

**Universität Stuttgart**  
**5. Physikalisches Institut**

Vorgelegt an der Universität Stuttgart

Masterarbeit

# **Optimierung des FWM-Prozesses für hohe Photonenausbeute**

**Moritz Seltenreich**

04. Dezember, 2023

Prüfer: Prof. Dr. Tilman Pfau  
Zweitprüfer: Prof. Dr. Harald Gießen



### **Ehrenwörtliche Erklärung**

Ich erkläre hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, nur unter Verwendung der angegebenen Quellen und Hilfsmittel angefertigt habe und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet sind. Die vorliegende Arbeit war weder vollständig noch in Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens. Weiterhin stimmt das elektronische Exemplar mit der gedruckten Version überein.

Stuttgart, den 04. Dezember 2023

---

Moritz Seltenreich



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Grundidee des Experiments</b>	<b>2</b>
1.1	Rydbergblockade . . . . .	3
1.2	Begrenzung des Volumens . . . . .	3
1.3	Four-Wave-Mixng (FWM) . . . . .	3
1.4	Gepulste Anregung . . . . .	4
1.5	LIAD . . . . .	4
<b>I</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>5</b>
<b>2</b>	<b>Wechselwirkung Licht und Materie</b>	<b>7</b>
2.1	Grundlegende Konzepte . . . . .	7
2.2	Übergangsdipolmoment . . . . .	10
2.3	Zwei-Level-Atom . . . . .	11
2.4	Ausbreitung von Licht in einem atomaren Medium . . . . .	13
<b>3</b>	<b>Rydbergatome</b>	<b>16</b>
3.1	Allgemeine Merkmale . . . . .	16
3.2	Rydbergblockade . . . . .	17
<b>4</b>	<b>Rubidium</b>	<b>19</b>
4.1	Levelstruktur . . . . .	20
<b>5</b>	<b>Four-Wave-Mixing</b>	<b>22</b>
5.1	Das normale Anregungsschema . . . . .	23
5.2	Das invertierte Anregungsschema . . . . .	23
5.3	Normal vs. invertiert . . . . .	24
<b>6</b>	<b>Photonenstatistik</b>	<b>26</b>
6.1	Korrelation von Photonenpaaren . . . . .	26
6.2	Bunching und Antibunching . . . . .	28

<b>II</b>	<b>Details des experimentellen Aufbaus</b>	<b>29</b>
<b>7</b>	<b>Aufbau Four-Wave-Mixing</b>	<b>31</b>
7.1	Strahlparameter . . . . .	32
7.2	Die Mikrozelle . . . . .	34
<b>8</b>	<b>Aufbau der Frequenzstabilisierung</b>	<b>38</b>
8.0.1	Optischer Resonator . . . . .	38
8.0.2	Pound-Drever-Hall Verfahren . . . . .	39
8.0.3	PID-Regler . . . . .	40
8.0.4	Transfer-Lock . . . . .	40
8.1	Aufbau EIT-Referenz . . . . .	42
<b>9</b>	<b>Detektionseinheit</b>	<b>45</b>
<b>III</b>	<b>Experimentelle Untersuchung</b>	<b>47</b>
<b>10</b>	<b>Vorbereitende Justageschritte</b>	<b>49</b>
10.1	Experimenteller Ablauf . . . . .	49
10.2	Zellpositionierung im Fokus . . . . .	49
<b>11</b>	<b>Messergebnisse mit dem vorhandenen Aufbau</b>	<b>52</b>
11.1	Messung für Zelldicke im Bereich der Rydbergblockade . . . . .	56
11.2	Messung der Korrelationsfunktion der Photonen . . . . .	57
<b>12</b>	<b>Ursachensuche für geringe Detektionseffizienz</b>	<b>64</b>
12.1	Optische Komponenten . . . . .	64
12.2	Filterung . . . . .	64
12.3	Photonendetektion . . . . .	67
12.4	Physikalische Ursachen . . . . .	68
12.5	Betrachtung der optischen Dichte . . . . .	69
12.5.1	Berechnung der optischen Dichte . . . . .	70
<b>13</b>	<b>Lösungsansätze für verbesserte Photonen ausbeute</b>	<b>75</b>
13.1	Isotopenreines Rubidium . . . . .	75
13.2	Temperaturerhöhung . . . . .	75
13.3	Resonator für finalen Übergang . . . . .	76
13.4	Ein verbessertes Anregungsschema . . . . .	77
13.4.1	Berechnungen für den Zwei-Photonen-Übergang . . . . .	78
13.5	Fluoreszenzmessung . . . . .	87
<b>14</b>	<b>Fazit und Ausblick</b>	<b>91</b>

<b>IV Anhang</b>	<b>93</b>
<b>Literatur</b>	<b>95</b>



# Abstract

In recent years the practical superiority of a quantum computer over conventional computing has been demonstrated at great technical and financial effort [1]. The base of such a quantum computer is formed by so called non-linear quantum bits (qubits), which can in principle be realized by any quantum mechanical two-level system. One approach for a universal quantum computer is to exploit the interference of defined photonic polarization states using linear optics [2]. This requires a parametric single photon source to provide antibunched photons in time with an electrical trigger signal. Common realization approaches for such a single photon source are often based on excitations in solid states [3, 4]. However, for optimal operation, the suppression of phononic interactions requires cryogenic temperatures, which indicates that the experiments are difficult to scaled in size. The approach pursued in this work is based on the Rydberg blockade [5]. Rydbergatoms have one ore more electrons in an excited state with large principal quantum number. From a classical point of view, due to the electron being far away from the atomic nucleus, strong interactions with the enviroment occur. Therefore no second Rydberg excitation is possible inside a defined radius around the Rydberg atom, which is referred to as Rydberg blockade. The realization of such a single photon source was already demonstrated by F. Ripka [6]. By using a pulsed four-wave-mixing scheme and a wedge shaped glass cell filled with rubidium vapor, a single photon source can be realized at room temperature. However, the use of the  $5P_{1/2}$  and  $5P_{3/2}$  intermediate states leads to a low repetition rate of 50 Hz due to necessary short wave 480 nm laser-system with high pulse energy. This results in a photon yield of only 4% per excitation cycle. To improve this photon source, a modified excitation scheme based on the  $6P_{1/2}$ ,  $6P_{3/2}$  and  $40S_{1/2}$  states will be used in this work.

