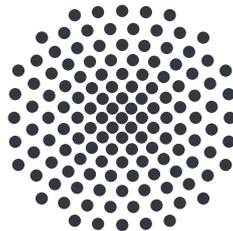


# **Viel-Wellen-Mischen zu Rydbergzuständen von thermischen Alkalidämpfen zur Anwendung in fortgeschrittener nichtlinearer Optik**

Bachelorarbeit von  
**Annika Belz**

27. Februar 2018

Prüfer: Prof. Dr. Tilman Pfau



5. Physikalisches Institut  
Universität Stuttgart  
Pfaffenwaldring 57, 70569 Stuttgart



## **Erklärung**

Ich versichere,

- dass ich diese Bachelorarbeit selbständig verfasst habe,
- dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen benutzt und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet habe,
- dass die eingereichte Arbeit weder vollständig noch in wesentlichen Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens gewesen ist,
- dass ich die Arbeit weder vollständig noch in Teilen bereits veröffentlicht habe, es sei denn, der Prüfungsausschuss hat die Veröffentlichung vorher genehmigt
- und dass der Inhalt des elektronischen Exemplars mit dem des Druckexemplars übereinstimmt.

Stuttgart, den 27. Februar 2018

*Annika Belz*



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Theoretische Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1. Atom-Licht-Wechselwirkung . . . . .	3
2.1.1. Drehwellennäherung . . . . .	4
2.1.2. Zwei-Niveau-System . . . . .	6
2.1.3. Viel-Wellen-Mischen . . . . .	8
2.1.4. Optische Eigenschaften . . . . .	9
2.1.5. Dopplerverbreiterung . . . . .	11
2.1.6. Übergangsdipolmoment . . . . .	13
2.1.7. Absorption von elektromagnetischer Strahlung . . . . .	14
2.2. Rydbergatome . . . . .	15
2.2.1. Rydbergblockade . . . . .	15
2.3. Rubidium . . . . .	16
<b>3. Grundlagen der Simulation</b>	<b>19</b>
3.1. Fehler der Simulation . . . . .	22
<b>4. Ergebnisse und Interpretation</b>	<b>23</b>
4.1. Acht-Wellen-Mischen . . . . .	23
4.1.1. Abhängigkeit von den Rabifrequenzen . . . . .	25
4.1.2. Abhängigkeit von der Laserverstimmung . . . . .	33
4.2. Vier-Wellen-Mischen . . . . .	34
4.2.1. Abhängigkeit von den Rabifrequenzen . . . . .	36
4.2.2. Abhängigkeit von der Laserverstimmung . . . . .	39
4.3. Vergleich Acht- und Vier-Wellen-Mischen . . . . .	40
<b>5. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>41</b>
<b>A. Anhang</b>	<b>43</b>
A.1. Werte Simulation . . . . .	43
A.2. Acht-Level-System . . . . .	44
A.3. Vier-Level-System . . . . .	46
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>47</b>



# 1. Einleitung

Die Sicherheit digitaler Kommunikationsnetzwerke ist einer der kritischsten Punkte der heutigen Zeit. Da es prinzipiell nicht möglich ist diese abhörsicher zu machen, ist die Forschung an Quantennetzwerken in den letzten Jahren notwendiger denn je geworden. Die Quantenkryptographie [1] erlaubt eine Übermittlung von Nachrichten, ohne dass diese unbemerkt von einer dritten Person abgehört werden können. Hierbei werden die Nachrichten nicht wie bei klassischen Netzwerken durch Bits (englisch *binary digit*) übermittelt, sondern durch sogenannte Qubits (Quantenbits). Diese besitzen zwei Zustände, welche eindeutig voneinander unterschieden werden können.

Qubits lassen sich zum Beispiel durch Photonen realisieren. Dabei könnte man den Zustand eines solchen über dessen Polarisation definieren. Um die Idee der sicheren Quantenkommunikation mit Photonen zu realisieren, muss es möglich sein auf Abruf einzelne Photonen auszusenden.

Eine Möglichkeit, solch eine Einzelphotonenquelle zu realisieren, basiert auf dem Effekt der Rydbergblockade [2] und dem Vier-Wellen-Mischen in einer dampfgefüllten Mikrozelle [3]. Hierbei werden Atome in den Rydbergzustand angeregt, wobei das Anregungsvolumen (beschränkt durch die Größe der Zelle und der Bandbreite der entsprechenden Laser) kleiner ist als das Blockadevolumen, weshalb sich immer nur ein einzelnes Atom im Rydbergzustand [4, 5] befindet. Über ein Zwischenniveau wird das Atom wieder in den Grundzustand gebracht, wobei der letzte Übergang nicht getrieben wird. An jenem wird aufgrund des Vier-Wellen-Mischen ein einzelnes Photon mit bekannter Phase und Richtung emittiert. Durch das Pulsen der Laser läuft dieser Vorgang auf Verlangen ab. Als Anregungsmedium eignen sich am besten Alkalidämpfe, da diese aufgrund ihres einzelnen Valenzelektrons leicht in den Rydbergzustand angeregt werden können. Von diesen Elementen hat sich wiederum Rubidium als am besten erwiesen, da es beispielsweise im Vergleich zu Caesium einen größeren Blockaderadius aufweist. Dieses Experiment wurde schon erfolgreich durchgeführt [6], wobei ein Anregungsschema verwendet wurde, bei welchem die Atome vom  $5P$  Zustand direkt in den Rydbergzustand angeregt werden. Für diesen Übergang benötigt der entsprechende Laser eine sehr hohe Leistung, um Rabi-Frequenzen im Bereich von einigen hundert Megahertz zu erreichen. Bei ungefähr 480 nm kann dies aktuell nur durch einen Farbstoff-Laserverstärker erreicht werden, welcher aber die Repetitionsrate auf 50 Hz beschränkt. Dies macht es sehr schwer lange Messreihen mit konstanten Bedingungen durchzuführen.

Daher soll dieses Anregungsschema durch ein anderes ersetzt werden, bei dem jenes Problem nicht mehr besteht.

## 1. Einleitung

---

Eine Möglichkeit wäre die Wahl eines anderen Rydbergzustandes, was sich aber als nicht möglich erwiesen hat, da die Rydberg- $P$ - und  $D$ -Zustände von Rubidium nur eine sehr geringe Rydbergblockade aufweisen. Um für den gleichen Endzustand andere Wellenlängen für die Übergänge zu erhalten, müssen also die Zwischenniveaus anders gewählt werden. Aufgrund der Auswahlregel sind nur Anregungsschemata mit einer ungeraden Anzahl an Niveaus zwischen Grund- und Rydbergzustand möglich.

In dieser Arbeit werden daher ein Acht- sowie ein Vier-Niveau-System untersucht, um zu überprüfen, ob und wenn ja welches dieser Anregungsschemata sich für die Realisierung einer Einzelphotonenquelle eignet.

## 2. Theoretische Grundlagen

### 2.1. Atom-Licht-Wechselwirkung

Die theoretische Beschreibung der Wechselwirkung zwischen einem Atom und einem Lichtfeld ist die Grundlage für die meisten Prozesse in der Atomphysik und wird daher auch in vielen Lehrbüchern behandelt (z.B. [7]). Die folgenden Betrachtungen orientieren sich an der Arbeit von B. Huber [8].

Der Hamiltonoperator  $\tilde{H}$  eines Systems, das aus einem Atom mit mehreren Energieniveaus und angelegten Lichtfeldern besteht, setzt sich zusammen aus dem Hamilton des Atoms  $\tilde{H}_A$  und dem der Wechselwirkung zwischen Atom und Lichtfeld  $\tilde{H}_{AL}$

$$\tilde{H} = \tilde{H}_A + \tilde{H}_{AL}. \quad (2.1)$$

Ersterer enthält bei geeigneter Wahl der Basis nur Einträge in der Hauptdiagonale, welche sich aus den Eigenzuständen  $|i\rangle$  und deren entsprechender Energie  $\varepsilon_i$  ergeben

$$\tilde{H}_A = \sum_i \varepsilon_i |i\rangle \langle i|. \quad (2.2)$$

Da die Wellenlänge des angelegten Lichtfeldes sehr viel größer ist als das Atom, kann das Lichtfeld als klassische elektromagnetische Welle  $\mathbf{E}$  beschrieben werden. Somit ergibt sich für den Hamiltonoperator der Wechselwirkung

$$\tilde{H}_{AL} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}, \quad (2.3)$$

wobei  $\mathbf{d}$  dem Übergangsdipolmoment entspricht.

Hierbei wird angenommen, dass jedes Lichtfeld nur zwei benachbarte Zustände miteinander koppelt und immer im Bereich der Eigenfrequenz liegt.

Der Zustand dieses Systems lässt sich durch die Dichtematrix

$$\tilde{\rho}_{ij} = |i\rangle \langle j| \quad (2.4)$$

beschreiben. Die Diagonaleinträge dieser stehen jeweils für die Population des entsprechenden Eigenzustands und die Nebendiagonaleinträge für die Kohärenzen zwischen den Zuständen.

Zudem ist die Dichtematrix hermitesch, also  $\tilde{\rho}_{ij} = \tilde{\rho}_{ji}^*$ . Daraus folgt, dass die Diagonaleinträge stets reell sind. Da die Populationen oder auch Besetzungswahrscheinlichkeiten

normiert sind, muss zu jedem Zeitpunkt die Randbedingung  $\text{Spur}(\tilde{\rho}) = 1$  erfüllt sein. Die zeitliche Entwicklung der Dichtematrix wird durch die von-Neumann-, beziehungsweise Liouville-Gleichung

$$\frac{\partial \tilde{\rho}(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\tilde{H}, \tilde{\rho}(t)] \quad (2.5)$$

beschrieben, wobei  $[a, b] = ab - ba$  für den Kommutator und  $\hbar$  das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum steht. Diese Gleichung berücksichtigt aber noch nicht die endliche Lebensdauer der Zustände, welche zum Beispiel durch die spontane Emission gegeben ist. Jener Effekt kann durch den Lindblad Operator [9] beschrieben werden. Für den Zerfall von dem Ausgangszustand  $|i\rangle$  zu dem Endzustand  $|f\rangle$  mit der Zerfallsrate  $\Gamma_{if}$  gilt

$$\tilde{L}_D(\tilde{\rho}) = \sum_{i \rightarrow f} \Gamma_{if} \left( |f\rangle \tilde{\rho}_{ii} \langle f| - \frac{1}{2} \{ |i\rangle \langle i|, \tilde{\rho} \} \right), \quad (2.6)$$

$\{a, b\} = ab + ba$  bezeichnet hier den Antikommutator. Da die Population in dem System erhalten bleiben muss, gilt:  $\text{Spur}(\tilde{L}_D(\rho)) = 0$ .

Wird die von-Neumann-Gleichung nun um diesen Term ergänzt, so ergibt sich die Lindblad-Gleichung, beziehungsweise Mastergleichung in Lindbladform

$$\frac{\partial \tilde{\rho}(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\tilde{H}, \tilde{\rho}(t)] + \tilde{L}_D(\tilde{\rho}(t)). \quad (2.7)$$

Diese Differentialgleichung lässt sich durch die Verwendung der Drehwellennäherung lösen.

### 2.1.1. Drehwellennäherung

Das elektrische Feld eines Lasers, mit der Kreisfrequenz  $\omega_{ij}$  und dem Wellenvektor  $\mathbf{k}_{ij}$ , welcher den Übergang von  $|i\rangle$  nach  $|j\rangle$  anregt, kann als ebene Welle der Form

$$\mathbf{E}'_{ij}(t) = \frac{1}{2} [\mathbf{E}_{0,ij} e^{i(\omega_{ij}t - \mathbf{k}_{ij} \cdot \mathbf{r})} + \mathbf{E}_{0,ij}^* e^{-i(\omega_{ij}t - \mathbf{k}_{ij} \cdot \mathbf{r})}] \quad (2.8)$$

beschrieben werden.

Nun wird ein Koordinatensystem gewählt, welches mit der Laserfrequenz oszilliert. Somit vereinfacht sich Gleichung 2.8 zu

$$\mathbf{E}_{ij}(t) = \frac{1}{2} [\mathbf{E}_{0,ij} + \mathbf{E}_{0,ij}^* e^{-2i(\omega_{ij}t - \mathbf{k}_{ij} \cdot \mathbf{r})}] \quad (2.9)$$

und es ergibt sich nach Gleichung 2.3 für den Hamiltonoperator der Wechselwirkung

$$(H_{AL})_{ij} = -\frac{1}{2} \mathbf{d}_{ij} \cdot [\mathbf{E}_{0,ij} + \mathbf{E}_{0,ij}^* e^{-2i(\omega_{ij}t - \mathbf{k}_{ij} \cdot \mathbf{r})}]. \quad (2.10)$$

Der hintere Term oszilliert sehr schnell und kann daher vernachlässigt werden, was als Drehwellennäherung bezeichnet wird. Insgesamt vereinfacht sich der Hamiltonoperator der Wechselwirkung zwischen Atom und angelegtem Lichtfeld zu

$$\begin{aligned}(H_{\text{AL}})_{ij} &= -\frac{1}{2}\mathbf{d}_{ij} \cdot \mathbf{E}_{0,ij} \\ &= \frac{1}{2}\hbar\Omega_{ij}\end{aligned}\tag{2.11}$$

mit der Rabifrequenz

$$\Omega_{ij} = -\frac{\mathbf{d}_{ij} \cdot \mathbf{E}_{0,ij}}{\hbar},\tag{2.12}$$

welche die Frequenz der Oszillation der Populationen beschreibt. Da als Basis die Eigenbasis von dem Atom gewählt wurde, entsprechen diese Einträge auch den Nebendiagonalelementen des gesamten Hamiltonoperators

$$(H_{\text{AL}})_{ij} = (H)_{ij} \quad \text{für } i \neq j,\tag{2.13}$$

Für die Diagonaleinträge des Hamiltonoperators ergibt sich, wenn das Nullniveau der Energie im Grundzustand liegt, nach Gleichung 2.2

$$(H)_{ii} = \hbar \sum_{a=1}^{i-1} (\pm\Delta_{ab}) \quad \text{mit } b = a + 1,\tag{2.14}$$

mit den Verstimmungen  $\Delta_{ij}$ , wobei das Vorzeichen davon abhängt, ob es sich um eine stimulierte Emission (positiv) oder Absorption (negativ) handelt. Die Verstimmung bezeichnet die Differenz zwischen der Resonanzfrequenz  $\omega_0$  und der Frequenz des einstrahlten Lichts  $\omega_{\text{L}}$ ,

$$\Delta_{ij} = \omega_{\text{L},ij} - \omega_{0,ij}.\tag{2.15}$$

Um die Mastergleichung in der Drehwellennäherung zu lösen, muss natürlich auch die Dichtematrix sowie der Lindblad Operator in das neue Koordinatensystem transformiert werden.

Die Transformationsmatrix  $A$  ist in Diagonalform und gegeben durch

$$A_{ii} = \exp\left[-i \sum_{a=1}^{i-1} \pm (\omega_{ab}t - \mathbf{k}_{ab} \cdot \mathbf{r})\right] \quad \text{mit } b = a + 1,\tag{2.16}$$

für die Vorzeichen gilt dasselbe wie in Gleichung 2.14.

Der Lindblad-Operator ist invariant gegenüber der Transformation, genauso wie die Diagonaleinträge der Dichtematrix, wohingegen für die Kohärenzen gilt

$$\rho_{ij} = \tilde{\rho}_{ij} \exp\left[-i \sum_{a=i}^{j-1} \pm (\omega_{ab}t - \mathbf{k}_{ab} \cdot \mathbf{r})\right] \quad \text{mit } b = a + 1,\tag{2.17}$$

für  $j > i$ . Die anderen Terme können über die Hermitizität der Dichtematrix berechnet werden. Auch hier steht das Minuszeichen für eine Absorption und das Pluszeichen für eine Emission.

