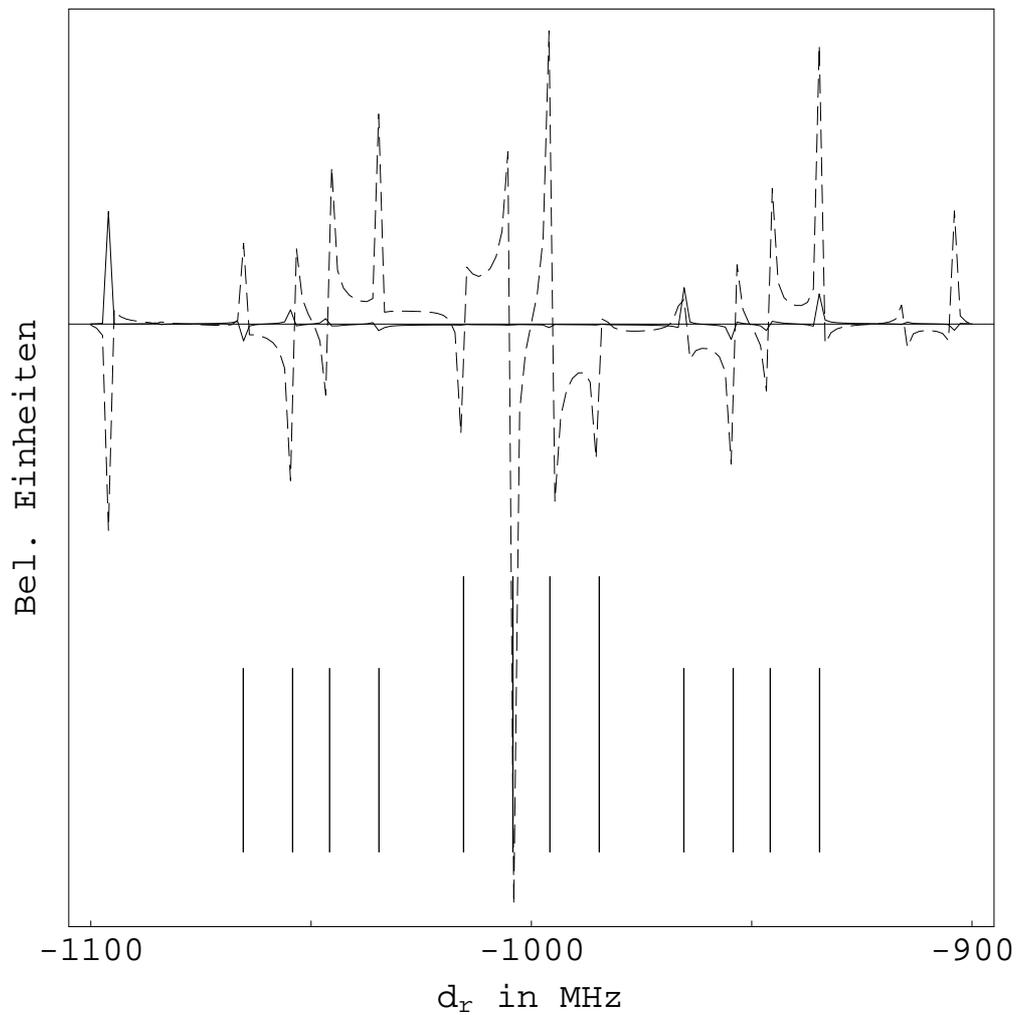


Abbildung 4.24: Vergrößerter Ausschnitt aus Abbildung 4.23. Im unteren Bereich sind die Verstimmungen, bei denen Zwei-Photonen-Resonanzen auftreten aufgezeigt. Die langen Striche markieren die Positionen, an denen das rote Licht mit dem Träger des grünen Lichtes eine Zwei-Photon-Resonanz anregt. Die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