In the first part of this thesis, various attempts were made to optimize the photon yield. This was only possible to a limited extent. To determine the reason, among other things the optical density that can be achieved for the  $6P_{3/2}$  state was investigated. The observation showed that the branching ratio of the  $6P_{3/2}$  state is largely responsible for the low photon yield. One approach to overcome this problem, is to adapt the excitaion scheme by adding an off-resonant two-photon transition from the  $6P_{3/2}$  to the  $5P_{3/2}$  state at 1822 nm wavelength. Therefore, two- and three-level simulations were used to check whether such a transition is reasonable and whether additional unwanted atomic resonances occur. In the last part of this thesis, some set-up modifications and measurements were done in preperation for the adapted excitation scheme.

# 1 Grundidee des Experiments

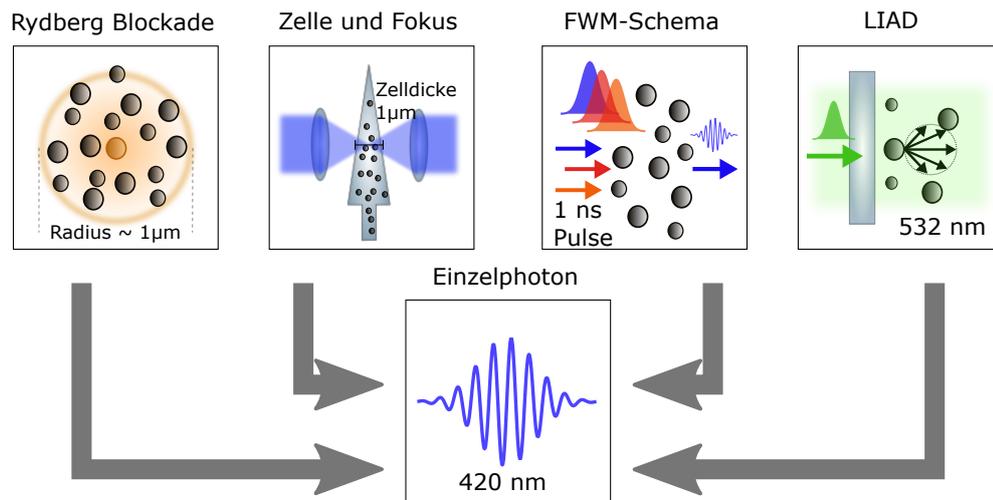


Abbildung 1.1: Dargestellt sind die vier Hauptkomponenten, unter deren Ausnutzung ein Einzelphotonenemitter realisiert werden soll. Der zentrale Effekt (ganz links) ist die Rydbergblockade. Aufgrund von starken van-der-Waals Wechselwirkungen zwischen den Rydbergatomen, ist innerhalb des Blockaderadius nur eine einzige Anregung möglich. Um in diesem Regime zu arbeiten, wird das Volumen durch die Zelle und den stark fokussierten Laser eingeschränkt. Die Atome werden durch einen gepulsten Four-Wave-Mixing Prozess getrieben. Zur Erhöhung der atomaren Dichte wird der Effekt der lichtinduzierten atomaren Desorption (light induced atomic desorption, kurz LIAD) verwendet.

Im Rahmen dieser Arbeit soll die Weiterentwicklung und Optimierung der von F. Ripka demonstrierten Einzelphotonenerzeugung [6] durch Ausnutzung starker Rydbergwechselwirkungen in thermischen Dampfzellen untersucht werden. Im folgenden Abschnitt wird daher ein Überblick der für das Experiment benötigten Grundlagen vermittelt, sodass im Nachgang die zugehörigen theoretischen physikalischen Prinzipien erläutert werden können. Der hier diskutierte Ansatz einer Einzelphotonenquelle beruht auf der Ausnutzung und dem Zusammenspiel verschiedener Effekte. Im Mittelpunkt steht dabei eine mit Rubidium befüllte, keilförmige Glaszelle. Insgesamt soll ein solcher Einzelphotonenemitter

mittels Volumenbegrenzung, kleiner der Rydbergblockade durch Zellgeometrie und stark fokussierte Laser realisiert werden. Die Anregung der Atome erfolgt über ein gepulstes Four-Wave-Mixing-Schema mit Pulslängen im Nanosekundenbereich. Die Realisierung eines solchen Emitters gelang bereits 2018 [6], resultierte jedoch unter den damals verwendeten Parametern in einer sehr geringen Photonenausbeute von lediglich  $\epsilon = 0,0392$  was eine technische Anwendung ausschließt. Zur Optimierung wird in dieser Arbeit unter anderem ein abgewandeltes Anregungsschema verwendet, welches die Verwendung von verbesserten Lasersystemen ermöglicht. Die Grundkomponenten bleiben jedoch dieselben. Im Folgenden werden die Grundbausteine hinter diesem Ansatz noch genauer beleuchtet.

## 1.1 Rydbergblockade

Die so genannte Rydbergblockade beschreibt, dass aufgrund starker van-der-Waals Wechselwirkungen zwischen den Rydbergatomen, in einem definierten Volumen nur eine Rydberganregung möglich ist. Im Fall des hier verwendeten  $40S$  Rydberg-Zustands in Rubidium, liegt der Radius dieser Blockade in der Größenordnung von  $1 \mu\text{m}$ . Die Anwesenheit einer einzigen Anregung erlaubt in Folge die Emission eines einzelnen Photons.

## 1.2 Begrenzung des Volumens

Um das Volumen für die Rydbergatome in allen Raumrichtungen einzugrenzen, besitzt einerseits die keilförmige Glaszelle eine Dicke, kleiner als der Blockaderadius. Die exakte Geometrie der Zelle ist in Abschnitt 7.2 beschrieben. Die Zellwände beschränkt dadurch das Volumen entlang der optischen Achse. Durch einen stark fokussierten Laserstrahl für die erste Anregung (Strahltaile im Fokus kleiner als Rydbergblockade) ist das Volumen zusätzlich senkrecht zur optischen Achse beschränkt. Durch das so, in allen Richtungen begrenzte Volumen wird über die Ausnutzung des Blockade-Effekts eine einzelne Rydberganregung garantiert.

## 1.3 Four-Wave-Mixing (FWM)

Das in Abschnitt 5 beschriebene Four-Wave-Mixing (FWM) wird verwendet, um die kohärente Emission von Photonen zu erzeugen, nachdem das Atom über den Rydbergzustand in einen Zielzustand angeregt wurde. Die Bezeichnung Four-Wave-Mixing rührt daher, dass der Zielzustand über die Verwendung dreier Laser unterschiedlicher Wellenlänge angeregt wird. Durch die Emission von Photonen bei einer vierten Wellenlänge wird der Prozess abgeschlossen. Für eine effektive Anregung in einem solchen Schema werden ausreichend hohe atomare Dichten benötigt. Beim Erreichen einer hinreichend

hohen Dichte kann dann ein kollektives Verhalten des Systems erzielt werden, durch welches die Photonenemission beschleunigt und in eine bestimmte Vorzugsrichtung abläuft.