### 2.1.2. Zwei-Niveau-System

Das einfachste System, in dem Atom-Licht-Wechselwirkungen beobachtet werden können, ist ein Zwei-Niveau System. Ein Solches ist schematisch in Abbildung 2.1 zu sehen. Es besteht aus Atomen mit jeweils zwei Energieniveaus ( $|1\rangle$  und  $|2\rangle$ ), wobei die Energiedifferenz  $\hbar\omega_0$  beträgt. Dieser Übergang wird durch einen Laser mit der Frequenz  $\omega_L$  angeregt, welcher um den Wert  $\Delta = \omega_L - \omega_0$  verstimmt ist. Somit ergibt sich nach Gleichungen 2.11 und 2.14 für den Hamiltonoperator der Atome unter dem Einfluss eines Lichtfeldes

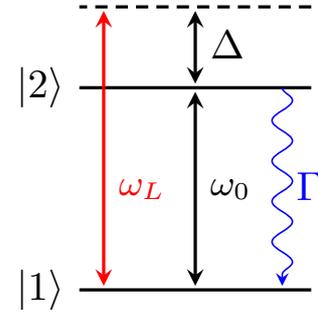


Abbildung 2.1.: Schema eines Zwei-Niveau-Systems

$$H = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \frac{1}{2}\Omega \\ \frac{1}{2}\Omega^* & -\Delta \end{pmatrix}. \quad (2.18)$$

Der angeregte Zustand zerfällt mit einer Zerfallsrate von  $\Gamma$  zurück in den Grundzustand. Hieraus lässt sich der Lindblad Operator

$$L_D(\rho) = \Gamma \begin{pmatrix} \rho_{22} & -\frac{1}{2}\rho_{12} \\ -\frac{1}{2}\rho_{21} & -\rho_{22} \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

aufstellen. Nach Gleichung 2.7 lässt sich daraus die Mastergleichung für das Zwei-Niveau-System formulieren. Für die einzelnen Komponenten der Dichtematrix lautet diese

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_{11} = \Gamma\rho_{22} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{12} - \rho_{21}) \quad (2.20)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_{12} = -\left(\frac{1}{2}\Gamma + i\Delta\right)\rho_{12} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{11} - \rho_{22}) \quad (2.21)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_{21} = -\left(\frac{1}{2}\Gamma - i\Delta\right)\rho_{21} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{22} - \rho_{11}) \quad (2.22)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_{22} = -\Gamma\rho_{22} + \frac{i}{2}\Omega(\rho_{21} - \rho_{12}). \quad (2.23)$$

Hierbei wurde angenommen, dass die Rabi-Frequenz reell ist, also  $\Omega = \Omega^*$ . Diese gekoppelten Differenzialgleichungen werden auch optische Blochgleichungen genannt und

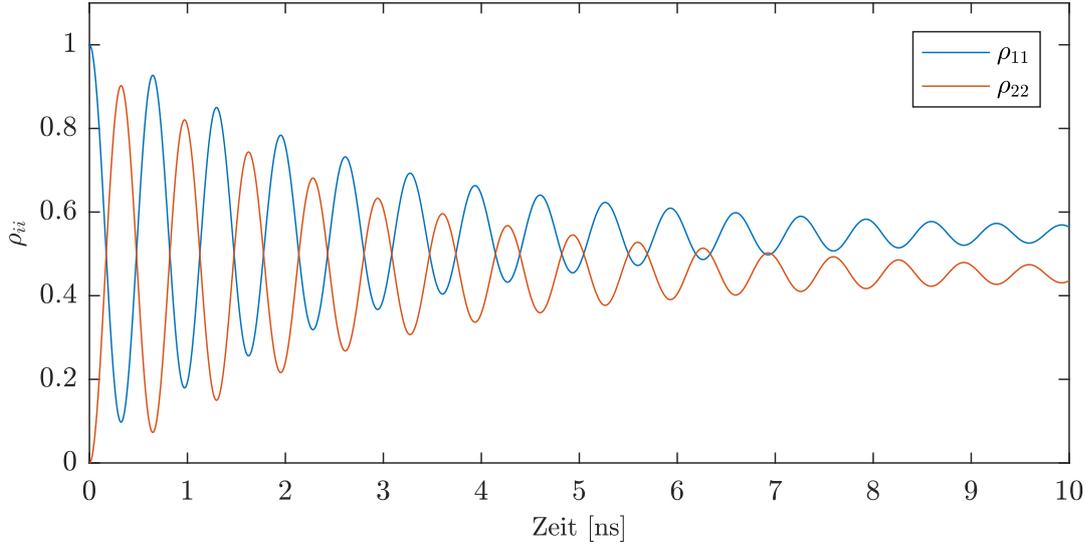


Abbildung 2.2.: Zeitliche Entwicklung der Diagonaleinträge der Dichtematrix  $\rho_{11}$  und  $\rho_{22}$  mit der Anfangsbedingung, dass sich zur Zeit  $t = 0$  ns alle Atome in dem Grundzustand befinden.

können numerisch gelöst werden, wobei aufgrund der Hermitizität von  $\rho$  nur eine der Gleichungen für die Nebendiagonalelemente gelöst werden muss.

Die Lösung dieser Gleichungen ist in Abbildung 2.2 zu sehen, mit der Randbedingung, dass sich zu Beginn alle Atome im Grundzustand  $|1\rangle$  befunden haben. Es ist deutlich die Oszillation der Populationen zu erkennen sowie, dass sich aufgrund des natürlichen Zerfalls nach einiger Zeit ein stationärer Zustand einstellt. Dieser lässt sich auch aus den optischen Blochgleichungen berechnen, indem die zeitliche Änderung der Dichtematrix Null gesetzt  $\frac{\partial}{\partial t}\rho = 0$  und das daraus resultierende lineare Gleichungssystem gelöst wird. So ergeben sich folgende Werte:

$$\rho_{11} = \frac{4\Delta^2 + \Gamma^2 + \Omega^2}{4\Delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2} \quad (2.24)$$

$$\rho_{12} = \frac{2\Omega \left(\Delta + i\frac{\Gamma}{2}\right)}{4\Delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2} \quad (2.25)$$

$$\rho_{21} = \frac{2\Omega \left(\Delta - i\frac{\Gamma}{2}\right)}{4\Delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2} \quad (2.26)$$

$$\rho_{22} = \frac{\Omega^2}{4\Delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2}. \quad (2.27)$$

Ohne den natürlichen Zerfall ( $\Gamma = 0$ ) und bei einer Anregung mit einem resonanten Laser ( $\Delta = 0$ ) wäre im stationären Zustand die Besetzungswahrscheinlichkeit der beiden Zustände identisch bei 0,5 und die Kohärenz null.

### 2.1.3. Viel-Wellen-Mischen

Das Viel-Wellen-Mischen beschreibt den Effekt, bei dem angelegte elektromagnetische Felder in einem nichtlinearen Medium dafür sorgen, dass ein oder mehrere weitere Felder erzeugt oder verstärkt werden. Damit dies auftritt, muss aber die sogenannte Phasenanpassungsbedingung erfüllt sein. Diese lautet für ein geschlossenes Anregungsschema, bei dem der letzte Zustand  $|n + 1\rangle$  dem ersten  $|1\rangle$  entspricht

$$0 = \sum_{i=1}^n \pm \mathbf{k}_{ij} \quad \text{mit } j = i + 1. \quad (2.28)$$

Ein negatives Vorzeichen haben Übergänge, die eine stimulierte Emission anregen. Wenn also die Wellenvektoren der angelegten Felder bekannt sind, kann aus diesen eindeutig bestimmt werden, wo das erzeugte Feld beziehungsweise Photon auftritt und dessen Phase vorhersagen. Dadurch lassen sich diese auch von Photonen unterscheiden, die bei der spontanen Emission entstehen, da jene in eine zufällige Richtung und mit zufälliger Phase ausgesendet werden.

Zusätzlich muss in einem geschlossenen Anregungsschema natürlich auch die Energieerhaltung gelten, welche besagt, dass

$$0 = \hbar \left( \sum_{i=1}^n \pm \omega_{ij} \right) \quad \text{mit } j = i + 1. \quad (2.29)$$

Für den Fall, dass alle Laser kopropagieren, also alle Wellenvektoren die gleiche Richtung haben, sind die beiden Bedingungen identisch.

#### Vier-Wellen-Mischen

Ein einfaches Beispiel für das Viel-Wellen-Mischen ist das Vier-Wellen-Mischen. Hierbei erzeugen drei angelegte elektrische Felder ( $\omega_{12}$ ,  $\omega_{23}$ ,  $\omega_{34}$ ) mit den entsprechenden Wellenvektoren ( $\mathbf{k}_{12}$ ,  $\mathbf{k}_{23}$ ,  $\mathbf{k}_{34}$ ) ein viertes Feld ( $\omega_{41}$  beziehungsweise  $\mathbf{k}_{41}$ ). Ein mögliches Anregungsschema hierfür ist in Abbildung 2.3 zu sehen.

Die entsprechende Phasenanpassungsbedingung und die Bedingung für die Energieerhaltung lauten

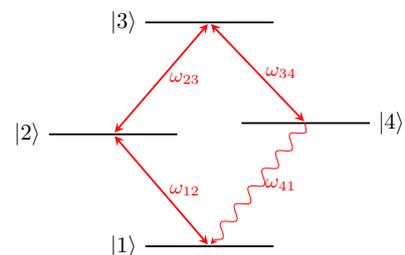


Abbildung 2.3.: Schema für das Vier-Wellen-Mischen

$$\mathbf{k}_{12} + \mathbf{k}_{23} - \mathbf{k}_{34} - \mathbf{k}_{41} = 0 \quad (2.30)$$

$$\hbar\omega_{12} + \hbar\omega_{23} - \hbar\omega_{34} - \hbar\omega_{41} = 0. \quad (2.31)$$

Dieses System lässt sich theoretisch beschreiben, indem wie zuvor gezeigt, die Mastergleichung aufgestellt und diese gelöst wird. Doch die einzelnen Einträge der Dichtematrix sind experimentell nicht messbar, weshalb in dem nächsten Abschnitt der Zusammenhang zwischen theoretisch berechenbaren und experimentell bestimmbareren Größen erklärt wird.

### 2.1.4. Optische Eigenschaften

Die atomare Polarisation  $\mathbf{P}$  eines Mediums und das elektrische Feld  $\mathbf{E}$  können jeweils als ebene Welle beschrieben werden, die sich in z-Richtung ausbreitet

$$\tilde{P}(\tilde{z}, \tilde{t}) = \frac{1}{2} \left( \tilde{P}_0 e^{i(\omega\tilde{t} - k\tilde{z})} + \tilde{P}_0^* e^{-i(\omega\tilde{t} - k\tilde{z})} \right) \quad (2.32)$$

$$\tilde{E}(\tilde{z}, \tilde{t}) = \frac{1}{2} \left( \tilde{E}_0 e^{i(\omega\tilde{t} - k\tilde{z})} + \tilde{E}_0^* e^{-i(\omega\tilde{t} - k\tilde{z})} \right) \quad (2.33)$$

und sind über die inhomogene Wellenfunktion

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial \tilde{z}^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial \tilde{t}^2} \right) \tilde{E}(\tilde{z}, \tilde{t}) = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial \tilde{t}^2} \tilde{P}(\tilde{z}, \tilde{t}) \quad (2.34)$$

miteinander verknüpft. Hierbei bezeichnet  $\varepsilon_0$  die elektrische Feldkonstante und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Da sich aber die Amplituden dieser Wellen im Vergleich zu der Laserfrequenz nur sehr langsam ändern, lässt sich die Wellengleichung zu

$$\frac{\partial}{\partial z} E_0(z, t) = -\frac{i\omega}{2\varepsilon_0 c} P_0(z, t) \quad (2.35)$$

vereinfachen [10]. Dies wird als die *slowly varying envelope approximation* bezeichnet. Somit lässt sich das gesamte elektrische Feld sowie die atomare Polarisation beschreiben durch

$$P(z, t) = \sum_i \sum_{j>i} \left( \frac{1}{2} (P_{ij,0} e^{i(\omega_{ij}t - k_{ij}z)} + P_{ij,0}^* e^{-i(\omega_{ij}t - k_{ij}z)}) \right) \quad (2.36)$$

$$E(z, t) = \sum_i \sum_{j>i} \left( \frac{1}{2} (E_{ij,0} e^{i(\omega_{ij}t - k_{ij}z)} + E_{ij,0}^* e^{-i(\omega_{ij}t - k_{ij}z)}) \right). \quad (2.37)$$

Eine weitere Definition der atomaren Polarisation [10] lautet

$$P = n\langle d \rangle. \quad (2.38)$$

## 2. Theoretische Grundlagen

---

Hierbei bezeichnet  $\langle \dots \rangle$  den Erwartungswert des Dipoloperators  $d$  und  $n$  die Atomdichte. Da es sich bei diesem System um ein Zustandsgemisch handelt, berechnet sich der Erwartungswert wie folgt:

$$\begin{aligned}
 \langle d \rangle &= \text{Spur} (\tilde{\rho}(t) \cdot d) \\
 &= \sum_i \sum_{j>i} (d_{ij} \tilde{\rho}_{ji}(t) + d_{ji} \tilde{\rho}_{ij}(t)) \\
 &= \sum_i \sum_{j>i} (d_{ij} \tilde{\rho}_{ji}(t) + (d_{ij} \tilde{\rho}_{ji}(t))^*).
 \end{aligned} \tag{2.39}$$

Wenn man dies in Gleichung 2.38 einsetzt und mithilfe von Gleichung 2.17 in das rotierende Koordinatensystem wechselt und die Drehwellennäherung durchführt, ergibt sich

$$P(z, t) = n \cdot \sum_i \sum_{j>i} (d_{ij} \rho_{ji}(t) e^{i(\omega_{ij}t - k_{ij}z)} + (d_{ij} \rho_{ji}(t))^* e^{-i(\omega_{ij}t - k_{ij}z)}). \tag{2.40}$$

Durch einen Koeffizientenvergleich von Gleichung 2.36 und 2.40 lässt sich nun eine Gleichung für  $P_{0,ij}$  aufstellen:

$$P_{ij,0}(z, t) = 2nd_{ij}\rho_{ji}(t). \tag{2.41}$$

Aus dieser Polarisation lässt sich wiederum mit Gleichung 2.35 das entsprechende elektrische Feld berechnen.

$$\frac{\partial}{\partial z} E_{ij,0}(z, t) = -\frac{i\omega_{ij}}{\varepsilon_0 c} nd_{ij}\rho_{ji}(t). \tag{2.42}$$

Um diese Gleichung zu lösen, wird die Annahme gemacht, dass die Dichtematrix unabhängig ist von  $z$ , woraus für das E-Feld in Abhängigkeit von der Länge  $L$  des Mediums folgt

$$E_{ij,0}(t) = E_{ij,0}^{\text{out}}(t) - E_{ij,0}^{\text{in}}(t) = -\frac{i\omega_{ij}}{\varepsilon_0 c} Lnd_{ij}\rho_{ji}(t). \tag{2.43}$$

$E_{ij,0}^{\text{in}}$  bezeichnet hierbei das elektrische Feld, welches von außen angelegt wurde und  $E_{ij,0}^{\text{out}}$  jenes, das hinter dem Medium gemessen werden kann.

Im Weiteren wird der Fall betrachtet, dass an diesem Übergang kein Feld anliegt, also  $E_{ij,0}^{\text{in}}(t) = 0$  weshalb sich der Term weiter zu

$$E_{ij,0}(t) = -\frac{i\omega_{ij}}{\varepsilon_0 c} Lnd_{ij}\rho_{ji}(t) \tag{2.44}$$

vereinfacht.

Experimentell gemessen wird dann aber nicht das elektrische Feld sondern entweder die

Intensität  $I$  oder die Photonenzahl  $N$ .  
Für die Intensität gilt

$$\begin{aligned} I_{ij}(t) &= \frac{1}{2} \varepsilon_0 c |E_{ij,0}(t)|^2. \\ &= \frac{1}{2} \frac{\omega_{ij}^2}{\varepsilon_0 c} L^2 n^2 |d_{ij}|^2 |\rho_{ji}(t)|^2. \end{aligned} \quad (2.45)$$

Durch eine anschließende Integration über die Querschnittsfläche  $A$  des Mediums bekommt folgt für die Leistung  $P_{L,ij}$

$$\begin{aligned} P_{L,ij}(t) &= \iint_A I_{ij}(t) \, dA \\ &= \frac{1}{2} \frac{\omega_{ij}^2}{\varepsilon_0 c} n^2 |d_{ij}|^2 |\rho_{ji}(t)|^2 L^2 A. \end{aligned} \quad (2.46)$$

Hier wurde angenommen, dass die Einträge der Dichtematrix unabhängig sind von der Fläche des angeregten Mediums.

Von dieser Leistung lässt sich auf die Anzahl der Photonen rückschließen, da die Leistung allgemein definiert ist als die Energieänderung pro Zeiteinheit und jedes emittierte Photon dieselbe Energie  $\hbar\omega$  hat und somit  $N$  Photonen eine Energie von  $N\hbar\omega$ . Folglich ergibt sich für die Änderung der Photonenzahl

$$\frac{dN_{ij}}{dt} = \frac{P_{L,ij}(t)}{\hbar\omega_{ij}} \quad (2.47)$$

und für die Menge  $N_{ij}$  der nach einer Zeit  $t_0$  emittierten Photonen

$$\begin{aligned} N_{ij}(t_0) &= \frac{1}{\hbar\omega_{ij}} \int_0^{t_0} P_{L,ij}(t) \, dt \\ &= \frac{1}{2} \frac{\omega_{ij}}{\hbar\varepsilon_0 c} n^2 |d_{ij}|^2 L^2 A \int_0^{t_0} |\rho_{ji}(t)|^2 \, dt. \end{aligned} \quad (2.48)$$

Somit muss für eine hohe Photonenzahl der Term  $\int |\rho_{ji}(t)|^2 \, dt$  optimiert und ein Übergang mit einem großen Dipolmatrixelement ausgewählt werden. Auch eine hohe Atomdichte ist von Vorteil. Diese kann aber nicht beliebig erhöht werden, da sonst unerwünschte Wechselwirkungseffekte auftreten.

### 2.1.5. Dopplerverbreiterung

Eine Eigenschaft der Atome die bisher noch nicht in Betracht gezogen wurde ist die Bewegung jener. Je nach Temperatur  $T$  spielt diese eine nicht zu vernachlässigende Rolle.

## 2. Theoretische Grundlagen

---

Die mittlere eindimensionale Geschwindigkeit  $\hat{v}$  von Atomen der Masse  $m$  berechnet sich wie folgt

$$\hat{v} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}}, \quad (2.49)$$

wobei  $k_B$  die Boltzmann-Konstante beschreibt. Die Energieniveaus der Atome erfahren wegen dem Dopplereffekt eine zusätzliche Verstimmung

$$\Delta_{\text{Dop}} = -\mathbf{v} \cdot \mathbf{k}. \quad (2.50)$$

Aufgrund des Skalarproduktes ist also lediglich der Teil der Geschwindigkeit von Interesse, der parallel zum Lichtfeld verläuft. Da die verschiedenen Geschwindigkeitsklassen nach der Maxwell-Boltzmann-Verteilung auftreten, beschreibt

$$p(v, T) = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T}} \exp\left[-\frac{mv^2}{2k_B T}\right] \quad (2.51)$$

die Wahrscheinlichkeit, dass in einem Medium mit der Temperatur  $T$  ein Atom die Geschwindigkeit  $v$  hat.

Um den Dopplereffekt nun bei der Berechnung der Dichtematrix mit einzubeziehen erweitert man den Hamiltonoperator (Gleichung 2.14) um die zusätzlichen Verstimmungen (Gleichung 2.50) und löst die Mastergleichung für verschiedene Geschwindigkeitsklassen. Diese Ergebnisse werden anschließend mit ihrer entsprechenden Wahrscheinlichkeit nach Gleichung 2.51 gewichtet und aufsummiert.