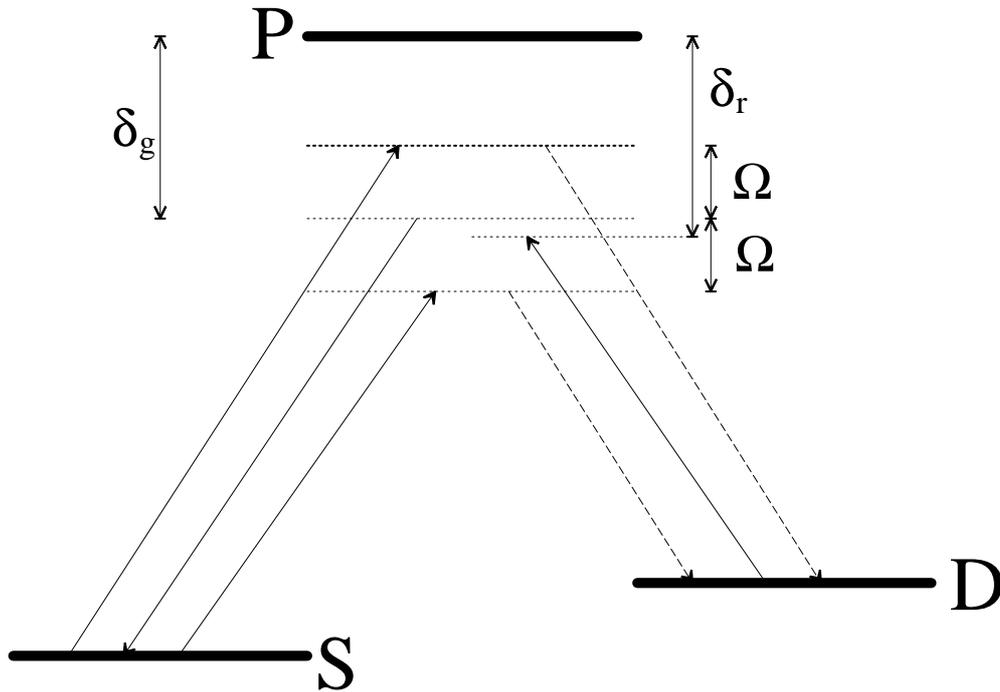


Abbildung 4.25: Termschema zur Erklärung der Signalform bei der MT-Spektroskopie im Drei-Niveau-System. Die Vier-Wellen-Mischung erzeugt zu dem monochromatischen roten Lichtfeld Seitenbänder (gestrichelte Pfeile). Sind die Amplituden dieser Seitenbänder identisch, so entsteht für $\delta_r = \delta_g$ 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

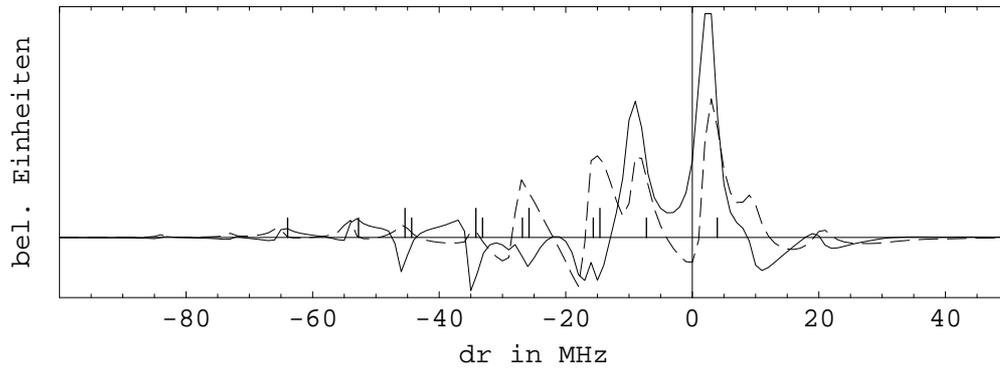


Abbildung 4.26: MT-Spektrum bei einfacher Sättigung ($\text{sat}_g = \text{sat}_r = 1$) und einer Verstimmung des grünen Lasers von $\delta_g = -30$ Mhz. Die Modulationsfrequenz beträgt 18.55 MHz bei einem Modulationsindex von $M=1.15$.

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.