## 1.4 Gepulste Anregung

Das Experiment findet in einem thermischen Gas statt. Die Atome bewegen sich also mit einer hohen Geschwindigkeit ( $\bar{v} \approx 300 \text{ m/s}$ ). Daher wird eine gepulste Anregung mit Pulslängen im Nanosekundenbereich verwendet. Für diese Zeitskalen kann die Bewegung der Atome vernachlässigt werden. Innerhalb einer Nanosekunde bewegen sich die Atome ca. 300 nm, was kleiner als die verwendete Wellenlänge ist. Das System befindet sich während der Anregung im so genannten quasi frozen Regime.

## 1.5 LIAD

Um die für den Four-Wave-Mixing-Prozess notwendige hohe atomare Dichte sicher zu stellen, wird der so genannte LIAD-Effekt (light induced atomic desorption) ausgenutzt. Dabei wird ein nichtresonanter, grüner Laser mit hoher Energie verwendet, um an den Zellwänden adsorbiert Atome zu lösen. Somit kann die atomare Dichte kurzzeitig um ein Vielfaches erhöht werden [7].

# **Teil I**

## **Theoretische Grundlagen**



## 2 Wechselwirkung Licht und Materie

Auf dem Gebiet der Atomphysik und der Quantenoptik ist ein tiefergehendes Verständnis der Wechselwirkung zwischen Licht und Atomen von elementarer Bedeutung. Daher soll der folgende Abschnitt eine grundlegende Einführung in die zugrundeliegende Theorie aufzeigen. Für einen detaillierteren Einblick sei an dieser Stelle auf Fachliteratur wie [8] verwiesen.

### 2.1 Grundlegende Konzepte

Ein in der Quantenmechanik viel verwendeter Ansatz zur Beschreibung eines Quantenobjektes und dessen Zeitentwicklung, ist das Konzept der so genannten Dichtematrix [8]

$$\rho_{ij} = |i\rangle \langle j|. \quad (2.1)$$

Diese kann zur Beschreibung eines beliebigen Zustandes in einem quantenmechanischen Systems genutzt werden. In diesem Formalismus wird die Population eines Zustandes  $|i\rangle$  über den entsprechenden Eintrag auf der Diagonalen  $\rho_{ii}$  definiert. Dagegen definiert  $\rho_{ij}$  die Kohärenz der beiden Zustände. Mathematisch stellt die Dichtematrix einen hermiteschen Operator dar, demnach gilt  $\rho = \rho^\dagger$ . Zudem ist die Gesamtpopulation bei der Betrachtung eines geschlossenen Systems eine Erhaltungsgröße. Damit lässt sich zeigen, dass  $\text{Spur}(\rho) \stackrel{!}{=} 1$ . Die Zeitentwicklung des Systems wird dann über die von Neumann Gleichung

$$\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)] \quad (2.2)$$

beschrieben. Dabei bezeichnet  $\hat{H}$  den Hamiltonoperator des Systems. Im Folgenden wird dieser Formalismus zur Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Licht und einem Atom mit  $n$  Energieniveaus genutzt. Die  $n$  Niveaus sollen als entartet und nicht wechselwirkend angenommen werden. Der Hamiltonian kann also geschrieben werden als

$$H = H_{\text{at}} + H_{\text{int}}. \quad (2.3)$$

Mit dem Hamiltonian  $H_{\text{at}}$  des Atoms und einem zusätzlichen Term, der die Wechselwirkung mit dem Lichtfeld beschreibt ( $H_{\text{int}}$ ). In der Eigenbasis des Atoms lässt sich  $H_{\text{at}}$  als

$$H_{\text{at}} = \sum_i \hbar \omega_i |i\rangle \langle i| \quad (2.4)$$

darstellen. Dabei definiert  $|i\rangle$  die Eigenzustände mit den jeweiligen Eigenenergien  $\hbar\omega_i$  und  $\omega_i$  die Übergangsfrequenz. Aus Gründen der Anschaulichkeit wird hier ein klassisches Lichtfeld angenommen. Die Wechselwirkung mit dem magnetischen Moment des Atoms liefert nur einen vernachlässigbar kleinen Beitrag und wird hier nicht weiter berücksichtigt. Damit lässt sich der Wechselwirkungsterm über

$$H_{\text{int}} = -dE \quad (2.5)$$

ausdrücken. Mit  $d$  wird hier der Dipoloperator des Atoms bezeichnet. Zur weiteren Vereinfachung soll das Lichtfeld als ebene Welle mit Ausbreitungsrichtung  $z$  beschrieben werden.

$$\mathbf{E}(z, t) = \frac{1}{2} \left( E_0(z, t) e^{i(\omega_{L,ij}t - k_{L,ij}z)} + E_0^*(z, t) e^{-i(\omega_{L,ij}t - k_{L,ij}z)} \right) \mathbf{e}_z \quad (2.6)$$

Hierbei bezeichnet  $\omega_{L,ij}$  die Frequenz des Lichtes. Die Wellenzahl  $k_{L,ij}$  ist dann über  $k_{L,ij} = \omega_{L,ij}/c$  definiert, wobei  $c$  der Lichtgeschwindigkeit entspricht.  $E_0$  definiert die Feldamplitude und  $\mathbf{e}_z$  den Einheitsvektor in  $z$ -Richtung. Das bisher von Gleichung (2.2) beschriebene System zeichnet sich bislang spektral durch infinitesimal schmale Linienbreiten aus. Ein reales Atom in einem angeregten Zustand besitzt jedoch stets eine endliche Lebenszeit hervorgerufen durch Zerfallsprozesse wie spontane Emission. Um diese Effekte mit einzubeziehen wird Gleichung (2.2) um den so genannten Lindbladterm erweitert zu