Der Dopplereffekt führt zu einer Linienverbreiterung der natürlichen Linienbreite von atomaren Übergängen. Diese ist in Abbildung 2.4 für die Kohärenz eines Zweiniveausystems zu sehen. Hierbei sind betragsmäßig hohe Geschwindigkeitsklassen für die Beiträge bei hohen Verstimmungen verantwortlich, welche aber nur sehr gering sind, da hohe Geschwindigkeiten nicht sehr wahrscheinlich sind. Langsame Atome sind wahrscheinlicher, aber sorgen nur für eine geringe zusätzliche Verstimmung. Die Halbwertsbreite der verbreiterten Spektrallinie ist circa 50 mal so breit wie jene für Atome, die sich parallel zum Lichtfeld nicht bewegen.

Allgemein ist die Halbwertsbreite der Dopplerverbreiterung [11] definiert als

$$\omega_{\text{Dop}} = \frac{\omega_L}{c} \sqrt{\frac{8 \ln(2) k_B T}{m}} \quad (2.52)$$

Durch die zusätzliche Verstimmung sind somit bei der Anregung eines Übergangs nicht immer alle Atome auf Resonanz. Daher wird die effektive atomare Dichte  $\tilde{n}$  eingeführt, welche angibt wie viele Atome bei der Verstimmung  $\Delta$  des Lasers resonant angeregt werden

$$\tilde{n}(\Delta) d\Delta = n \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \frac{2}{\omega_{\text{Dop}}} \exp\left[-4 \ln(2) \left(\frac{\Delta}{\omega_{\text{Dop}}}\right)^2\right] d\Delta, \quad (2.53)$$

hierbei bezeichnet  $n$  die Atomdichte und  $\omega_{\text{Dop}}$  die Halbwertsbreite der Dopplerverbreiterung, welche wie in Gleichung 2.52 definiert ist.

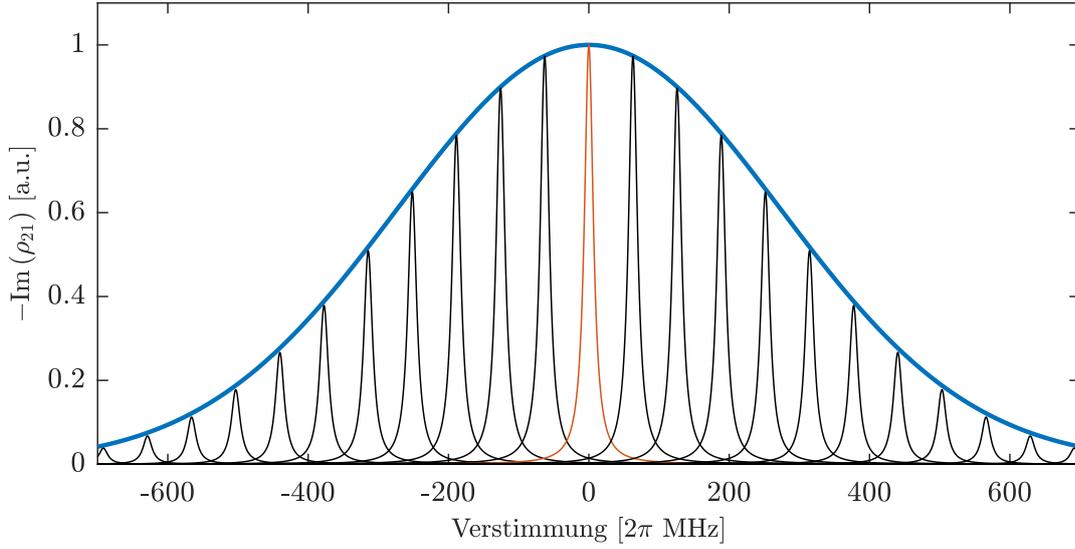


Abbildung 2.4.: Imaginärteil der Kohärenz  $\rho_{21}$ , für eine mittlere Geschwindigkeit von  $0 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  (rot), verschiedene Geschwindigkeitsklassen (schwarz), sowie über diese gemittelt (blau) bei einer Temperatur von  $200^\circ\text{C}$  in Abhängigkeit von der Verstimmung des zweiten Lasers.

### 2.1.6. Übergangsdipolmoment

Das Übergangsdipolmoment (oder auch Übergangmatrixelement) ist ein Maß dafür, wie gut ein Atom an ein Lichtfeld koppeln kann. Hierbei ist aber zu beachten, dass nicht die eigentlichen Energieniveaus miteinander koppeln, sondern die einzelnen Hyperfeinniveaus. Daher ergibt sich ein effektives Übergangsdipolmoment [12]

$$|d_{\text{eff}}(F \rightarrow F')|^2 = \frac{1}{3} S_{FF'} |\langle J || e\mathbf{r} || J' \rangle|^2 \quad (2.54)$$

für den Übergang von  $F$  nach  $F'$  mit der Konstante

$$S_{FF'} = (2F' + 1)(2J + 1) \left\{ \begin{matrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{matrix} \right\}^2, \quad (2.55)$$

die angibt, wie stark die aufgespaltenen Energieniveaus miteinander wechselwirken.  $\{\dots\}$  steht hier für das Wigner 6j-Symbol.  $I$ ,  $J$  und  $F$  beschreiben die Quantenzahlen (Kernspin, Gesamtdrehimpuls Elektron und Gesamtdrehimpuls Atom) des Atoms.

Nun ist aber meistens die Bandbreite des verwendeten Lasers zu groß, als dass man genau sagen kann, welche Zustände man anregt. Daher kann man für große Rabi-Frequenzen und kurze Anregungspulse die Näherung machen, dass nur der Übergang mit der stärksten Kopplungskonstante  $S_{FF'}$  angeregt wird.

### 2.1.7. Absorption von elektromagnetischer Strahlung

Wenn elektrische Strahlung mit der Intensität  $I$  ein Medium der Länge  $L$  durchquert, so wird diese von den vorhandenen Atomen teilweise absorbiert. Die Änderung der Intensität wird durch

$$dI = -\alpha I dL \quad (2.56)$$

beschrieben, mit dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha$ . Das Atom kann in diesem Fall als Zwei-Niveau-System beschrieben werden, wie in Unterabschnitt 2.1.2. Aus dem Intensitätenverhältnis [12]

$$\frac{I}{I_{\text{sat}}} = 2 \left( \frac{\Omega}{\Gamma} \right)^2 \quad (2.57)$$

mit der Sättigungsintensität

$$I_{\text{sat}} = \frac{c\epsilon_0 \hbar^2 \Gamma^2}{4d_{21}^2} \quad (2.58)$$

lässt sich die Population des angeregten Zustandes schreiben als

$$\rho_{22} = \frac{\frac{I}{I_{\text{sat}}}}{2 \left( 1 + \frac{I}{I_{\text{sat}}} + 4 \left( \frac{\Delta}{\Gamma} \right)^2 \right)}. \quad (2.59)$$

Mit diesem kann man den Streuquerschnitt [11]  $\sigma$  berechnen

$$\begin{aligned} \sigma &= \frac{\hbar\omega_L \Gamma \rho_{22}}{I} \\ &= \frac{\hbar\omega_L \Gamma}{2I_{\text{sat}}} \frac{1}{1 + \frac{I}{I_{\text{sat}}} + 4 \left( \frac{\Delta}{\Gamma} \right)^2}. \end{aligned} \quad (2.60)$$

Für geringe Intensitäten  $I < I_{\text{sat}}$  kann der Term  $I/I_{\text{sat}}$  vernachlässigt werden, wodurch der Streuquerschnitt unabhängig von der eingehenden Intensität wird.

Mit Hilfe von diesem lässt sich nun der Absorptionskoeffizient  $\alpha$

$$\begin{aligned} \alpha &= n \cdot \sigma \\ &= n \frac{2\omega_L d_{21}^2}{\hbar c \epsilon_0} \frac{1}{\Gamma + 4 \left( \frac{\Delta}{\Gamma} \right)^2} \end{aligned} \quad (2.61)$$

berechnen. Hierbei steht  $n$  für die Atomdichte.

Bei dieser Betrachtung wurde aber bisher noch nicht der Dopplereffekt mit einbezogen. Dieser sorgt dafür, dass der Absorptionskoeffizient kleiner wird, da die elektromagnetische Strahlung immer nur zu Atomen einer einzelnen Geschwindigkeitsklasse resonant ist. Mit Gleichung 2.52 und 2.53 ergibt sich so

$$\begin{aligned} \alpha_{\text{Dop}} &= \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{n}(\Delta - \Delta') \sigma(\Delta') d\Delta' \\ &= n \frac{2\omega_L d_{21}^2}{\hbar c \epsilon_0} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \frac{2}{\omega_{\text{Dop}}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-4 \ln(2) \left( \frac{\Delta - \Delta'}{\omega_{\text{Dop}}} \right)^2} \frac{1}{\Gamma + 4 \left( \frac{\Delta}{\Gamma} \right)^2} d\Delta'. \end{aligned} \quad (2.62)$$

Da die natürliche Linienbreite im Vergleich zu der Dopplerverbreiterung nur sehr schmal ist, kann diese als Delta-Distribution genähert werden, wodurch das Integral analytisch lösbar wird

$$\alpha_{\text{Dop}} = n \frac{2\omega_L d_{21}^2}{\hbar c \varepsilon_0} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \frac{2}{\omega_{\text{Dop}}} \frac{\pi}{2} e^{-4 \ln(2) \left(\frac{\Delta}{\omega_{\text{Dop}}}\right)^2}. \quad (2.63)$$

Mit der zusätzlichen Annahme, dass der Laser nicht Verstimmt ist also  $\Delta = 0$ , lässt sich der Absorptionskoeffizient weiter vereinfachen zu

$$\alpha_{\text{Dop}} = n \frac{2\omega_L d_{21}^2}{\hbar c \varepsilon_0} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \frac{2}{\omega_{\text{Dop}}} \frac{\pi}{2}. \quad (2.64)$$

Aus diesem kann nun auch die optische Dichte bestimmt werden, welche definiert ist, als das Produkt von dem Absorptionskoeffizienten und der Länge  $L$ , die die Strahlung durchquert

$$\begin{aligned} OD &= \alpha_{\text{Dop}} L \\ &= n \frac{2\omega_L d_{21}^2}{\hbar c \varepsilon_0} \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \frac{\pi}{\omega_{\text{Dop}}} L \\ &= n \frac{d_{21}^2}{\hbar \varepsilon_0} \sqrt{\frac{\pi m}{2k_B T}} L. \end{aligned} \quad (2.65)$$

Die optische Dichte hängt also lediglich von dem Übergangsdipolmoment des entsprechenden Übergangs, nicht aber von dessen Wellenlänge, ab.

## 2.2. Rydbergatome

Als Rydbergatome [4, 5] werden Atome bezeichnet, die mindestens ein Elektron in einem Zustand mit einer sehr großen Hauptquantenzahl  $n$  und somit Radien von bis zu einigen Mikrometern besitzen. Am einfachsten in den Rydbergzustand zu bringen sind Elemente der ersten Hauptgruppe, sogenannte Alkalimetalle, da diese nur ein Valenzelektron besitzen, welches leicht angeregt werden kann. Dadurch, dass die Elektronen so weit von dem Atomkern entfernt sind und entsprechend gering die Wechselwirkung mit diesem ist, treten interessante Effekte zum Beispiel bei der Interaktion zwischen Rydbergatomen auf. Ein solcher wird in dem nächsten Abschnitt qualitativ behandelt.

### 2.2.1. Rydbergblockade

Durch ihre schwache Bindung an den Atomkern sind Rydbergatome sehr sensibel gegenüber äußeren elektrischen Feldern. Ein solches Feld geht zum Beispiel auch von anderen

Rydbergatomen auf Grund des großen Abstandes zwischen dem positiv geladenen Atomrumpf und dem Elektron im angeregten Zustand aus. Diese starke Wechselwirkung führt dazu, dass bei dem zweiten Atom die Energielevel angehoben werden. Ist diese größer als die Bandbreite der Anregung, so kann das zweite Atom nicht in den selben Rydbergzustand gebracht werden. Dies ist aber nur der Fall, solange es sich in so einem Abstand zum ersten Atom befindet, dass es das elektrische Feld von diesem noch spürt. Jener Abstand wird als Blockaderadius [2] bezeichnet, welcher sowohl von dem entsprechenden Atom und Rydbergzustand als auch von der Bandbreite des Lasers, mit dem die Anregung durchgeführt wird, abhängt. Ist das Anregungsmedium aber kleiner als das Blockadevolumen, so kann sich nur ein einziges Atom im Rydbergzustand befinden.

## 2.3. Rubidium

Rubidium ist ein Alkalimetall, steht somit in der ersten Hauptgruppe im Periodensystem und hat lediglich ein Valenzelektron, weshalb es leicht in den Rydbergzustand angeregt werden kann.

Rubidium kommt in zwei natürlichen Isotopen  $^{85}\text{Rb}$  und  $^{87}\text{Rb}$  in einem Isotopenverhältnis von 72,17 % zu 27,83 % vor. Alle folgenden Werte und Rechnungen beziehen sich, wenn nicht näher erläutert auf  $^{85}\text{Rb}$ .

Einige physikalischen Eigenschaften von Rubidium sind in Tabelle 2.1 zu sehen. Die D<sub>1</sub>-Linie entspricht hierbei dem Übergang vom Grundzustand  $5S_{1/2}$  zu dem ersten angeregten Zustand  $5P_{1/2}$  und die D<sub>2</sub>-Linie dem Übergang vom Grundzustand zu  $5P_{3/2}$ .

Tabelle 2.1.: Physikalische Eigenschaften von Rubidium [12].

		$^{85}\text{Rb}$
Protonenzahl	$Z$	37
Neutronenzahl	$N$	48
Masse	$m$	84,912 u
Kernspin	$I$	5/2
D <sub>1</sub> -Linie Wellenlänge	$\lambda_{D1}$	780,241 37 nm
D <sub>2</sub> -Linie Wellenlänge	$\lambda_{D2}$	794,978 01 nm
D <sub>1</sub> -Linie Übergangsdipolmoment	$\langle J = 1/2    e_r    J' = 1/2 \rangle$	$2,5377 \cdot 10^{-29} \text{ C m}$
D <sub>2</sub> -Linie Übergangsdipolmoment	$\langle J = 1/2    e_r    J' = 3/2 \rangle$	$3,584 25 \cdot 10^{-29} \text{ C m}$

Ein einfaches Energieschema ist in Abbildung 2.5 abgebildet, wobei auf die Darstellung der Hyperfeinstruktur verzichtet wurde.

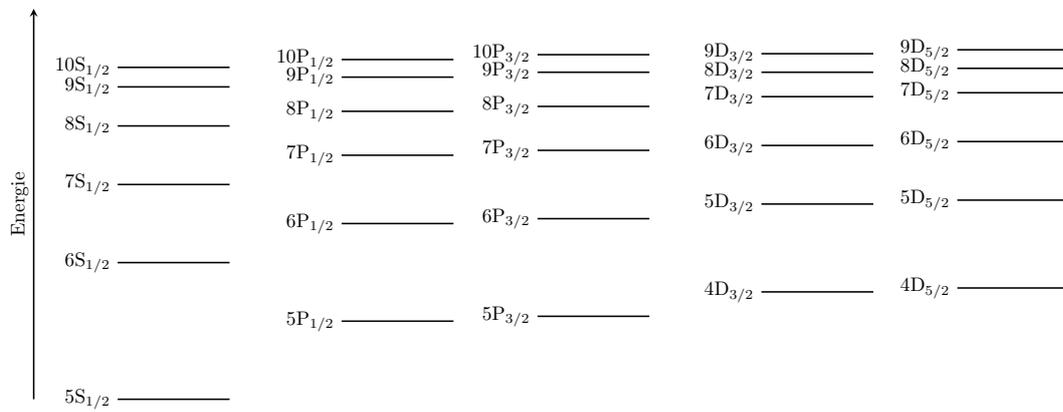


Abbildung 2.5.: Einfaches Energieschema von Rubidium



### 3. Grundlagen der Simulation

Um die Effizienz verschiedener Anregungsschemata zu untersuchen und miteinander zu vergleichen, wurden Simulationen in MATLAB und Mathematica geschrieben, die für das entsprechende System die Dichtematrix numerisch berechnen. Hierfür wurden zuerst mithilfe von Mathematica, wie in Abschnitt 2.1 beschrieben, der Hamilton- und Lindblad-Operator berechnet und mit diesen die Lindbladgleichung aufgestellt. Aufgrund der Hermitizität der Dichtematrix ergeben sich so für ein  $N$ -Level-System  $\frac{N^2+N}{2}$ -linear unabhängige gekoppelte Gleichungen. Man könnte dies noch um eine weitere Gleichung verringern, wenn man die Bedingung verwendet, dass die gesamte Population in dem System erhalten bleiben muss. Dies wurde hier aber nicht gemacht, da man so über die Spur von  $\rho$  auf die Genauigkeit der Lösung zurück schließen kann.

Je nachdem, ob man die zeitabhängige Lösung ( $\frac{\partial}{\partial t}\rho \neq 0$ ) oder den stationären Zustand ( $\frac{\partial}{\partial t}\rho = 0$ ) berechnen will, handelt es sich um ein System aus gekoppelten linearen Differentialgleichungen oder einem einfachen linearen Gleichungssystem. Letzteres kann direkt und analytisch gelöst werden. Um die zeitabhängige Lösung zu bestimmen, wurde in MATLAB ein vierstufiges Runge-Kutta-Verfahren implementiert, welches diese numerisch löst. Hierbei werden die Ableitungen als Differenzenquotienten genähert und so die Funktion rekursiv nach festgelegten Zeitabschnitten  $h$  berechnet. Für eine Differentialgleichung  $y'(t) = f(t, y(t))$  berechnet sich so die Lösung

$$y_{n+1} = y_n + \frac{1}{6}h(k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \quad (3.1)$$

mit

$$\begin{aligned} k_1 &= f(t_n, y_n), \\ k_2 &= f\left(t_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_1\right), \\ k_3 &= f\left(t_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_2\right), \\ k_4 &= f(t_n + h, y_n + hk_3), \end{aligned} \quad (3.2)$$

sowie der Anfangsbedingung  $y(t_0) = y_0$ . Hierbei macht es keinen Unterschied, ob es sich bei  $y(t)$  um eine einzelne Gleichung oder um ein Gleichungssystem wie in diesem Fall handelt.

Als Startbedingung wurde bei allen Schemata die Lösung von dem jeweiligen stationären Zustand zum Zeitpunkt  $t = 0$  verwendet. Das bedeutet, dass wenn alle Laser erst mit

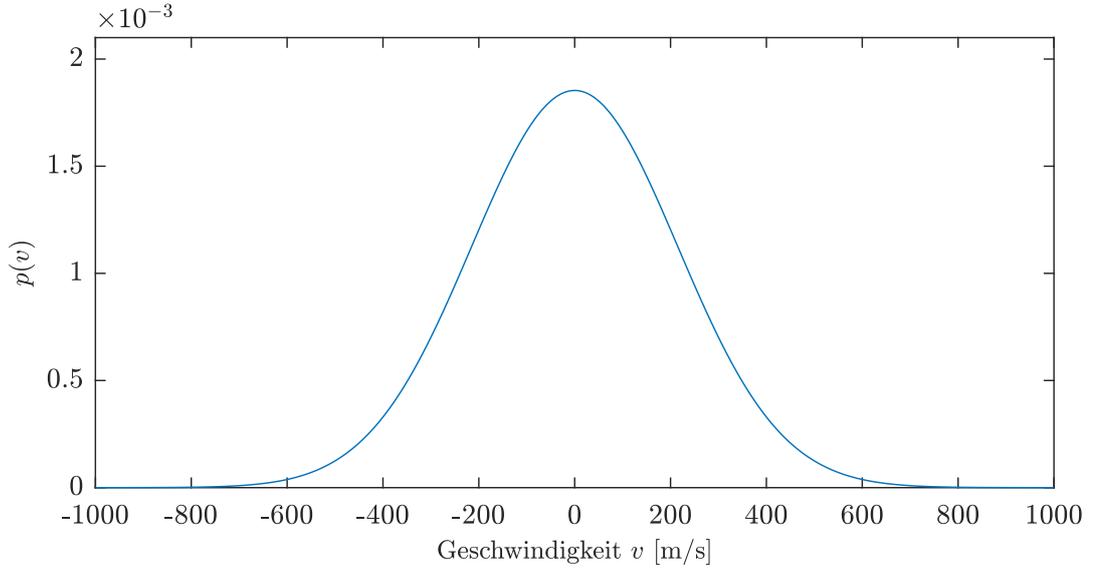


Abbildung 3.1.: Boltzmann Verteilung der Geschwindigkeitsklassen bei einer Temperatur von 200 °C für Rubidium.

dem Beginn des Experiments ( $t \geq 0$ ) angemacht werden, sich bei  $t_0$  alle Atome in dem Grundzustand aufhalten. Wenn aber zum Beispiel der Laser, der den Übergang von  $|1\rangle$  nach  $|2\rangle$  treibt schon davor ( $t < 0$ ) an ist, so befinden sich schon ein Teil der Atome bei  $t_0$  in einem angeregten Zustand.

Um den Dopplereffekt zu berücksichtigen, wird nicht nur die Dichtematrix für jeden Zeitpunkt bestimmt, sondern auch für verschiedene Geschwindigkeitsklassen mit den entsprechenden zusätzlichen Termen für die Verstimmungen der Energieniveaus. Diese Ergebnisse werden wie in Unterabschnitt 2.1.5 beschrieben, je nach ihrer Wahrscheinlichkeit gewichtet und aufsummiert.

In Abbildung 3.1 ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Geschwindigkeitsklassen für Rubidium bei einer Temperatur von 200 °C zu sehen. Diese hohe Temperatur ist notwendig, um eine ausreichend große Atomdichte in der Zelle zu bekommen. Es ist zu erkennen, dass ab einer betragsmäßigen Geschwindigkeit von etwa  $700 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  die Wahrscheinlichkeit von diesen nahezu Null ist. Da die Boltzmann Verteilung normiert ist, muss gelten:

$$\int_{-\infty}^{\infty} p(v) dv \approx \Delta v \cdot \sum_{v=-\infty}^{\infty} p(v) = 1 \quad (3.3)$$

mit dem Abstand  $\Delta v$  zwischen zwei Geschwindigkeitsklassen. Für alle folgenden Simulationen wurden immer Geschwindigkeiten von  $-700 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  bis  $700 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  berücksichtigt, mit  $\Delta v = 1 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  und bei 200 °C. Für diesen Bereich ergibt sich für die Summe der Wahrschein-

lichkeiten

$$\sum_{v=-700}^{700} p(v) = 0,99997 \quad (3.4)$$

was genähert als 1 angesehen werden kann. Dies bedeutet, dass Atome mit einer Geschwindigkeiten von  $|v| > 700 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  ohnehin nur einen sehr geringen Beitrag zum Endergebnis beisteuern würden und daher vernachlässigt werden können.

Die Zeitspanne, in der das Photon generiert werden soll beträgt ungefähr 10 ns, da bei größeren Zeitskalen die natürliche Lebensdauer der Zustände sowie thermische Effekte zu große Rollen spielen würden.

Für gepulste Anregungen ist die Pulsform, die real generierten Pulsen am nächsten kommt, die Gauß-Funktion. Das Problem dieser ist, dass der entsprechende y-Wert nie exakt null wird. Deshalb gibt es die Blackman-Fensterfunktion, welche im Prinzip genau dies tut und so eine Gauß-Funktion beschreibt, die aber die Null erreicht.

Diese lautet für einen einzelnen Puls

$$w(t) = \left[ 0,42 - 0,5 \cdot \cos\left(\frac{2\pi(t-t_d)}{t_1}\right) + 0,08 \cdot \cos\left(\frac{4\pi(t-t_d)}{t_1}\right) \right] \cdot \Theta(t_1 - (t-t_d)) \cdot \Theta(t-t_d) \quad (3.5)$$

wobei  $t_1$  die Pulslänge,  $t_d$  die zeitliche Verzögerung und  $\Theta(t)$  die Heaviside-Funktion beschreibt.

Falls nicht näher erläutert, werden im Folgenden alle Pulse durch diese Form beschrieben. Für die Rabbifrequenz eines gepulsten Lasers mit der maximal Frequenz von  $\Omega_0$  gilt somit:

$$\Omega(t) = \Omega_0 \cdot w(t). \quad (3.6)$$

In den nachfolgenden Ausführungen bezeichnet bei gepulsten Anregungen  $\Omega_{ij}$  immer die maximale Frequenz  $\Omega_{0,ij}$ .

So kann theoretisch die Dichtematrix für beliebig große Systeme gelöst werden. Der einzige Faktor, der dies einschränkt ist die Rechendauer, sowie der Speicher des verwendeten Computers.

Für diese Arbeit wurde ein Acht- sowie Vier-Niveau-System in Abhängigkeit von verschiedenen Rabifrequenzen und Laserverstimmungen untersucht, von welchen man anschließend auf die entsprechenden Eigenschaften der benötigten Laser für das Experiment zurück schließen kann.

Die wichtigen Faktoren bei der Beurteilung wie gut oder schlecht ein Anregungsschema ist, sind zum einen die Anzahl der erzeugten Photonen, welche natürlich maximal sein sollten. Diese können nach Gleichung 2.48 berechnet werden, wobei immer die Photonenzahl nach 10 ns berechnet wird. Bei dieser Simulation können sich so im Gegensatz

zu dem späteren Experiment Werte ergeben, die größer sind als eins. Dies liegt daran, dass die Rydbergblockade hier nicht berücksichtigt wird.

Zum anderen muss, dass die Rydbergblockade funktioniert, die Population im Rydbergzustand möglichst groß sein.

Des weiteren muss darauf geachtet werden, dass die maximale Population im Endzustand ungefähr so groß ist wie die im Rydbergzustand, da es auch möglich ist, dass die Atome nicht in den Rydbergzustand angeregt werden sondern ein Raman-Übergang stattfindet [13]. Hierbei handelt es sich um einen Zwei-Photonen-Übergang, was bedeutet, dass in dem Zwischenniveau (was in diesem Fall der Rydbergzustand wäre) keine Populationen sind. Atome, die über diesen Weg in den Endzustand kommen, haben so die Rydbergblockade umgangen, wodurch es passieren könnte, dass mehrere Photonen gleichzeitig emittiert werden, was dem Grundprinzip einer Einzelphotonenquelle widersprechen würde.

Als Rydbergzustand wurde der  $40S_{1/2}$  Zustand gewählt, da dieser einen großen Blockade-Radius besitzt. Die Rydberg  $nS_{1/2}$  Zustände liegen aber alle energetisch sehr dicht beieinander, weshalb es keinen signifikanten Unterschied für die Simulation macht, welchen man wählt.

## 3.1. Fehler der Simulation

Es gibt natürlich noch einige Effekte, die in dieser Simulation nicht berücksichtigt werden. Einer davon ist der, dass Elektronen bei realen Experimenten durch spontane Emission in sogenannte Dunkelzustände zerfallen können. Dies sind Zustände, die nicht durch Laser angeregt werden und daher in der Simulation nicht vorkommen. Da aber von dem Zeitpunkt des ersten Pulses und dem erscheinen des generierten Photons nur wenige Nanosekunden liegen, sollte dies keinen allzu großen Faktor ausmachen.

Außerdem wird angenommen, dass die Atome nicht miteinander wechselwirken oder kollidieren. Bei sehr hohen Temperaturen und Dichten haben diese aber einen großen Effekt, welcher eigentlich nicht vernachlässigt werden darf.

Es wird auch nur der natürliche Zerfall und keine weiteren Dephasierungsprozesse mit in die Simulation einbezogen.

Die Reabsorption der Photonen vor dem Erreichen des Detektors wird auch vernachlässigt. Dies ist aber vertretbar, solange die entsprechende optische Dichte kleiner als eins ist.

# 4. Ergebnisse und Interpretation

## 4.1. Acht-Wellen-Mischen

Das verwendete Anregungsschema für das Acht-Wellen-Mischen ist in Abbildung 4.1 zu sehen. Hierbei sorgen die angelegten Felder dafür, dass zwischen dem letzten Zustand  $5P_{3/2}$  und dem Grundzustand  $5S_{1/2}$  ein weiteres Feld generiert wird. Die Zustände werden im weiteren wie folgt bezeichnet:

$$\begin{aligned} |1\rangle &= 5S_{1/2} & |5\rangle &= 40S_{1/2} \\ |2\rangle &= 5P_{1/2} & |6\rangle &= 6P_{3/2} \\ |3\rangle &= 10S_{1/2} & |7\rangle &= 8D_{5/2} \\ |4\rangle &= 6P_{1/2} & |8\rangle &= 5P_{3/2}, \end{aligned}$$

Der Hamiltonoperator, der dieses System beschreibt und das Programm, mit dem der Lindblad Operator aufgestellt wurde, sind in Abschnitt A.2 zu finden.

Die entscheidende Größe, die zeigt wie Effizient ein Anregungs-, beziehungsweise Pulschema ist, ist die Anzahl  $N$  der generierten Photonen. Wie in Unterabschnitt 2.1.4 gezeigt, lässt sich aus der Kohärenz zwischen den entsprechenden Zuständen diese Zahl berechnen. In diesem Fall sind dies die Zustände  $|8\rangle$  und  $|1\rangle$ . Nach Gleichung 2.48 gilt

$$N(t_0) = \frac{1}{2} \frac{\omega_{81}}{\hbar \epsilon_0 c} n^2 |d_{81}|^2 L^2 A \int_0^{t_0} |\rho_{18}(t)|^2 dt. \quad (4.1)$$

$d_{81}$  entspricht dem effektiven Übergangsdipolmoment, welches wie in Unterabschnitt 2.1.6 beschrieben, berechnet werden kann. Hierfür muss zuerst der Hyperfeinübergang bestimmt werden, der die stärkste Kopplungskonstante besitzt, welche in Gleichung 2.55 definiert ist. Aus den berechneten Werten in Tabelle 4.1 wird ersichtlich, dass der stärkste Hyperfeinübergang von  $F = 3$  nach  $F' = 4$  mit  $S_{FF'} = 9/14$  geht.

Somit ergibt sich für das effektive Übergangsdipolmoment von  $|8\rangle \rightarrow |1\rangle$

$$\begin{aligned} d_{81} &= d_{18} = \sqrt{\frac{1}{3} S_{34}} \langle J = 1/2 || e_r || J' = 3/2 \rangle \\ &= 1,659 \cdot 10^{-29} \text{ C m.} \end{aligned} \quad (4.2)$$

## 4. Ergebnisse und Interpretation

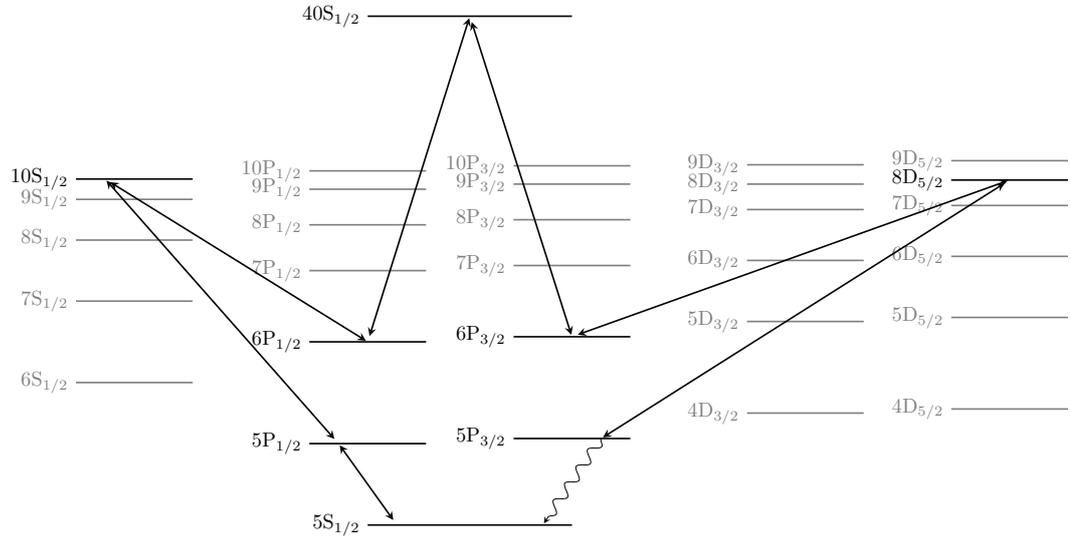


Abbildung 4.1.: Anregungsschema für das Acht-Wellen-Mischen

Tabelle 4.1.: Kopplungskonstante  $S_{FF'}$  für die verschiedenen Hyperfeinübergänge des D<sub>2</sub> Übergangs von Rubidium.

	$S_{F1}$	$S_{F2}$	$S_{F3}$	$S_{F4}$
$S_{2F'}$	$3/10$	$7/18$	$14/45$	-
$S_{3F'}$	-	$5/63$	$5/18$	$9/14$

Für die anderen Parameter (Atomdichte  $n$ , Zelllänge  $L$ , Anregungsfläche  $A$ ) wurden folgende Werte angenommen

$$n = 100 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3} \quad (4.3)$$

$$L = 1 \cdot 10^{-6} \text{ m} \quad (4.4)$$

$$A = \pi (0,5 \cdot 10^{-6})^2 \text{ m}^2. \quad (4.5)$$

Hieraus ergibt sich nach Gleichung 2.65 eine optische Dichte von 0,17. Dies bedeutet, dass nahezu keine Reabsorption der Photonen durch die Atome stattfindet.

Die verwendeten Werte für die Wellenlängen und Zerfallsraten sind in Abschnitt A.1 zu finden.

Weiter wurde angenommen, dass alle Laser kopropagieren, da für diesen Fall die Phasenanpassung für das Acht-Wellen-Mischen am besten erfüllt ist. Nach Gleichung 2.28 gilt für die zusätzliche Phase  $\Delta\phi$  mit der das generierte Photon erscheint

$$k_{12} + k_{23} - k_{34} + k_{45} = k_{56} - k_{67} + k_{78} + k_{81} + \Delta\phi. \quad (4.6)$$

Für die entsprechenden Wellenvektoren ergibt sich so numerisch  $\Delta\phi = 5,936 \cdot 10^{-6} \pi/\mu\text{m}$ . In den folgenden Abschnitten wurden jeweils einzelne Parameter variiert und optimiert.

### 4.1.1. Abhängigkeit von den Rabifrequenzen

In diesem Abschnitt werden die optimalen Rabifrequenzen für das Acht-Niveau-System gesucht. Hierbei wird besonderer Wert auf die Übergänge gelegt, die den Rydbergzustand beinhalten, also  $|4\rangle \rightarrow |5\rangle$  und  $|5\rangle \rightarrow |6\rangle$ . Dies liegt daran, dass nach Gleichung 2.12 die Rabifrequenz proportional zu dem Dipolmatrixelement des entsprechenden Übergangs ist. Zudem gilt für das elektrische Feld eines Lasers mit einem gaußförmigen Strahl

$$\begin{aligned} E_0 &= -\sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \\ &= -\sqrt{\frac{4P_L}{\pi\omega_0^2 c\epsilon_0}}, \end{aligned} \quad (4.7)$$

wobei  $\omega_0$  die Strahltaile bezeichnet und  $P_L$  die Leistung. Also folgt für die Rabifrequenz eines solchen Lasers

$$\Omega_{ij} = \frac{d_{ij}}{\hbar} \sqrt{\frac{4P_L}{\pi\omega_0^2 c\epsilon_0}}. \quad (4.8)$$

Da die Dipolmatrixelemente zu den Rydbergzuständen im Vergleich zu dem der D1-Linie zirka um einen Faktor von 200 kleiner sind, bedeutet dies, dass für dieselbe Rabifrequenz die 4000-fache Leistung benötigt wird. Deshalb ist es von großem Interesse vor allem für diese Übergänge die optimalen Rabifrequenzen zu finden.