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

Der Lindbladoperator  $L(\rho(t))$  setzt sich aus einem Zerfalls- und einem Dephasierungsterm zusammen. Die beiden Prozesse werden über die Zerfallsrate  $\Gamma$  und die Dephasierungsrate  $\gamma_{\text{deph}}$  charakterisiert. Damit ergibt sich

$$\begin{aligned} L(\rho(t)) &= L_{\text{decay}}(\rho(t)) + L_{\text{deph}}(\rho(t)) \quad (2.8) \\ &= \sum_{\{i \rightarrow j\}} \Gamma_{i \rightarrow j} \left( |j\rangle \rho_{ii} \langle j| - \frac{1}{2} \{ |i\rangle \langle i|, \rho \} \right) + \sum_i \gamma_{i, \text{deph}} \left( |i\rangle \rho_{ii} \langle i| - \frac{1}{2} \{ |i\rangle \langle i|, \rho \} \right) \quad (2.9) \end{aligned}$$

Zur Lösung von Gleichung (2.7) wird die so genannte „Rotating Wave Approximation“ verwendet. In dieser Näherung wird in ein sich mit der Frequenz des Lichts drehendes Bezugssystem gewechselt. Mit der akkumulierten Phase

$$\varphi_{|1\rangle \rightarrow |i\rangle} = \sum_{\{ab||1\rangle \rightarrow |i\rangle\}} \pm (\omega_{L,ab}t - \mathbf{k}_{L,ab} \mathbf{x}) \quad (2.10)$$

$$= \sum_{\{ab||1\rangle \rightarrow |i\rangle\}} \pm \varphi_{ab} \quad (2.11)$$

kann die Transformationsmatrix aufgestellt werden

$$U_{ii} = \exp(-i\varphi_{|1\rangle \rightarrow |i\rangle} |i\rangle \langle i|). \quad (2.12)$$

Hierbei bezieht sich ein positives Vorzeichen auf die Absorption eines Photons, ein negatives Vorzeichen auf die Emission. Die Diagonaleinträge der Dichtematrix bleiben unter der Transformation unverändert. Die restlichen Einträge ergeben sich zu

$$\tilde{\rho}_{ij} = \rho_{ij} e^{i\varphi_{|i\rangle \rightarrow |j\rangle}}. \quad (2.13)$$

Der Hamiltonoperator ergibt sich demnach zu

$$(\tilde{H})_{ii} = \hbar\omega_i \pm \sum_{\{ab||1\rangle \rightarrow |i\rangle\}} \hbar\omega_{L,ab} \quad (2.14)$$

$$= \hbar \mp \sum_{\{ab||1\rangle \rightarrow |i\rangle\}} \Delta_{ab} \quad (2.15)$$

und

$$(\tilde{H})_{ij} = \frac{1}{2} \hbar \Omega_{ij} |i\rangle \langle j|. \quad (2.16)$$

Auch hier bezieht sich das Vorzeichen auf Absorption bzw. Emission eines Photons. Die Diagonalelemente ergeben sich demnach aus der Summe über alle Detunings  $\Delta_{ab}$ . Das  $\Omega_{ij}$  im Term für die Offdiagonalelemente bezeichnet die so genannte Rabifrequenz, welche über das Dipolübergangsmatrixelement  $d_{ij}$  vom Übergang  $|i\rangle$  nach  $|j\rangle$  definiert ist über

$$\Omega_{ij} = -\frac{d_{ij} E_{0,ij}}{\hbar}. \quad (2.17)$$

Unter der Annahme eines Gausstrahls mit Leistung  $P$  und einem  $1/e^2$  Strahlradius  $\omega_r$ , ist das elektrische Feld durch

$$E_0 = \sqrt{\frac{4P}{c\epsilon_0\pi\omega_r^2}} \quad (2.18)$$

gegeben.  $\epsilon_0$  bezeichnet hier die Dielektrizitätskonstante im Vakuum. Für die Rabifrequenz ergibt sich folglich

$$\Omega_{ij} = -\frac{d_{ij}}{\hbar} \sqrt{\frac{4P}{c\epsilon_0\pi\omega_r^2}}. \quad (2.19)$$

Die Rabifrequenz beschreibt letztlich wie stark die beiden Zustände aneinander gekoppelt sind.

## 2.2 Übergangsdipolmoment

Um die Rabifrequenz nach Gleichung (2.17) berechnen zu können, wird das Dipol-Matrixelement  $d_{ij}$  des entsprechenden Übergangs benötigt. Daher soll im Folgenden das Übergangsdipolmoment näher betrachtet werden. Die dabei verwendete Notationen sind [9] zu entnehmen. Das Dipol-Matrixelement für einen Übergang zwischen zwei Hyperfeinzuständen ist allgemein durch

$$d_{ij} = \langle F m_F | e\mathbf{r} | F' m_{F'} \rangle \quad (2.20)$$

definiert. Dabei bezeichnet  $\mathbf{r}$  den Ortsvektor und  $F$  den Gesamtdrehimpuls.  $F'$  kennzeichnet dann die Quantenzahl des jeweiligen Endzustandes. Üblicherweise wird dann in eine sphärische Basis transformiert. Dadurch kann der Winkelanteil als Produkt von Clebsch-Gordan Koeffizienten geschrieben werden

$$\langle F m_F | e r_q | F' m'_{F'} \rangle = \langle F || e\mathbf{r} || F' \rangle (-1)^{F'-1+m_F} \sqrt{2F+1} \begin{Bmatrix} F' & 1 & F \\ m'_{F'} & q & -m_F \end{Bmatrix}. \quad (2.21)$$

Der hintere Teil dieser Gleichung ( $\dots$ ) stellt hier das so genannte Wigner-3g-Symbol dar. Damit ergibt sich das reduzierte Matrixelement zu  $\langle \dots || e\mathbf{r} || \dots \rangle$ . Eine weitere Transformation in die Basis des Gesamtdrehimpulses  $J$  führt unter Verwendung des Kernspins  $I$  auf

$$\langle F || e\mathbf{r} || F' \rangle = \langle J || e\mathbf{r} || J' \rangle (-1)^{F'+J+1+I} \sqrt{(2F'+1)(2J+1)} \begin{Bmatrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{Bmatrix}. \quad (2.22)$$

$\{\dots\}$  bezeichnet jetzt das Wigner-6g-Symbol. Eine erneute Transformation in die Basis des Bahndrehimpulses  $L$  liefert

$$\langle J || e\mathbf{r} || J' \rangle = \langle L || e\mathbf{r} || L' \rangle (-1)^{J'+L+1+S} \sqrt{(2J'+1)(2L+1)} \begin{Bmatrix} L & L' & 1 \\ J' & J & S \end{Bmatrix}. \quad (2.23)$$