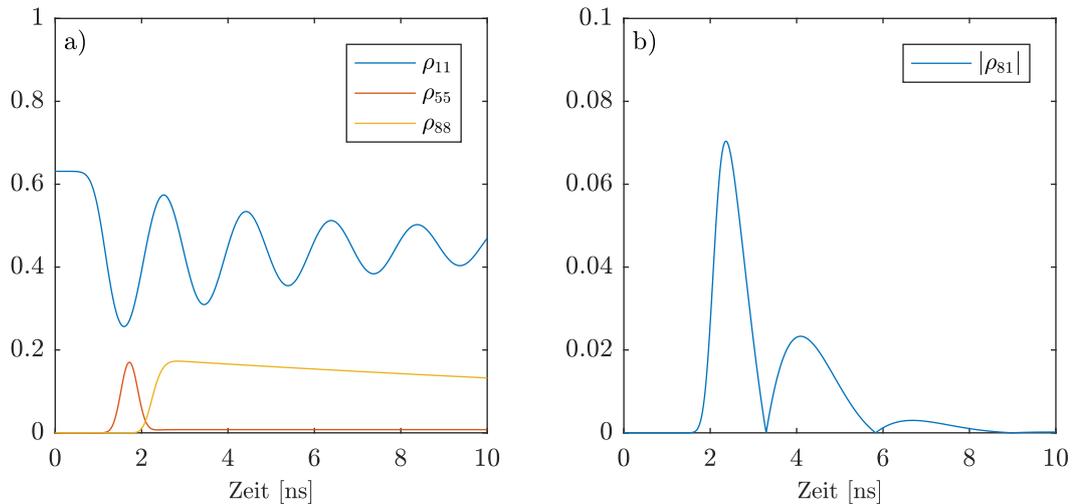


Abbildung 4.2.: a) zeigt die zeitliche Entwicklung der Populationen des Grund- ( $\rho_{11}$ ), Rydberg- ( $\rho_{55}$ ) sowie Endzustands ( $\rho_{88}$ ) und b) den Betrag der Kohärenz zwischen den Zuständen  $|8\rangle$  und  $|1\rangle$  in einem Achtniveausystem, wobei der erste Übergang kontinuierlich getrieben wurde mit  $\Omega_{12} = 2\pi \cdot 500$  MHz und die anderen gepulst angeregt wurden mit jeweils  $\Omega_{ij} = 2\pi \cdot 1000$  MHz einer Pulslänge  $t_1$  von 2 ns und Verzögerungen von  $t_{d23} = 0$  ns,  $t_{d34} = t_{d45} = 0,5$  ns beziehungsweise  $t_{d56} = t_{d67} = t_{d56} = 1$  ns.

### Kontinuierliche Anregung

Die einfachste Möglichkeit für das Acht-Wellen-Mischen wäre die Verwendung von kontinuierlich strahlenden Lasern, was bedeuten würde, dass die Rabi-Frequenzen zeitlich konstant wären. Diese Lösung hat aber zwei sehr große Nachteile beziehungsweise Probleme. Das erste ist, dass die Einzelphotonenquelle auf Verlangen das Photon aussenden soll, was bedeutet, dass es irgendeine Form von Startpunkt für den Prozess geben muss. Dies ist bei einer kontinuierlichen Anregung nicht der Fall.

Das zweite und weitaus schlimmere Problem ist, dass mit kontinuierlichen Lasern keine Besetzungsinversion erreicht werden kann, also auf lange Sicht der Grundzustand immer die höchste Population hat und entsprechend gering diese im Rydbergzustand ist. Deutlich verbessern lässt sich dies, indem nur der unterste Übergang ( $\omega_{12}$ ) kontinuierlich getrieben wird, wohingegen die anderen gepulst sind. Wie Abbildung 4.2 zeigt, kann so ein maximales  $\rho_{55}$  von ungefähr 0,2 erreicht werden, was auch fast exakt mit der maximalen Population im Endzustand übereinstimmt. Aus der Kohärenz lässt sich mithilfe von Gleichung 4.1 die Photonenzahl nach 10 ns bestimmen. Hier liegt sie bei ungefähr 0,05. Dies ist nicht sonderlich hoch und liegt hauptsächlich daran, dass die Populationen im Rydberg- und Endzustand doch sehr gering sind, was auch im Experiment dazu führen kann, dass die Rydbergblockade nicht wie gewünscht funktioniert. Weitaus effektiver ist es daher, wenn auf jeden Fall der Laser gepulst ist, der die Atome aus dem Grundzu-

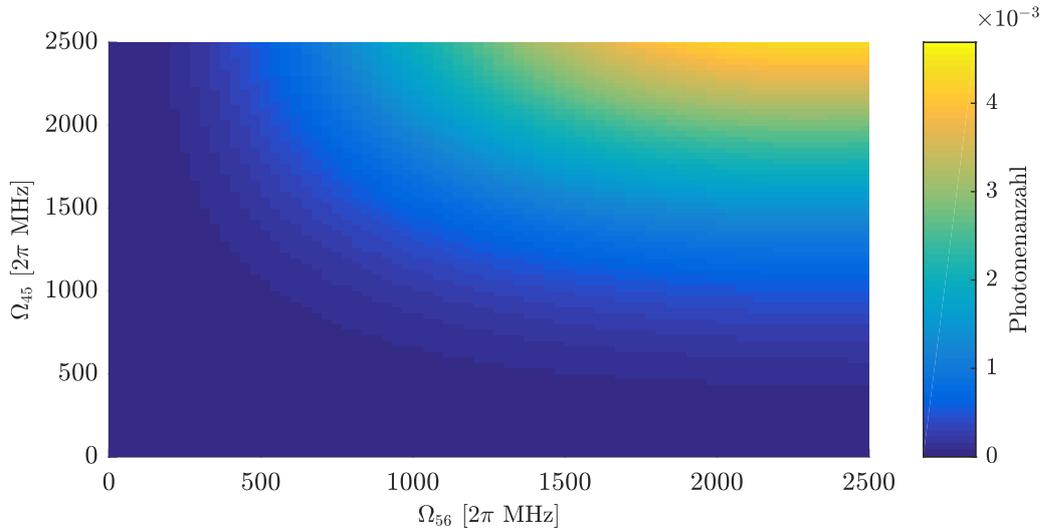


Abbildung 4.3.: Anzahl der generierten Photonen nach 10 ns für ein gepulstes Anregungsschema, mit  $t_d = 0$  ns und  $t_1 = 2$  ns für alle Pulse, in Abhängigkeit von den Rabifrequenzen  $\Omega_{45}$  und  $\Omega_{56}$ . Für die anderen Übergänge gilt jeweils  $\Omega_{ij} = 2\pi \cdot 1000$  MHz.

stand anregt. Wenn alle Laser gepulst sind, kann theoretisch sogar eine Besetzungszahl von eins im Rydbergzustand erreicht werden.

### Gepulste Anregung

Einer der wichtigsten Parameter in einem gepulsten Anregungsschema ist die zeitliche Verzögerung der Pulse relativ zueinander. Im einfachsten Fall wäre diese für alle Pulse identisch, was bedeutet, dass alle gleichzeitig starten. Das Problem hierbei ist, dass die Anregung der Atome auch eine gewisse Zeit benötigt. Dementsprechend ist es für zu kurze Pulse möglich, dass die Atome in dieser Zeit nur bis in den Rydbergzustand angeregt werden und entsprechend in diesem bleiben (abgesehen von spontaner Emission). Dies könnte zum Beispiel durch eine höhere Rabifrequenz oder längere Pulsdauer ausgeglichen werden. In Abbildung 4.3 ist die Anzahl der generierten Photonen in Abhängigkeit von den Rabifrequenzen  $\Omega_{45}$  und  $\Omega_{56}$  zu sehen. Hierbei tritt genau das zuvor genannte Problem auf. Es sind sehr hohe Rabifrequenzen nötig und selbst dann ist die Photonenzahl nur einige tausendstel groß.

Eine Alternative, die den Effekt berücksichtigt, dass Atome nicht instantan in einen anderen Zustand wechseln können, sondern hierbei Zeit vergeht, wäre, dass die Pulse zeitlich versetzt zueinander starten und so die Atome schrittweise über die einzelnen Zwischenniveaus in den Rydberg- und Endzustand gelangen. Ein solches Schema ist in

Abbildung 4.4 auf der linken Seite zu sehen. Vergleicht man dieses Ergebnis mit dem von Abbildung 4.2, so fällt auf, dass trotz leicht größeren Populationen die absolute Kohärenz zwischen End- und Grundzustand nur zirka ein fünftel so groß ist. Dies liegt daran, dass zu dem Zeitpunkt, an dem die ersten Photonen theoretisch beobachtet werden können (nach ca 2 ns), der erste Laser schon wieder aus ist und daher die Phasenbedingung nicht erfüllt ist. Dieses Problem kann gelöst werden, indem der erste Übergang nicht nur mit einem Puls getrieben wird, sondern mit zwei direkt aufeinanderfolgenden. Dies ist in Abbildung 4.4 auf der rechten Seite zu sehen. Hier ist leicht zu erkennen, dass diese Modifikation der Rabifrequenz  $\Omega_{12}$  nichts an den Populationen in den entscheidenden Zuständen (Rydberg- und Endzustand) ändert, aber der Betrag der Kohärenz, welcher entscheidend ist für die Gesamtphotonenanzahl, signifikant größer ist. Für das einfache Anregungsschema liegt die Photonenzahl bei 0,0006 und kann durch die Optimierung des ersten Pulses auf 0,0222, also fast einem Faktor 40, erhöht werden.

Eine weitere Möglichkeit die Populationen von dem Grundzustand in den Endzustand zu bringen, ist das sogenannte STIRAP-Verfahren (englisch *Stimulated Raman Adiabatic Passage*) [14–16]. Bei einem einfachen Drei-Niveau-System funktioniert dieses so, dass das zweite Feld, welches den Zwischenzustand mit dem Endzustand koppelt, schon vor dem ersten, welches die Atome von dem Grundzustand in das Zwischenniveau bringt, angemacht wird. Dies bedeutet, dass für gepulste Laser  $t_{d,1} > t_{d,2}$  gilt. Das besondere hierbei ist, dass im Idealfall die komplette Population vom Grundzustand in den Endzustand gepumpt wird, ohne das Populationen in dem Zwischenniveau landen.

Für das Acht-Niveau-System ist es am wichtigsten so viele Atome wie möglich in den Rydbergzustand zu bringen. In jenem Fall befinden sich aber zwischen diesem und dem Grundzustand nicht nur ein Zwischenniveau sondern drei. Somit gibt es verschiedene Ansätze hierfür STIRAP zu verwenden. Einer wäre diesen Weg in zwei Drei-Level-Systeme zu zerlegen und so zwei Standard STIRAP-Prozesse nacheinander anzuwenden. Dies hat sich aber für dieses Schema als nicht sehr effektiv erwiesen. Deshalb wurde eine andere alternative gewählt, bei der die Pulse der mittleren Übergänge die anderen einhüllen, also entweder eine entsprechend größere Pulslänge haben oder kontinuierlich sein müssen [16]. Dieses Anregungsschema wurde im folgenden verwendet, wobei sich das Pulsschema in Abbildung 4.5 als am besten erwiesen hat. Der zweite Puls für den Übergang von  $|1\rangle$  nach  $|2\rangle$  dient wieder lediglich der Phasenanpassung. Für die Übergänge von dem Rydberg- zum Endzustand wurden simultane und identische Pulse gewählt.

Um die perfekte Rabifrequenz für jeden Übergang zu finden, wurden diese so lange variiert, bis ein optimales Ergebnis erreicht wurde. In Abbildung 4.6 sind die maximalen Population im Rydberg- und Endzustand, sowie die Photonenzahl für verschiedene Rabifrequenzen  $\Omega_{45}$  und  $\Omega_{56}$  zu sehen. Hierbei ist direkt ersichtlich, dass für die maximale Photonenzahl andere Rabifrequenzen optimal sind als für die maximale Besetzungswahrscheinlichkeit im Rydberg- und Endzustand. Dies liegt vermutlich daran, dass die Phasen der einzelnen Geschwindigkeitsklassen in diesem Fall teilweise destruktiv interferieren, weshalb die absolute Kohärenz abnimmt. Bei einer maximalen Photonenzahl von 0,524

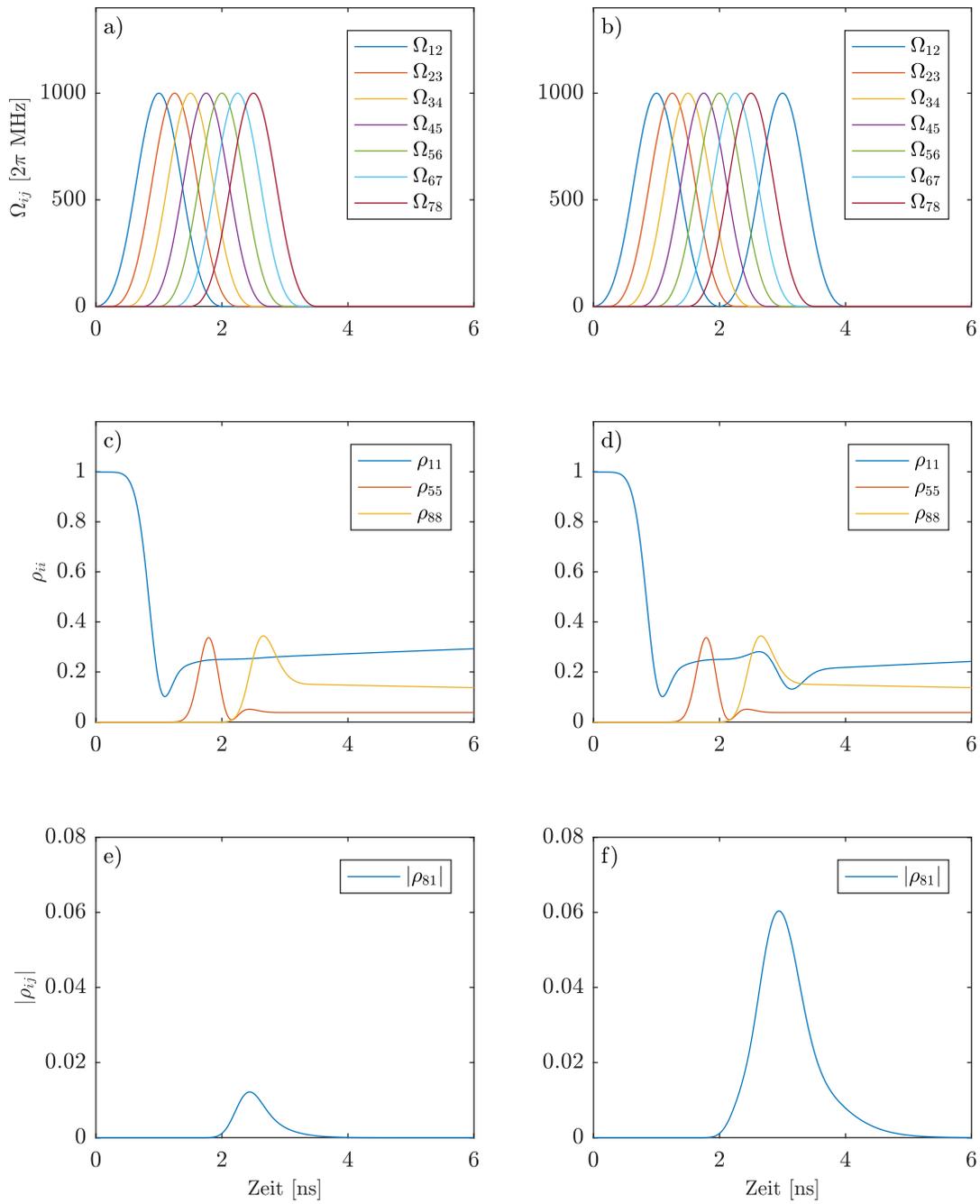


Abbildung 4.4.: c) und e) beziehungsweise d) und f) zeigen die Zeitentwicklung der Populationen des Grund- ( $\rho_{11}$ ), Rydberg- ( $\rho_{55}$ ) und Endzustandes ( $\rho_{88}$ ) sowie dem Betrag der Kohärenz ( $|\rho_{81}|$ ) für das entsprechende Anregungsschema, welches in a) beziehungsweise b) zu sehen ist.

#### 4. Ergebnisse und Interpretation

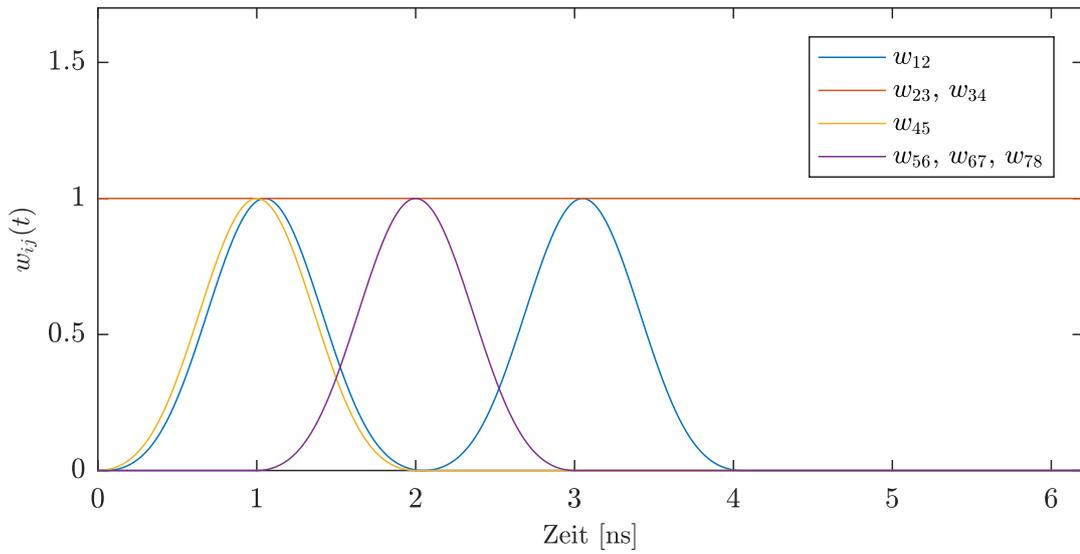


Abbildung 4.5.: Pulsschema für das Acht-Wellen-Mischen mit der STIRAP-Methode und den zeitliche Verzögerungen  $t_{d,12} = 0,05$  ns,  $t_{d,45} = 0$  ns sowie  $t_{d,56} = t_{d,67} = t_{d,78} = 1$  ns.

liegt das Maximum von  $\rho_{55}$  nur bei ungefähr 0,253, welches aber nur um 3% von der Population im Endzustand abweicht. Für diese Werte wurden folgende Rabi-Frequenzen angenommen:

$$\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1350 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{23} = 2\pi \cdot 1200 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1000 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{45} = 2\pi \cdot 600 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{56} = 2\pi \cdot 1100 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{67} = 2\pi \cdot 1300 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{78} = 2\pi \cdot 1000 \text{ MHz}.$$

Abbildung 4.7 zeigt für diese Rabi-Frequenzen die zeitliche Entwicklung der wichtigen Populationen und der Kohärenz zwischen End- und Grundzustand. Die Photonenzahl liegt hier bei 0,5235.

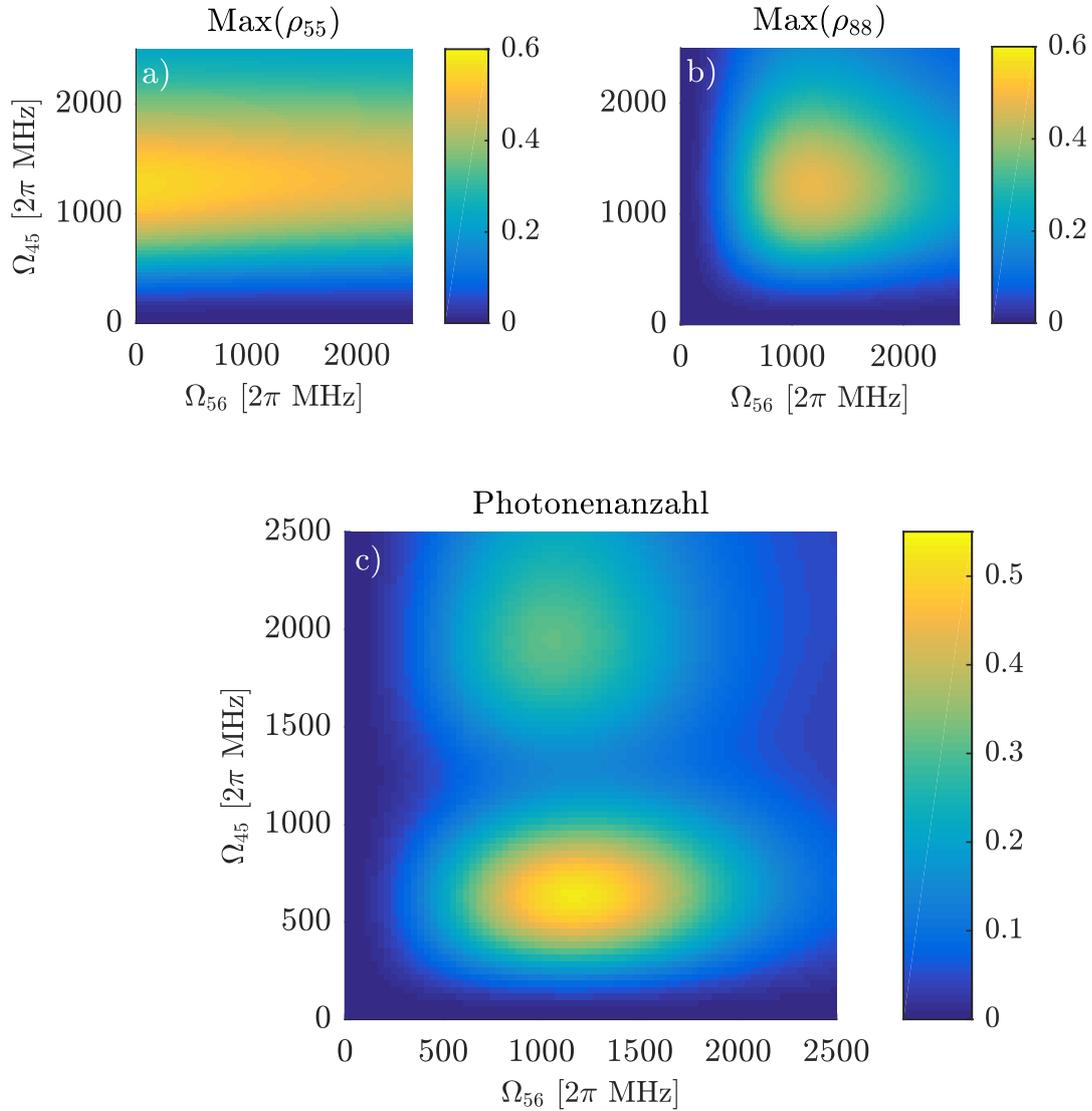


Abbildung 4.6.: Maximale Rydberg- (a) und Endzustandspopulation (b)), sowie die berechnete Photonenzahl (c) in Abhängigkeit von den Rabi-frequenzen  $\Omega_{45}$  und  $\Omega_{56}$ , mit der Pulssequenz aus Abbildung 4.5. Für die anderen verwendeten Rabi-frequenzen gilt  $\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1350$  MHz,  $\Omega_{23} = 2\pi \cdot 1200$  MHz,  $\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1000$  MHz,  $\Omega_{67} = 2\pi \cdot 1300$  MHz und  $\Omega_{78} = 2\pi \cdot 1000$  MHz.

#### 4. Ergebnisse und Interpretation

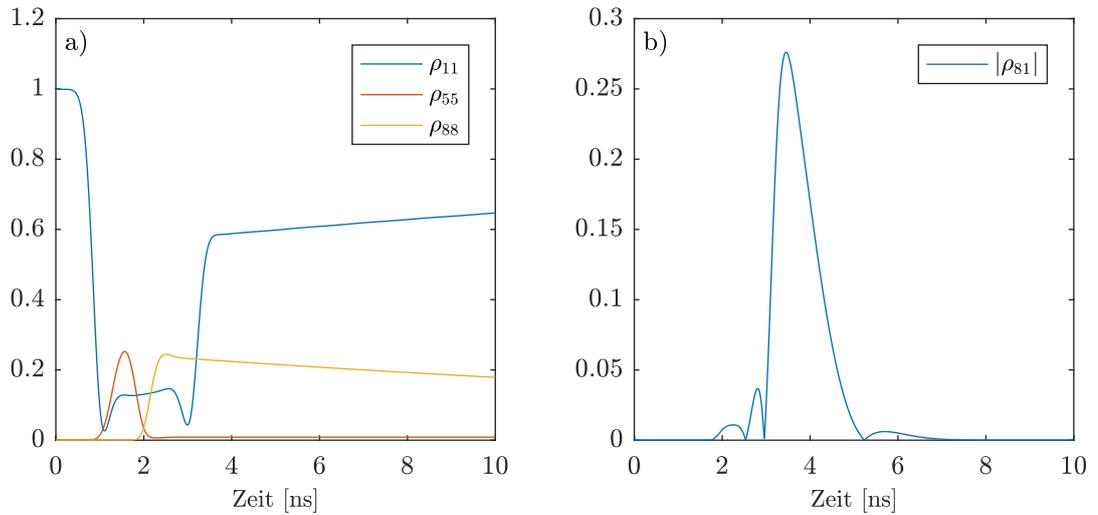


Abbildung 4.7.: a) Zeitliche Entwicklung der Populationen im Grund- ( $\rho_{11}$ ), Rydberg- ( $\rho_{55}$ ) und Endzustand ( $\rho_{88}$ ), b) Zeitliche Entwicklung des Absolutwert der Kohärenz zwischen dem End- und Grundzustand ( $|\rho_{81}|$ ) in einem Acht-Niveau-System, für ein gepulstes Anregungsschema mit der Pulssequenz aus Abbildung 4.5 und den Rabi-Frequenzen  $\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1350$  MHz,  $\Omega_{23} = 2\pi \cdot 1200$  MHz,  $\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1000$  MHz,  $\Omega_{45} = 2\pi \cdot 600$  MHz,  $\Omega_{56} = 2\pi \cdot 1100$  MHz,  $\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1300$  MHz und  $\Omega_{78} = 2\pi \cdot 1000$  MHz

Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass sich die Verwendung des STIRAP Verfahrens zum Anregen der Atome in den Rydbergzustand als effektivstes herausgestellt hat, da sowohl die Anzahl der generierten Photonen im Vergleich zu den anderen Pulsschemata um einiges größer ist und die Anzahl der Photonen, die über einen Zwei-Photonen-Übergang von dem 4. in den 6. Zustand kommen gering ist. Die Population im Rydbergzustand ist zwar bei maximaler Photonenzahl verhältnismäßig klein, lässt sich aber, wenn man eine leicht geringere Anzahl an generierten Photonen in Kauf nimmt, auf bis zu 0,6 erhöhen. Daher wird im folgenden nur noch dieses Schema weiter betrachtet.

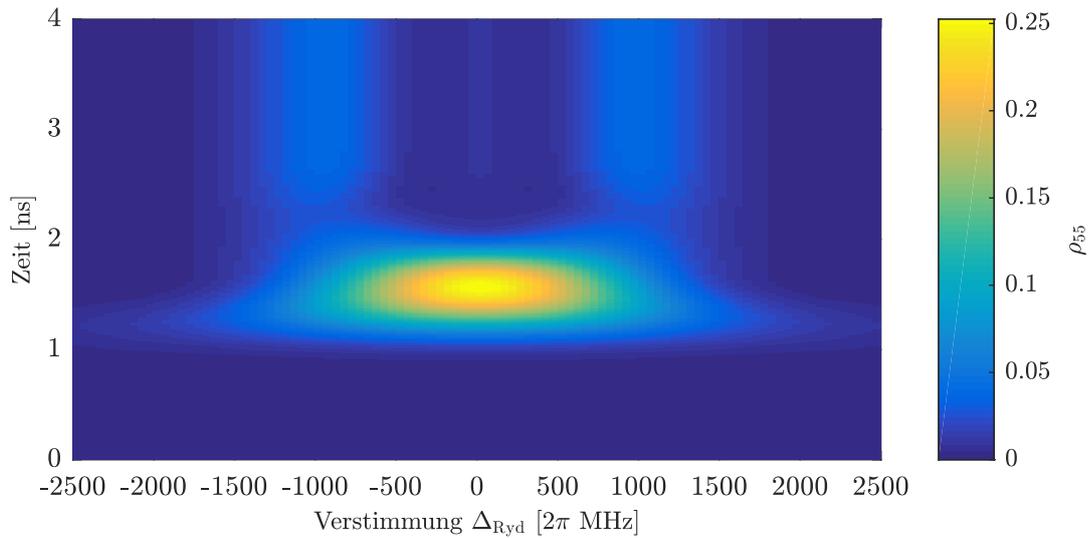


Abbildung 4.8.: Zeitabhängigkeit der Population im Rydbergzustand für verschiedene Verstimmungen des Rydbergzustandes, mit den Rabifrequenzen  $\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1350$  MHz,  $\Omega_{23} = 2\pi \cdot 1200$  MHz,  $\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1000$  MHz,  $\Omega_{45} = 2\pi \cdot 600$  MHz,  $\Omega_{56} = 2\pi \cdot 1100$  MHz,  $\Omega_{67} = 2\pi \cdot 1300$  MHz und  $\Omega_{78} = 2\pi \cdot 1000$  MHz, welche wie in Abbildung 4.5 gepulst sind.

#### 4.1.2. Abhängigkeit von der Laserverstimmung

Ein weiterer Parameter, neben den Rabifrequenzen, der variiert werden kann, ist die Verstimmung der Laser gegenüber den Eigenenergien der Zustände. Wenn aber ein Laser verstimmt ist, so muss ein weiterer dies ausgleichen, damit das gesamte System wieder auf Resonanz ist und so die Energieerhaltung für das Acht-Wellen-Mischen gewährleistet ist. In Abbildung 4.8 ist die Population des Rydbergzustandes in Abhängigkeit von der Verstimmung des Rydbergzustandes zu sehen. Hierbei ist zu erkennen, dass in einem Bereich bei einer Verstimmung von einigen hundert Megahertz die Atome immer noch in den Rydbergzustand angeregt werden können. Dies liegt an der Dopplerverbreiterung, welche wie in Unterabschnitt 2.1.5 beschrieben für eine zusätzliche Verstimmung, in Abhängig von der Geschwindigkeit des entsprechenden Atoms, sorgt. Somit werden je nach Verstimmung der Laser unterschiedliche Geschwindigkeitsklassen angeregt. Ist die Verstimmung aber größer als die Dopplerbreite, so können die Atome nur über Mehr-Photonen-Übergänge angeregt werden, was aber bedeutet, dass sie den Rydbergzustand umgehen.

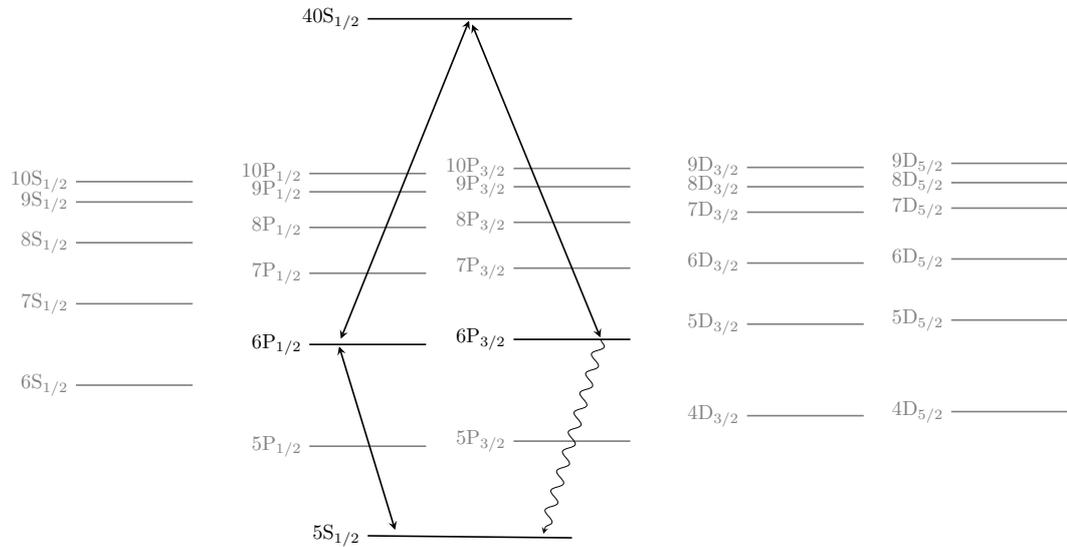


Abbildung 4.9.: Anregungsschema für das Vier-Wellen-Mischen

## 4.2. Vier-Wellen-Mischen

In Abbildung 4.9 ist eine Skizze des Anregungsschemas zu sehen, welches für das Vier-Wellen-Mischen verwendet wird. Im Vergleich mit dem für das Acht-Wellen-Mischen (Abbildung 4.1) fällt auf, dass auch in diesem Schema die Übergänge  $6P_{1/2} \rightarrow 40S_{1/2}$  und  $40S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$  vorkommen und lediglich die Übergänge von 5S zu 6P direkt angeregt werden. Daher haben die, durch das Vier-Wellen-Mischen generierten Photonen, eine Wellenlänge von ungefähr 420 nm (siehe Tabelle A.1). Die Zustände werden ab sofort vereinfacht als

$$\begin{aligned} |1\rangle &= 5S_{1/2} & |3\rangle &= 40S_{1/2} \\ |2\rangle &= 6P_{1/2} & |4\rangle &= 6P_{3/2} \end{aligned}$$

bezeichnet.

Das Übergangsdipolmoment des entscheidenden Übergangs  $|\langle 5S_{1/2} | e_r | 6P_{3/2} \rangle|$  liegt bei  $0,528 ea_0$  [17], wodurch sich nach Gleichung 2.54 ein effektives Übergangsmoment von

$$\begin{aligned} d_{41} = d_{14} &= \sqrt{\frac{1}{3}} S_{34} |\langle 5S_{1/2} | e_r | 6P_{3/2} \rangle| \\ &= 2,072 \cdot 10^{-30} \text{ C m} \end{aligned} \quad (4.9)$$

ergibt. Dieses ist um zirka einen Faktor 8 kleiner als das entsprechende Dipolmoment beim Acht-Wellen-Mischen. Dies würde bedeuten, dass bei gleicher Kohärenz sowie gleichen Eigenschaften der Zelle (Länge, bestrahlte Fläche, Atomdichte) die Zahl der Pho-

tonen, nach Gleichung 2.48, bei diesem Schema nur ungefähr 3 % von der beim Acht-Wellen-Mischen entsprechen würde. Nun muss aber berücksichtigt werden, dass Photonen mit einer geringeren Wellenlänge in einem Medium mit gleicher Dichte weniger stark absorbiert werden, wie Photonen mit einer größeren Wellenlänge. Deshalb kann man die Atomdichte beim Vier-Wellen-Mischen im Vergleich zu der Dichte beim Acht-Wellen-Mischen erhöhen, ohne die Gefahr einzugehen, dass die generierten Photonen wieder absorbiert werden, bevor sie am Detektor ankommen. Daher wurde der Begriff der optischen Dichte eingeführt, die genau dieses berücksichtigt. So beträgt bei einer gleichen Atomdichte wie in Abschnitt 4.1 die optische Dichte in diesem Schema nur 0,0027.

Nach Gleichung 2.65 kann für eine identische optische Dichte bei zwei verschiedenen Übergängen ( $i \rightarrow j$  und  $k \rightarrow l$ ) im gleichen System (gleiche Temperatur, Atommasse, Zelllänge) die Atomdichte um den Faktor

$$c = \frac{d_{ij}^2}{d_{kl}^2} \quad (4.10)$$

erhöht werden. In diesem Fall gilt

$$\begin{aligned} c &= \frac{d_{81}^2}{d_{41}^2} \\ &\approx 64 \end{aligned} \quad (4.11)$$

Dies würde einer Atomdichte von  $n_2 = 6400 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$  entsprechen. Die restlichen Parameter ( $L$  und  $A$ ) sind dieselben, wie bei dem Acht-Wellen-Mischen (Gleichung 4.4 und 4.5).