$S$  bezeichnet dabei den Spin des Elektrons. Unter Verwendung der Radialen Wellenfunktion  $R_{nl}(\mathbf{r})$  kann  $\langle l || e\mathbf{r} || l' \rangle$  aus den Überlappintegralen der beiden Zustände berechnet werden. Zur Vereinfachung seien nicht-entartete Hyperfeinzustände und Anregungen nahe der Resonanz angenommen. Dann ergibt sich der so genannte Hyperfeinübergangs-Stärkefaktor zu

$$S_{FF'} = (2F'+1)(2J+1) \begin{Bmatrix} J & J' & 1 \\ F' & F & I \end{Bmatrix}^2. \quad (2.24)$$

Damit folgt das effektive Dipolmoment eines solchen F-Übergangs

$$|\langle F || e\mathbf{r} || F' \rangle|^2 = S_{FF'} |\langle J || e\mathbf{r} || J' \rangle|^2. \quad (2.25)$$

Bei der Betrachtung eines großen Detunings (weit weg von Resonanz) wird die Annahme getroffen, dass alle Hyperfeinzustände adressiert werden. Demnach muss hier die Summe aller  $S_{FF'}$ -Faktoren berücksichtigt werden. Für diese gilt:

$$\sum_{F'} S_{FF'} = 1 \quad (2.26)$$

Somit folgt

$$|\langle F || e\mathbf{r} || F' \rangle|^2 = |\langle J || e\mathbf{r} || J' \rangle|^2. \quad (2.27)$$

## 2.3 Zwei-Level-Atom

Im Folgenden sollen anhand eines simplen Systems die oben erörterten Grundlagen demonstriert werden. Dafür wird ein Zwei-Niveau System mit nicht-entarteten und nicht wechselwirkenden Zuständen angenommen. Der Grundzustand sei über  $|1\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$  und der angeregte Zustand über  $|2\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$  definiert. Abbildung 2.1 zeigt das mit dem System assoziierte Levelschema. Hierbei ergibt sich die Übergangsfrequenz  $\omega_0$  zwischen  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  aus der Differenz der zugehörigen Eigenenergien

$$\omega_0 = \omega_2 - \omega_1. \quad (2.28)$$

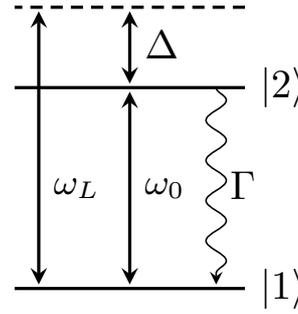


Abbildung 2.1: Levelschema eines Zwei-Niveau-Systems.

Der Zerfall des angeregten Zustands wird über die Zerfallsrate  $\Gamma$  charakterisiert. Die Niveaus des Systems sollen über ein Lichtfeld der Frequenz  $\omega_L = \omega_0 + \Delta$ , wobei  $\Delta$  dem Detuning des Lasers gegenüber der Resonanz entspricht, gekoppelt werden. Demnach ergeben sich Hamiltonian und Lindbladoperator zu

$$H = \hbar \begin{pmatrix} 0 & \frac{1}{2}\Omega \\ \frac{1}{2}\Omega^* & \Delta \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

und

$$L_D = \Gamma \begin{pmatrix} \tilde{\rho}_{22} & -\frac{1}{2}\tilde{\rho}_{12} \\ -\frac{1}{2}\tilde{\rho}_{21} & -\tilde{\rho}_{22} \end{pmatrix}. \quad (2.30)$$

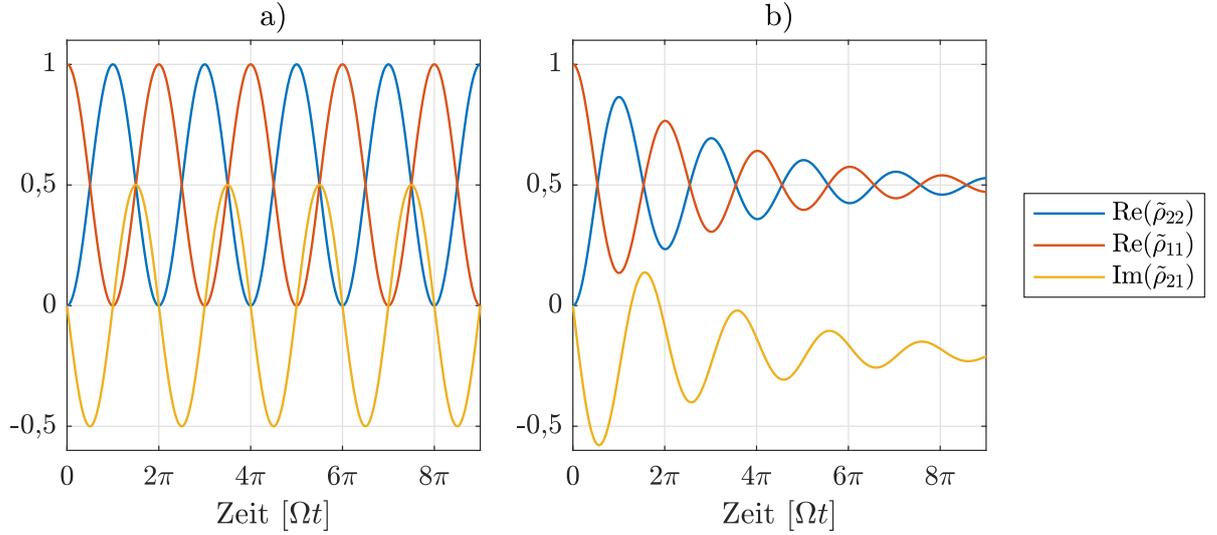


Abbildung 2.2: Zeitentwicklung der Populationen eines Zwei-Niveau Systems, Anfangsbedingungen siehe Text. a) zeigt den Fall  $\Gamma = 0$  und b)  $\Gamma = 0,2$ .