Für den kopropagierenden Fall der Laser ergibt sich hier eine zusätzliche Phase von

$$\begin{aligned} \Delta\phi &= k_{12} + k_{23} - k_{34} - k_{41} \\ &= 2,781 \cdot 10^{-6} \pi / \mu\text{m}. \end{aligned} \quad (4.12)$$

Der Hamiltonoperator und das Programm, mit dem der Lindblad Operator aufgestellt wurden sind in Abschnitt A.3 zu finden.

Für das Vier-Wellen-Mischen wird ein gepulstes Anregungsschema angenommen.

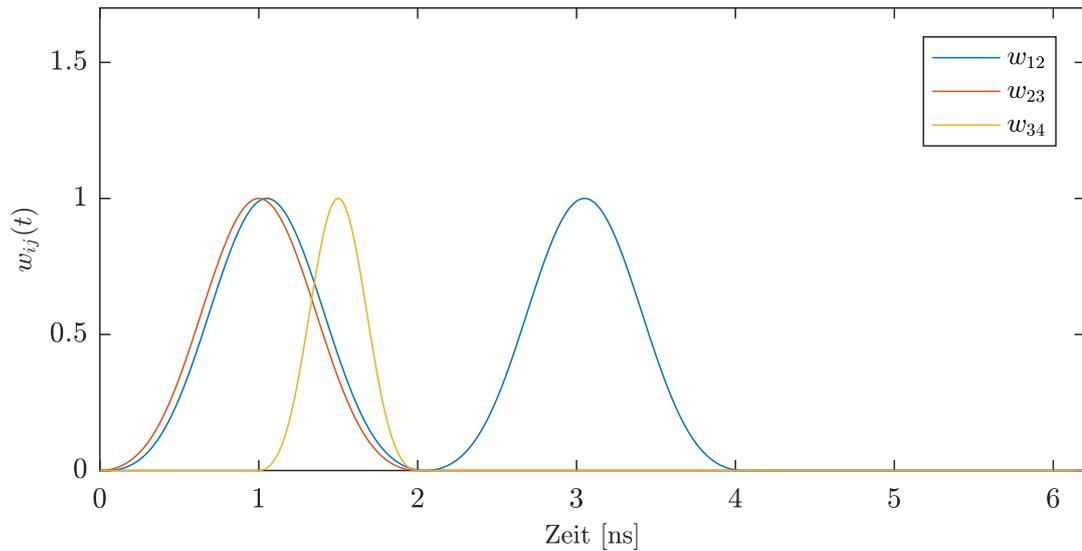


Abbildung 4.10.: Pulsschema für das Vier-Wellen-Mischen mit der STIRAP-Methode. Die zeitliche Verzögerung des ersten Pulses  $t_{d,12}$  liegt bei 0,05 ns.

### 4.2.1. Abhängigkeit von den Rabi-Frequenzen

Auch bei dem Vier-Wellen-Mischen hat sich die Verwendung des STIRAP-Verfahrens als effektivste Methode zum Anregen der Atome ergeben. Das entsprechende Pulsschema ist in Abbildung 4.10 zu sehen. Abbildung 4.11 zeigt für diesen Fall die Populationen in den entscheidenden Zuständen, sowie die Photonenzahl für dieselbe atomare Dichte und dieselbe optische Dichte. Im Vergleich fällt auf, dass bei gleicher atomarer Dichte, wie schon zuvor vermutet, die Photonenzahl deutlich kleiner ist, obwohl die Populationen der verschiedenen Zustände höher sind. Wird aber angenommen, dass das Experiment bei einer gleichen optischen Dichte durchgeführt werden kann, so ergibt sich nach Gleichung 4.10

$$n_2 = 6,411 \cdot 10^{21} \text{ m}^{-3}. \quad (4.13)$$

Da die Dichte quadratisch in die Photonenzahl eingeht, ist diese für die gleiche optische Dichte auch entsprechend größer. Atomare Dichten in dieser Größenordnung zu erzeugen ist aber aktuell noch nicht möglich, da die Zelle entweder sehr stark geheizt oder hoch energetischen Desorptionspulsen [18, 19], die die Atome von der Zellwand lösen, ausgesetzt werden müsste. Beide Möglichkeiten würden dafür sorgen, dass entweder die Zelle zerstört würde, oder andere unkontrollierbare Effekte mit dem Rubidium auftreten, wegen welchen das Experiment nicht wie gewünscht funktionieren würde.

Doch eine so hohe Dichte ist generell nicht notwendig, da die Rydbergblockade im Experiment dafür sorgt, dass die maximale Photonenzahl eins beträgt. So wäre zum Beispiel schon die zehnfache Dichte ausreichend, da hier die Photonenzahl ungefähr bei zwei liegt. Auch die Besetzungszahl des Rydbergzustandes ist mit etwas über 0,5 sehr gut.

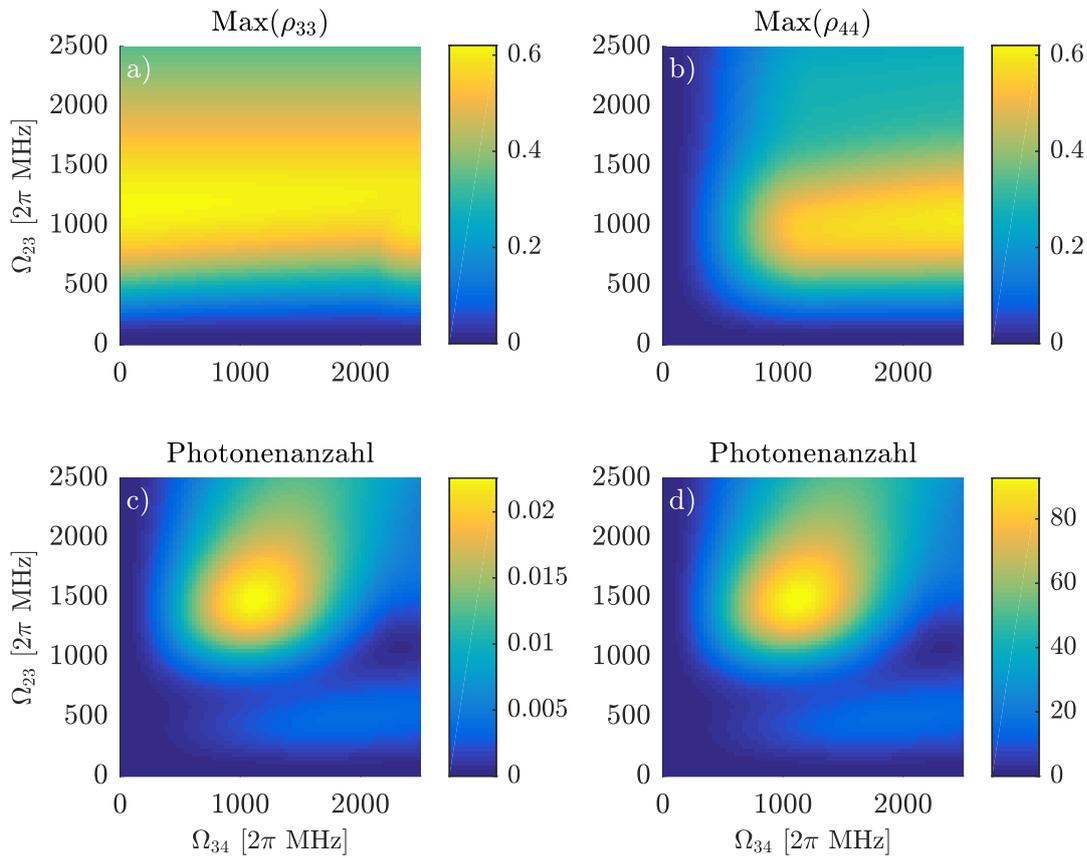


Abbildung 4.11.: Simulationen für das Vier-Wellen-Mischen in Abhängigkeit von den Rabi-frequenzen  $\Omega_{23}$  und  $\Omega_{34}$ . a) zeigt die maximale Rydberg- und b) die maximale Endzustandspopulation. In c) ist die berechnete Photonenzahl für die gleiche Atomdichte und d) bei gleicher optischen Dichte wie bei dem Acht-Wellen-Mischen zu sehen. Es wurde die Pulssequenz aus Abbildung 4.10 und die Rabi-frequenz  $\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1000$  MHz verwendet.

#### 4. Ergebnisse und Interpretation

---

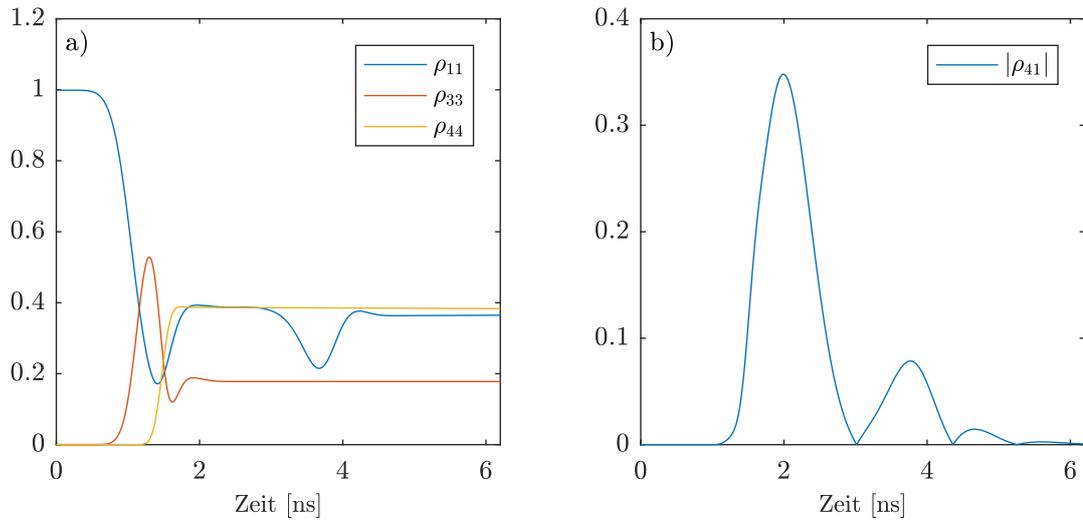


Abbildung 4.12.: a) Zeitliche Entwicklung der Populationen im Grund- ( $\rho_{11}$ ), Rydberg- ( $\rho_{33}$ ) und Endzustand ( $\rho_{44}$ ), b) Zeitliche Entwicklung des Absolutwert der Kohärenz zwischen dem End- und Grundzustand in einem Vier-Niveau-System, für ein gepulstes Anregungsschema mit der Pulssequenz aus Abbildung 4.10 und den Rabifrequenzen  $\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1000$  MHz,  $\Omega_{23} = 2\pi \cdot 1500$  MHz und  $\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1200$  MHz.

Zusammenfassend sind

$$\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1000 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{23} = 2\pi \cdot 1500 \text{ MHz}$$

$$\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1200 \text{ MHz}$$

die optimalen Rabifrequenzen für das hier präsentierte Anregungsschema. In Abbildung 4.12 ist für diese Werte die Entwicklung der entscheidenden Populationen sowie der Kohärenz zwischen End- und Grundzustand.

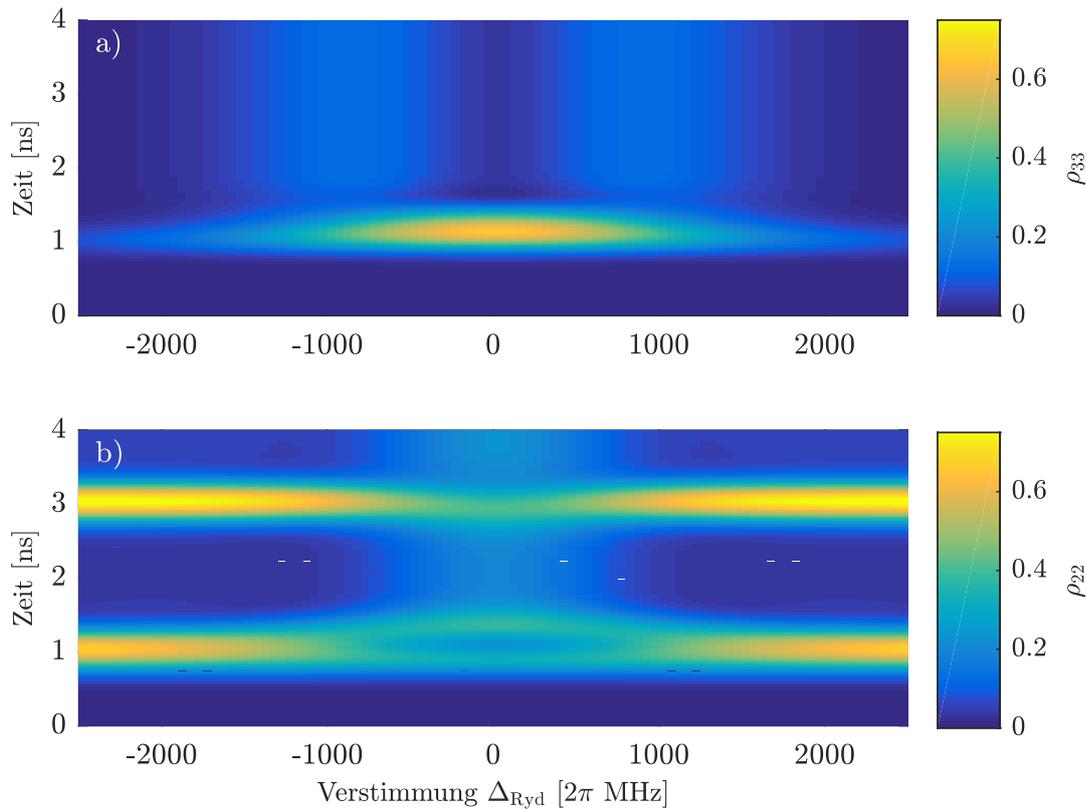


Abbildung 4.13.: Zeitliche Entwicklung eines Vier-Niveau-System für verschiedene Verstimmungen des Rydbergzustandes. a) Für die Population im Zierniveau und b) für die Population des Rydbergzustandes. Für die Rabifrequenzen, welche wie in Abbildung 4.10 gepulst sind, wurden folgende Werte angenommen  $\Omega_{12} = 2\pi \cdot 1200$  MHz,  $\Omega_{23} = 2\pi \cdot 1500$  MHz und  $\Omega_{34} = 2\pi \cdot 1200$  MHz.

#### 4.2.2. Abhängigkeit von der Laserverstimmung

Auch bei dem Vier-Niveau-System lässt sich über die Population im Rydbergzustand für verschiedene Verstimmungen, zu sehen in Abbildung 4.13, auf den Dopplereffekt zurück schließen. Da bei dem Vier-Niveau-System der untere Übergang resonant getrieben wird, werden nur Atome, die parallel zu dem Lichtstrahl in Ruhe sind, in den zweiten Zustand angeregt und von diesem weiter in den Rydbergzustand. Wird nun der Rydberg-Laser aber innerhalb der Dopplerbreite verstimmt, so werden sich bewegende Atome direkt vom Grundzustand aus über einen Zwei-Photonen-Übergang (also nicht über das Zwischenniveau) in den Rydbergzustand gebracht. Dies ist auch in Teil b) von Abbildung 4.13 zu sehen.

Bei dem Acht-Niveau-System ist der Dopplereffekt kleiner, da zwischen dem Grund- und Rydbergzustand mehrere Zustände liegen und nicht wie hier nur einer.

### 4.3. Vergleich Acht- und Vier-Wellen-Mischen

Im direkten Vergleich der Ergebnisse für die beiden Schemata lässt sich sagen, dass bei dem Vier-Wellen-Mischen höhere Populationen im Rydbergzustand (zirka 0,5) erreicht werden können. Hierbei sind aber die benötigten Rabi-Frequenzen, von den Übergängen die den Rydbergzustand beinhalten, leicht größer. Es sind also Laser mit höherer Leistung nötig. Bei dem Vergleich der Photonenzahl fällt auf, dass diese bei gleicher atomarer Dichte bei dem Acht-Wellen-Mischen höher ist. Die Wellenlänge des Photons bei dem Acht-Wellen-Mischen liegt bei 780,242 nm und bei dem Vier-Wellen-Mischen bei 420,299 nm. Deswegen lässt sich bei dem Vier-Wellen-Mischen die Atomdichte noch erhöhen, bis die optische Dichte der beiden Systeme gleich groß ist, ohne dass sich die Reabsorption der Photonen erhöht. Schon für einen Faktor zehn liegt die Photonenzahl hier bei 2, was zirka dem vierfachen von dem anderen System entspricht.

Ein weiterer Punkt, der für das Vier-Wellen-Mischen spricht, ist die Anzahl der benötigten Laser. Diese liegt hier bei drei und bei dem Acht-Wellen-Mischen bei sieben, was für das Experiment einen sehr großen Unterschied macht.

Ein Vorteil, den eine größere Anzahl an Zwischenniveaus hat, ist, dass jeder Übergang gewählt werden kann als der, bei dem das einzelne Photon emittiert wird. Es gibt also eine größere Auswahl an potenziellen Wellenlängen bei denen die Einzelphotonenquelle betrieben werden kann.

Die blauen Photonen, welche bei dem Vier-Wellen-Mischen erzeugt werden, lassen sich aber auch mithilfe der Parametrischen Fluoreszenz in Photonen mit geringerer Energie umwandeln, also im roten oder infraroten Bereich.

Da der  $6P_{1/2}$  und der  $6P_{3/2}$  Zustand in Rubidium energetisch näher beieinander liegen, als der  $5P_{1/2}$  und der  $5P_{3/2}$  Zustand sind hier auch die Wellenlänge des emittierten Photons und die des Lasers, der die Atome von dem Grundzustand in den ersten angeregten Zustand bringt, näher beieinander. Daher ist es schwieriger diese voneinander zu trennen.