Mit den beiden Operatoren können die von Neumann Gleichungen aufgestellt werden und zu

$$\frac{\partial}{\partial t} \tilde{\rho}_{11} = \Gamma \tilde{\rho}_{22} - \text{Im}(\tilde{\rho}_{12} \Omega^*) \quad (2.31a)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \tilde{\rho}_{12} = \left( -\frac{\Gamma}{2} - i\Delta \right) \tilde{\rho}_{12} - i\frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{22} - \tilde{\rho}_{11}) \quad (2.31b)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \tilde{\rho}_{21} = \left( -\frac{\Gamma}{2} - i\Delta \right) \tilde{\rho}_{21} + i\frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{22} - \tilde{\rho}_{11}) \quad (2.31c)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \tilde{\rho}_{22} = -\Gamma \tilde{\rho}_{22} + \text{Im}(\tilde{\rho}_{12} \Omega^*) \quad (2.31d)$$

vereinfacht werden. Dieser Satz gekoppelter Differenzialgleichungen bildet die so genannten optischen Bloch-Gleichungen. Zur Veranschaulichung der zeitlichen Entwicklung dieser Gleichungen zeigt Abbildung 2.2 eine Lösung für den resonanten Fall, also  $\Delta = 0$ . Als Startbedingung sei hier angenommen, dass sich zum Startpunkt ( $t = 0$ ) die gesamte Population im Grundzustand befindet. Es gilt also  $\rho_{11}(t = 0) = 1$ . Für den Spezialfall  $\Gamma = 0$ , also einer unendlichen Lebensdauer des angeregten Zustands, oszilliert die Population gerade mit der Rabi-Frequenz zwischen den beiden Zuständen. Dieser kohärente Effekt wird als Rabioszillation bezeichnet. Im allgemeineren Fall einer endlichen Lebensdauer des angeregten Zustands ( $\Gamma \neq 0$ ), erfahren diese Oszillationen eine zusätzliche Dämpfung, wie in Abbildung 2.2 zu sehen. Für sehr große Zeiten  $t \gg \frac{1}{\Gamma}$  erreicht das System einen Gleichgewichtszustand. Dies folgt aus der Betrachtung der optischen

Bloch Gleichungen für  $\frac{\partial}{\partial t}\tilde{\rho} = 0$ . Hiermit folgt:

$$\tilde{\rho}_{11} = \frac{|\Omega|^2 + 4\Delta^2 + \Gamma^2}{2|\Omega|^2 + 4\Delta^2 + \Gamma^2} \quad (2.32a)$$

$$\tilde{\rho}_{12} = \frac{\Omega(2\Delta + i\Gamma)}{2|\Omega|^2 + 4\Delta^2 + \Gamma^2} \quad (2.32b)$$

$$\tilde{\rho}_{21} = \frac{\Omega^*(2\Delta - i\Gamma)}{2|\Omega|^2 + 4\Delta^2 + \Gamma^2} \quad (2.32c)$$

$$\tilde{\rho}_{22} = \frac{|\Omega|^2}{2|\Omega|^2 + 4\Delta^2 + \Gamma^2}. \quad (2.32d)$$

Der in diesem Abschnitt aufgezeigte Formalismus kann analog auf ein Atom mit vier Niveaus erweitert werden, um den Prozess des FWM zu beschreiben.

## 2.4 Ausbreitung von Licht in einem atomaren Medium

Da die Funktionsweise des in dieser Arbeit diskutierten Experiments eng verbunden ist mit der Ausbreitung von Laserlicht durch eine mit Rubidiumatomen gefüllten Glaszelle, soll dieser Abschnitt näher auf die dabei auftretenden Mechanismen eingehen. Zur Beschreibung der Ausbreitung eines Laserstrahls entlang einer Ausbreitungsrichtung (hier  $\mathbf{z}$ -Richtung) kann die eindimensionale Wellengleichung verwendet werden

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(z, t) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z, t). \quad (2.33)$$

Wie üblich bezeichnet  $c$  die Lichtgeschwindigkeit,  $\epsilon_0$  die Dielektrizitätskonstante und  $P$  die Polarisation des atomaren Mediums. Sowohl  $P$  als auch das elektrische Feld des Lasers  $E$  kann als ebene Welle

$$P(z, t) = \frac{1}{2} P_0(z, t) \exp(i(\omega t - kz)) + c.c. \quad (2.34a)$$

$$E(z, t) = \frac{1}{2} E_0(z, t) \exp(i(\omega t - kz)) + c.c. \quad (2.34b)$$

angenommen werden. Um die Differenzialgleichung (2.33) zu lösen, wird die Transformation  $z = \zeta$  und  $\tau = t - z/c$  eingeführt. Diese ergibt:

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial \zeta^2} - \frac{2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial \zeta \partial \tau} \right) E(\zeta, \tau) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial \tau^2} P(\zeta, \tau) \quad (2.35)$$

mit

$$P(\zeta, \tau) = \frac{1}{2}P_0(\zeta, \tau)\exp(-i(\omega\tau) + c.c.) \quad (2.36a)$$

$$E(\zeta, \tau) = \frac{1}{2}E_0(\zeta, \tau)\exp(-i\omega\tau) + c.c. \quad (2.36b)$$

Die Transformation wechselt in ein Bezugssystem, in dem die durch die endliche Ausbreitungsgeschwindigkeit des Lichts verursachte ortsabhängige Zeitabhängigkeit verschwindet. Für alle Positionen  $\tau$  trifft das Lichtfeld zum Zeitpunkt  $\tau = 0$  ein. Wird zusätzlich angenommen, dass sich die Felder  $E_0(\zeta, \tau)$  und  $P_0(\zeta, \tau)$  nur langsam verändern, dann lässt sich zeigen, dass gilt  $\frac{\partial}{\partial\tau} \ll \omega$  und  $\frac{\partial}{\partial\zeta} \ll k$ . Demnach liefern nur Terme der niedrigsten Ordnung einen relevanten Beitrag. Diese Näherung ist bekannt als „slow varying envelope approximation“ [8]. Mit dieser ergeben sich

$$\frac{\partial}{\partial\zeta}E_0(\zeta, \tau) = -\frac{i\omega}{2\epsilon_0c}P_0(\zeta, \tau) \quad (2.37a)$$

$$\frac{\partial}{\partial\zeta}E_0^*(\zeta, \tau) = \frac{i\omega}{2\epsilon_0c}P_0^*(\zeta, \tau) \quad (2.37b)$$

Über den Formalismus der Dichtematrix kann die Polarisation des atomaren Mediums auch als

$$P = N\langle d \rangle = N \cdot \text{Spur}(\rho \cdot d) \quad (2.38)$$

über die atomare Teilchenzahl  $N$  und den Dipoloperator  $d$  definiert werden. Ausgehend von einem Zwei-Niveau-System, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben folgt

$$P = N((\tilde{\rho}_{12}d_{21})\exp(-i\omega t) + (\tilde{\rho}_{21}d_{12})^*\exp(i\omega t)) \quad (2.39a)$$

$$P_0 = 2Nd_{21}\tilde{\rho}_{12}. \quad (2.39b)$$

Die Lösung für den stationären Zustand von  $\tilde{\rho}_{12}$  ist gegeben durch

$$\tilde{\rho}_{12} = -\frac{2\Omega(\Delta - i\Gamma/2)}{4\delta^2 + \Gamma^2 + \Omega^2}, \quad (2.40)$$

mit der bereits beschriebenen Rabi-Frequenz  $\Omega$ , dem Detuning  $\Delta$  und der Zerfallsrate  $\Gamma$  des Übergangs. Im so genannten „weak probe Regime“ also für  $\Omega \ll \Gamma$  folgt dann aus Gleichung (2.37a)

$$\frac{\partial}{\partial\zeta}E_0 = i\frac{\omega}{2c\epsilon_0}2Nd_{21}\tilde{\rho}_{12} = i\frac{\omega}{2c}\frac{1}{\epsilon_0}2Nd_{21}\frac{\tilde{\rho}_{12}}{E_0}E_0 = i\frac{\omega}{2c}\chi E_0 \quad (2.41)$$

$\chi$  definiert die Suszeptibilität des Mediums. Diese Differenzialgleichung kann mit Hilfe eines Exponentialansatzes gelöst werden

$$E_0(\zeta) = E_{00} \exp\left(-\frac{\alpha}{2}\zeta\right). \quad (2.42)$$

$\alpha$  bezeichnet hierbei den Absorptionskoeffizienten. Dieser ist über

$$I = I_0 \exp(-\alpha z) \propto E_0^2 \quad (2.43)$$

bestimmt, wobei  $I$  die Intensität bezeichnet. Die Ausbreitung eines schwachen Lasers in einem atomaren Medium führt also auf eine mit der Weglänge exponentiell abfallende Intensität. Über die so genannte optische Dichte ( $OD$ )

$$OD = -\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (2.44)$$

kann ein Zusammenhang mit der Teilchenzahl  $N$  aufgestellt werden, da  $OD$  direkt proportional zu  $z$  ist. Im allgemeinen Fall eines thermischen Gases bei einer endlichen Temperatur, reduziert die Geschwindigkeitsverteilung der Teilchen die Anzahl der Atome, die resonant mit dem Lichtfeld des Lasers sind. Demnach sinkt auch die  $OD$ . Um sicher zu stellen, dass genügend Atome am FWM-Prozess partizipieren, ist eine ausreichend hohe  $OD$  für das in dieser Arbeit beschriebene Experiment elementar. Dies soll in einem späteren Abschnitt diskutiert werden, siehe 12.5.

# 3 Rydbergatome

Da sich das Konzept des in dieser Arbeit beschriebenen Experiments maßgeblich auf die Ausnutzung der Effekte eines Rydbergatoms stützt, werden im folgenden Abschnitt die wesentlichen physikalischen Grundlagen eines solchen Atoms aufgezeigt.

## 3.1 Allgemeine Merkmale

Rydbergatome bezeichnen Atome bei denen sich ein oder mehrere Elektronen in einem Anregungszustand mit sehr großer Hauptquantenzahl  $n$  befinden. Typischerweise ist  $n$  größer als 15. Im Rahmen dieser Arbeit werden Rydberganregungen in Rubidiumatomen betrachtet. Rubidium ist im Periodensystem in der ersten Hauptgruppe zu finden, besitzt also genau ein Valenzelektron. Daher soll hier auch der Fall mit genau einem Elektron im Rydbergzustand betrachtet werden. Das angeregte Elektron befindet sich dabei sehr weit entfernt vom restlichen Atomrumpf, sodass dieser als positiv geladener Kern angenommen werden kann. Das resultierende System kann somit analog zum Wasserstoffatom beschrieben werden. Im Bohrschen Atommodell ergeben sich die Energieniveaus damit zu

$$E_{n^*} = -\frac{1}{(4\pi\epsilon_0)^2} \frac{e^2 m_e}{2(n^*)^2 \hbar^2}. \quad (3.1)$$

Dabei bezeichnet  $\epsilon_0$  die Dielektrizitätskonstante im Vakuum,  $e$  die Elementarladung und  $m_e$  die Elektronenmasse. Um den so genannten Quantendefekt zu berücksichtigen, wird die effektive Hauptquantenzahl  $n^* = n - \delta_{n,l,j}$  verwendet. Dieser Effekt resultiert aus der Tatsache, dass der geladene Kern nicht als punktförmige Ladung angenommen werden kann. Der Defekt kann über die Rydberg-Ritz-Formel berechnet werden.

$$\delta_{n,l,j} = \delta_0 + \frac{\delta_2}{(n - \delta_0)^2} + \frac{\delta_4}{(n - \delta_0)^4} + \frac{\delta_6}{(n - \delta_0)^6} + \dots \quad (3.2)$$

Dabei müssen die Koeffizienten  $\delta_i$  experimentell bestimmt werden. Durch die große Distanz des Rydbergelektrons ist dieses nur sehr schwach an den Atomrumpf gebunden. Dadurch werden viele Eigenschaften des Rydbergatoms beeinflusst und Effekte verursacht, die Rydbergatome zu interessanten Objekten für die Experimentalphysik machen. Die wichtigsten Abhängigkeiten sind in Tabelle 3.1 aufgezeigt.

Tabelle 3.1: Proportionalitäten der Eigenschaften zur effektiven Hauptquantenzahl von Rydbergatomen [10]

Eigenschaft	Proportionalität
Bahnradius	$(n^*)^{-2}$
Lebensdauer	$(n^*)^3$
Radius	$(n^*)^2$
Polarisierbarkeit	$(n^*)^7$

## 3.2 Rydbergblockade

Aufgrund der oben beschriebenen Eigenschaften sind Rydbergatome extrem empfindlich gegenüber einem externen Potential. Daher genügt bereits die Anwesenheit eines einzelnen Rydbergatoms, um die Rydbergzustände der umgebenden Atome gegenüber der Resonanz zu verstimmen. Der resultierende Effekt ist die so genannte Rydbergblockade, da in einem definierten Volumen um die Rydberganregung eine weitere Anregung unterdrückt wird. Der Mechanismus ist in Abbildung 3.1 aufgezeigt. Durch die endliche Bandbreite  $\Gamma$  der Anregung ist der Blockaderadius  $r_B$  definiert über

$$r_B = \left( \frac{C_6}{\Gamma} \right)^{\frac{1}{6}}. \quad (3.3)$$

Hierbei beschreibt der Koeffizient  $C_6$  die Natur der van-der-Waals Wechselwirkung zwischen Rydbergatomen. Für ein Rydbergatom in einem Medium mit Teilchendichte  $\rho$  erfahren alle Atome innerhalb dieses Radius eine so großen Verschiebung ihrer Energieniveaus, dass eine Anregung in den Rydbergzustand unterdrückt wird. Dieser Effekt soll im Experiment genutzt werden, um in einem durch eine Glaszelle