## 5. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Simulationen in MATLAB und Mathematica geschrieben, die die Mastergleichung in Lindbladform aufstellen und numerisch lösen für Systeme mit bis zu acht Energieniveaus. Mithilfe von diesen konnte die Effizienz von einem Acht- und einem Vier-Niveau-System untersucht werden, welche durch Acht- beziehungsweise Vier-Wellen-Mischen ein einzelnes Photon erzeugen. Hierfür werden die Atome in einen Rydbergzustand angeregt, wobei das Anregungsvolumen kleiner ist als der Blockaderadius des entsprechenden Zustands. Daher befindet sich in solch einem System nur ein Atom in dem Rydbergzustand und kann entsprechend den restlichen Anregungszyklus durchlaufen. So wird auch nur ein einzelnes Photon erzeugt, von welchem aufgrund der Energieerhaltung und der Phasenanpassungsbedingung des Viel-Wellen-Mischens genau vorausgesagt werden kann, wo es auftritt und welche Phase es besitzt. Da manche Übergänge durch gepulste Laser angeregt werden, wird dieser Vorgang aktiv gestartet. Somit handelt es sich hierbei um eine Einzelphotonenquelle, die auf Abruf das Photon aussendet.

Bei dem Acht-Wellen-Mischen besitzt das ausgesendete Photon eine Wellenlänge von 780,242 nm, wohingegen bei dem Vier-Wellen-Mischen es sich um ein blaues Photon mit 420,299 nm handelt.

Aus den Simulationen hat sich ergeben, dass bei dem Vier-Wellen-Mischen Rydbergpopulationen im Bereich von 0,5 erreicht werden können, wobei diese bei dem Acht-Wellen-Mischen nur bei zirka 0,25 liegen. Dafür kann bei dem Acht-Niveau-System bei gleicher atomaren Dichte eine höhere Photonenzahl erreicht werden. Der beschränkende Faktor für die Atomdichte ist, dass bei zu hohen Dichten die erzeugten Photonen wieder von den Atomen absorbiert werden, bevor sie detektiert werden können. Für Photonen mit kürzerer Wellenlänge ist dies aber unwahrscheinlicher, weshalb der Begriff der optischen Dichte eingeführt wurde, welche genau diesen Zusammenhang beschreibt. Wenn das Vier-Wellen-Mischen bei der gleichen optische Dichte durchgeführt wird wie das Acht-Wellen-Mischen, so lassen sich hierbei, ohne Berücksichtigung der Rydbergblockade, Photonenzahlen von über eins erreichen. Im Experiment wird die Rydbergblockade diesen Wert auf eins beschränken. Für das effektivste Anregungsschema haben sich Rabi-frequenzen mit STIRAP (englisch *Stimulated Raman Adiabatic Passage*) ähnlichen Pulsfolgen erwiesen.

Weiter konnte gezeigt werden, dass die Dopplerverbreiterung des Rydbergzustandes bei dem Acht-Niveau-System geringer ist, als bei dem Vier-Niveau-System.

So lässt sich zusammenfassend sagen, dass sich das Vier-Wellen-Mischen für die hier

untersuchten Kriterien (Population im Rydbergzustand, Photonenzahl) besser für die Realisierung einer Einzelphotonenquelle eignet, als das Acht-Wellen-Mischen. Dieses muss, um die Aussagen der Simulation zu überprüfen, nun experimentell umgesetzt werden. Hierbei muss explizit noch genauer untersucht werden, wie stark und auf welche Weise die atomare Dichte in den verwendeten Zelle erhöht werden kann, ohne diese zu zerstören und welche zusätzlichen Effekte hierbei auftreten.

# A. Anhang

## A.1. Werte Simulation

Die verwendeten Werte für ausgewählt Elektronenübergänge in Rubidium sind in Tabelle A.1 zu sehen.

Tabelle A.1.: Verwendete Werte für die Wellenlängen [20] und Zerfallsraten [21] der entsprechenden Rubidium Übergänge

Übergang	Wellenlänge $\lambda$ [nm]	Zerfallsrate [ $2\pi$ kHz]
$5P_{1/2} \rightarrow 5S_{1/2}$	794,979	5717,69
$5P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}$	780,242	6020,73
$6P_{1/2} \rightarrow 5S_{1/2}$	421,673	238,462
$6P_{3/2} \rightarrow 5S_{1/2}$	420,299	317,795
$8D_{5/2} \rightarrow 5P_{3/2}$	543,304	229,542
$8D_{5/2} \rightarrow 6P_{3/2}$	1345,92	44,3702
$10S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$	532,386	64,5321
$10S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$	539,206	122,965
$10S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$	1307,66	26,6441
$10S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$	1321,05	50,0842
$8D_{5/2} \rightarrow 6P_{3/2}$	1345,92	229,542
$40S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$	475,318	0,41037
$40S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$	480,747	0,78059
$40S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$	1009,85	0,16088
$40S_{1/2} \rightarrow 6P_{3/2}$	1017,82	0,30236

## A.2. Acht-Level-System

Der Hamiltonoperator für ein Acht-Level-System wie in Abbildung 4.1 mit den entsprechenden Rabifrequenzen und Verstimmungen ist gegeben durch

$$H = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega_{12}}{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_{12}^*}{2} & \delta_{12} & \frac{\Omega_{23}}{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{\Omega_{23}^*}{2} & \delta_{23} & \frac{\Omega_{34}}{2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{\Omega_{34}^*}{2} & \delta_{34} & \frac{\Omega_{45}}{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_{45}^*}{2} & \delta_{45} & \frac{\Omega_{56}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_{56}^*}{2} & \delta_{56} & \frac{\Omega_{67}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_{67}^*}{2} & \delta_{67} & \frac{\Omega_{78}}{2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{\Omega_{78}^*}{2} & \delta_{78} \end{pmatrix} \quad (\text{A.1})$$

mit

$$\begin{aligned} \delta_{12} &= \Delta'_{12} \\ \delta_{23} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} \\ \delta_{34} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} - \Delta'_{34} \\ \delta_{45} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} - \Delta'_{34} + \Delta'_{45} \\ \delta_{56} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} - \Delta'_{34} + \Delta'_{45} - \Delta'_{56} \\ \delta_{67} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} - \Delta'_{34} + \Delta'_{45} - \Delta'_{56} + \Delta'_{67} \\ \delta_{78} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} - \Delta'_{34} + \Delta'_{45} - \Delta'_{56} + \Delta'_{67} - \Delta'_{78} \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

wobei für die einzelnen Verstimmungen  $\Delta'_{ij} = \Delta_{ij} + \Delta_{ij,\text{Dop}}$  gilt.

Der Lindblad Operator wurde mittels Mathematica mit dem folgenden Programm aufgestellt.

```

1 (*Definition der Dichtematrix*)
2 rho = {[rho11, rho12, rho13, rho14, rho15, rho16, rho17, rho18},
3        {Conjugate[rho12], rho22, rho23, rho24, rho25, rho26, rho27, rho28},
4        {Conjugate[rho13], Conjugate[rho23], rho33, rho34, rho35, rho36, rho37, rho38},
5        {Conjugate[rho14], Conjugate[rho24], Conjugate[rho34], rho44, rho45, rho46,
6         rho47, rho48},
7        {Conjugate[rho15], Conjugate[rho25], Conjugate[rho35], Conjugate[rho45],
8         rho55, rho56, rho57, rho58},
9        {Conjugate[rho16], Conjugate[rho26], Conjugate[rho36], Conjugate[rho46],
10         Conjugate[rho56], rho66, rho67, rho68},
11        {Conjugate[rho17], Conjugate[rho27], Conjugate[rho37], Conjugate[rho47],
12         Conjugate[rho57], Conjugate[rho67], rho77, rho78},
13        {Conjugate[rho18], Conjugate[rho28], Conjugate[rho38], Conjugate[rho48],
14         Conjugate[rho58], Conjugate[rho68], Conjugate[rho78], rho88}};
15
16 (*Definition der Zustaeende*)
17 f1 = {{1, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0 }};
18 f2 = {{0, 1, 0, 0, 0, 0, 0, 0 }};
19 f3 = {{0, 0, 1, 0, 0, 0, 0, 0 }};
20 f4 = {{0, 0, 0, 1, 0, 0, 0, 0 }};
21 f5 = {{0, 0, 0, 0, 1, 0, 0, 0 }};
22 f6 = {{0, 0, 0, 0, 0, 1, 0, 0 }};
23 f7 = {{0, 0, 0, 0, 0, 0, 1, 0 }};
24 f8 = {{0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 1}};
25
26 (*Berechnung der Lindblad Operatoren der einzelnen Zerfaelle*)
27 L21 = Gamma21*(rho22*Transpose[f1].f1 - 1/2*((Transpose[f2].f2).rho +
28 rho.(Transpose[f2].f2)));
29 L32 = Gamma32*(rho33*Transpose[f2].f2 - 1/2*((Transpose[f3].f3).rho +
30 rho.(Transpose[f3].f3)));
31 L34 = Gamma34*(rho33*Transpose[f4].f4 - 1/2*((Transpose[f3].f3).rho +
32 rho.(Transpose[f3].f3)));
33 L41 = Gamma41*(rho44*Transpose[f1].f1 - 1/2*((Transpose[f4].f4).rho +
34 rho.(Transpose[f4].f4)));
35 L54 = Gamma54*(rho55*Transpose[f4].f4 - 1/2*((Transpose[f5].f5).rho +
36 rho.(Transpose[f5].f5)));
37 L52 = Gamma52*(rho55*Transpose[f2].f2 - 1/2*((Transpose[f5].f5).rho +
38 rho.(Transpose[f5].f5)));
39 L56 = Gamma56*(rho55*Transpose[f6].f6 - 1/2*((Transpose[f5].f5).rho +
40 rho.(Transpose[f5].f5)));
41 L36 = Gamma36*(rho33*Transpose[f6].f6 - 1/2*((Transpose[f3].f3).rho +
42 rho.(Transpose[f3].f3)));
43 L61 = Gamma61*(rho66*Transpose[f1].f1 - 1/2*((Transpose[f6].f6).rho +
44 rho.(Transpose[f6].f6)));
45 L76 = Gamma76*(rho77*Transpose[f6].f6 - 1/2*((Transpose[f7].f7).rho +
46 rho.(Transpose[f7].f7)));
47 L78 = Gamma78*(rho77*Transpose[f8].f8 - 1/2*((Transpose[f7].f7).rho +
48 rho.(Transpose[f7].f7)));
49 L81 = Gamma81*(rho88*Transpose[f1].f1 - 1/2*((Transpose[f8].f8).rho +
50 rho.(Transpose[f8].f8)));
51 L58 = Gamma58*(rho55*Transpose[f8].f8 - 1/2*((Transpose[f5].f5).rho +
52 rho.(Transpose[f5].f5)));
53 L38 = Gamma38*(rho33*Transpose[f8].f8 - 1/2*((Transpose[f3].f3).rho +
54 rho.(Transpose[f3].f3)));
55
56 (*Berechnung des Lindblad Operators fuer das gesamte System*)
57 L = L21 + L32 + L34 + L41 + L54 + L52 + L56 + L36 + L61 + L76 + L78 + L81 + L58 + L38;

```

### A.3. Vier-Level-System

Für das Vier-Level-System in Abbildung 4.9 ist der Hamiltonoperator definiert als

$$H = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\Omega_{12}}{2} & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_{12}^*}{2} & \delta_{12} & \frac{\Omega_{23}}{2} & 0 \\ 0 & \frac{\Omega_{23}^*}{2} & \delta_{23} & \frac{\Omega_{34}}{2} \\ 0 & 0 & \frac{\Omega_{34}^*}{2} & \delta_{34} \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

mit

$$\begin{aligned} \delta_{12} &= \Delta'_{12} \\ \delta_{23} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} \\ \delta_{34} &= \Delta'_{12} + \Delta'_{23} - \Delta'_{34} \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

und  $\Delta'_{ij} = \Delta_{ij} + \Delta_{ij, \text{Dop}}$ .

Das folgenden Programm, welches in Mathematica geschrieben wurde, stellt den Lindblad Operator für das Vier-Niveau-System auf.

```

1 (*Definition der Dichtematrix*)
2 rho = {{rho11, rho12, rho13, rho14},
3         {Conjugate[rho12], rho22, rho23, rho24},
4         {Conjugate[rho13], Conjugate[rho23], rho33, rho34},
5         {Conjugate[rho14], Conjugate[rho24], Conjugate[rho34], rho44}};
6
7 (*Definition der Zustände*)
8 f1 = {{1, 0, 0, 0}};
9 f2 = {{0, 1, 0, 0}};
10 f3 = {{0, 0, 1, 0}};
11 f4 = {{0, 0, 0, 1}};
12
13 (*Berechnung der Lindblad Operatoren der einzelnen Zerfäelle*)
14 L21 = Gamma21*(rho22*Transpose[f1].f1 - 1/2*((Transpose[f2].f2).rho +
15 rho.(Transpose[f2].f2)));
16 L32 = Gamma32*(rho33*Transpose[f2].f2 - 1/2*((Transpose[f3].f3).rho +
17 rho.(Transpose[f3].f3)));
18 L34 = Gamma34*(rho33*Transpose[f4].f4 - 1/2*((Transpose[f3].f3).rho +
19 rho.(Transpose[f3].f3)));
20 L41 = Gamma41*(rho44*Transpose[f1].f1 - 1/2*((Transpose[f4].f4).rho +
21 rho.(Transpose[f4].f4)));
22
23 (*Berechnung des Lindblad Operators fuer das gesamte System*)
24 L = L21 + L32 + L34 + L41;

```

# Literaturverzeichnis

- [1] T. Jennewein, C. Simon, G. Weihs, H. Weinfurter und A. Zeilinger. Quantum Cryptography with Entangled Photons. *Phys. Rev. Lett.* 84, 4729–4732 (2000).
- [2] M. D. Lukin, M. Fleischhauer, R. Cote, L. M. Duan, D. Jaksch, J. I. Cirac und P. Zoller. Dipole Blockade and Quantum Information Processing in Mesoscopic Atomic Ensembles. *Phys. Rev. Lett.* 87, 037901 (2001).
- [3] M. M. Müller, A. Kölle, R. Löw, T. Pfau, T. Calarco und S. Montangero. Room-temperature Rydberg single-photon source. *Phys. Rev. A* 87, 053412 (2013).
- [4] M. Saffman, T. G. Walker und K. Mølmer. Quantum information with Rydberg atoms. *Rev. Mod. Phys.* 82, 2313–2363 (2010).
- [5] T. F. Gallagher. Rydberg atoms. *Reports on Progress in Physics* 51, 143 (1988).
- [6] F. Ripka, Y.-H. Chen, R. Löw und T. Pfau. Rydberg polaritons in a thermal vapor. *Phys. Rev. A* 93, 053429 (2016).
- [7] M. O. Scully und M.S. Zubairy. *Quantum Optics*. Cambridge University Press (1997).
- [8] B. Huber. *Coherent Rydberg dynamics and interaction above room temperature: The frozen gas regime and beyond*. Doktorarbeit, Universität Stuttgart (2014).
- [9] G. Lindblad. On the generators of quantum dynamical semigroups. *Communications in Mathematical Physics* 48, 119–130 (1976).
- [10] L. Mandel und E. Wolf. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press (1995).
- [11] T. Baluktsian. *Herstellung und Untersuchung mikrostrukturierter Rubidium-Spektroskopiezellen*. Diplomarbeit, Universität Stuttgart (2011).
- [12] D. A. Steck. *Rubidium 85 D Line Data*. online: <http://www.steck.us/alkalidata> (2013).
- [13] C. J. Foot. *Atomic physics*. Oxford master series in physics. Oxford University Press (2005).

- [14] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann und K. Bergmann. Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laser fields. A new concept and experimental results. *The Journal of Chemical Physics* 92, 5363–5376 (1990).
- [15] K. Bergmann, N. V. Vitanov und B. W. Shore. Perspective: Stimulated Raman adiabatic passage: The status after 25 years. *The Journal of Chemical Physics* 142, 170901 (2015).
- [16] N. V. Vitanov, A. A. Rangelov, B. W. Shore und K. Bergmann. Stimulated Raman adiabatic passage in physics, chemistry, and beyond. *Rev. Mod. Phys.* 89, 015006 (2017).
- [17] B. Arora, M. S. Safronova und C. W. Clark. Tune-out wavelengths of alkali-metal atoms and their applications. *Phys. Rev. A* 84, 043401 (2011).
- [18] P. R. Antoniewicz. Model for electron- and photon-stimulated desorption. *Phys. Rev. B* 21, 3811–3815 (1980).
- [19] M. Meucci, E. Mariotti, P. Bicchi, C. Marinelli und L. Moi. Light-Induced Atom Desorption. *EPL (Europhysics Letters)* 25, 639 (1994).
- [20] J. E. Sansonetti. Wavelengths, Transition Probabilities, and Energy Levels for the Spectra of Rubidium (RbI through RbXXXVII). *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 35, 301–421 (2006).
- [21] N. Šibalić, J. D. Pritchard, C. S. Adams und K. J. Weatherill. ARC: An open-source library for calculating properties of alkali Rydberg atoms. *Computer Physics Communications* 220, 319 – 331 (2017).

# Danksagung

Im Folgenden möchte ich einigen Personen danken, ohne die diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

**Prof. Dr. Tilman Pfau** für die Möglichkeit meine Bachelorarbeit am 5. Physikalisches Institut zu machen.

**Dr. Robert Löw** und **Dr. Harald Kübler** für die Unterstützung und hilfreiche Anregungen.

**Fabian Ripka** für die Betreuung und geduldige Hilfe bei jeglichen Problemen.

**Hao Zhang** und **Florian Christaller** für die Beantwortung sämtlicher Fragen und die gute Zusammenarbeit in der Gruppe.

**Lea Kopf** für viele gute Gespräche und **Patrick Kaspar** für die unermüdliche Hilfe bei Matlab-Problemen jeder Art.

Meinen Kommilitonen im Bachelorstudium, insbesondere **Felix Roser** und **Tobias Reinsch**, mit denen selbst das intensive Lernen auf Prüfungen noch Spaß gemacht hat.

**Julia Greulich** für den moralischen Beistand in jeder Situation.

Zuletzt möchte ich mich bei meiner Familie für die Unterstützung während des Studiums bedanken, ohne die ich dieses nicht hätte bewältigen können.