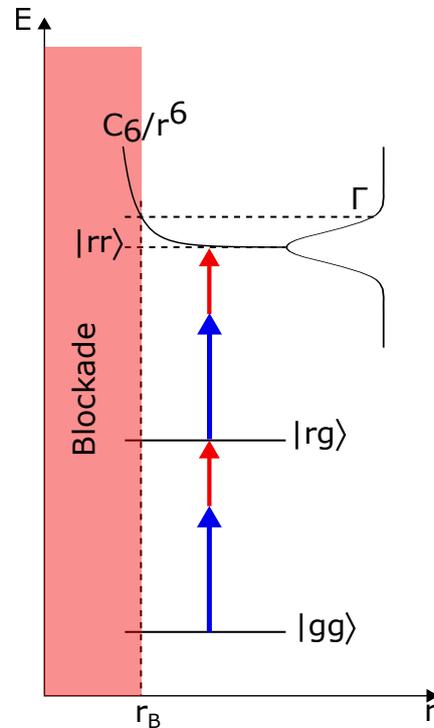


Abbildung 3.1: Energielevel zweier Atome aufgetragen über dem Abstand  $r$ .

Die van-der-Waals Wechselwirkung zwischen den Rydbergatomen sorgt für einen Shift des Energielevels für eine Doppelanregung.

beschränkten Volumen, mit Radius kleiner  $r_B$ , nur eine einzelne Anregung zu erzeugen. Im Realfall beinhaltet selbst ein so kleines Volumen (Größenordnung  $1 \mu\text{m}^3$ ) eine Vielzahl an Atomen. Es kann daher nicht davon ausgegangen werden, dass ein spezifisches Atom in den Rydbergzustand angeregt wird. Der Effekt wird vielmehr als kollektives Phänomen interpretiert. Alle Atome innerhalb des Blockaderadius teilen sich kohärent die Rydberganregung, was zu einem verkleinerten effektiven Blockaderadius

$$r_{B,\text{koll}} = \left( \frac{C_6}{\sqrt{\frac{4}{3}\pi\rho\Gamma}} \right)^{\frac{1}{6}} \quad (3.4)$$

führt. Eine detaillierte Beschreibung ist in [10] zu finden.

## 4 Rubidium

Da sich alle Experimente im Rahmen dieser Arbeit auf die Wechselwirkung zwischen Licht und Rubidiumatomen stützen, sollen im Folgenden deren grundlegenden Eigenschaften skizziert werden. Rubidium gehört chemisch zu den Alkalimetallen. Diese befinden sich in der ersten Hauptgruppe und besitzen somit ein einzelnes Valenzelektron. Diese Tatsache macht Rubidium in vielerlei Hinsicht interessant, da die Atome analog zum Wasserstoffatom beschrieben werden können. Es existieren zwei natürlich vorkommende Isotope. Das stabile  $^{85}\text{Rb}$  macht 72,17% aus [9], [11]. Das metastabile  $^{87}\text{Rb}$  besitzt eine Lebensdauer von  $4,88 \cdot 10^{10}$  Jahren und macht 27,83% aus [9]. Der Schmelzpunkt von Rubidium liegt unabhängig vom Isotop bei  $39,3^\circ\text{C}$ . Ausgehend von einem begrenzten Volumen  $V$  mit der Temperatur  $T$  kann die atomare Dichte über das ideale Gasgesetz  $P_V V = k_B N_0 T$  berechnet werden. Dabei bezeichnet  $P$  den Gasdruck in Torr. Dieser kann für festes und flüssiges Rubidium wie folgt berechnet werden.

$$\log_{10} P_V = 2.881 + 4.857 - \frac{4215}{T} \quad (\text{fest}) \quad (4.1a)$$

$$\log_{10} P_V = 2.881 + 4.312 - \frac{4040}{T} \quad (\text{flüssig}). \quad (4.1b)$$

Zur Veranschaulichung der Temperaturabhängigkeit zeigt Abbildung 4.1 die atomare Dichte für Rubidium geplottet über der Temperatur.

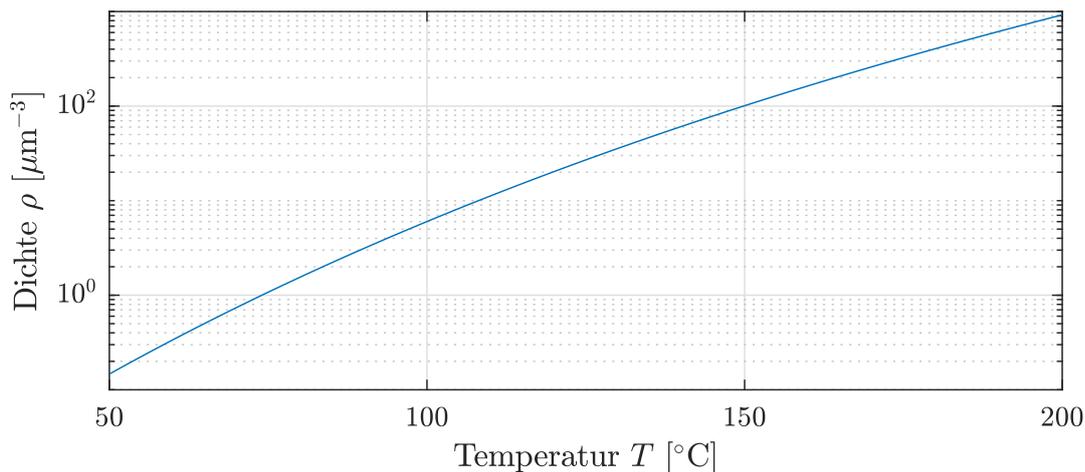


Abbildung 4.1: Atomare Dichte von Rubidium berechnet über Gleichung (4.1b), aufgetragen über der Temperatur.

## 4.1 Levelstruktur

Für diese Arbeit sind vor allem die 5S und 6P Zustände von Interesse. Die zugehörigen Levelschemas für die beiden Isotope sind in Abbildung 4.2 illustriert. Für einen genaueren Einblick in die Herleitung dieser Energieniveaus muss dabei auch die Kopplung zwischen Kernspin  $I$  und Gesamtdrehimpuls des Elektrons zu  $\mathbf{F} = \mathbf{J} + \mathbf{I}$  berücksichtigt werden [10].

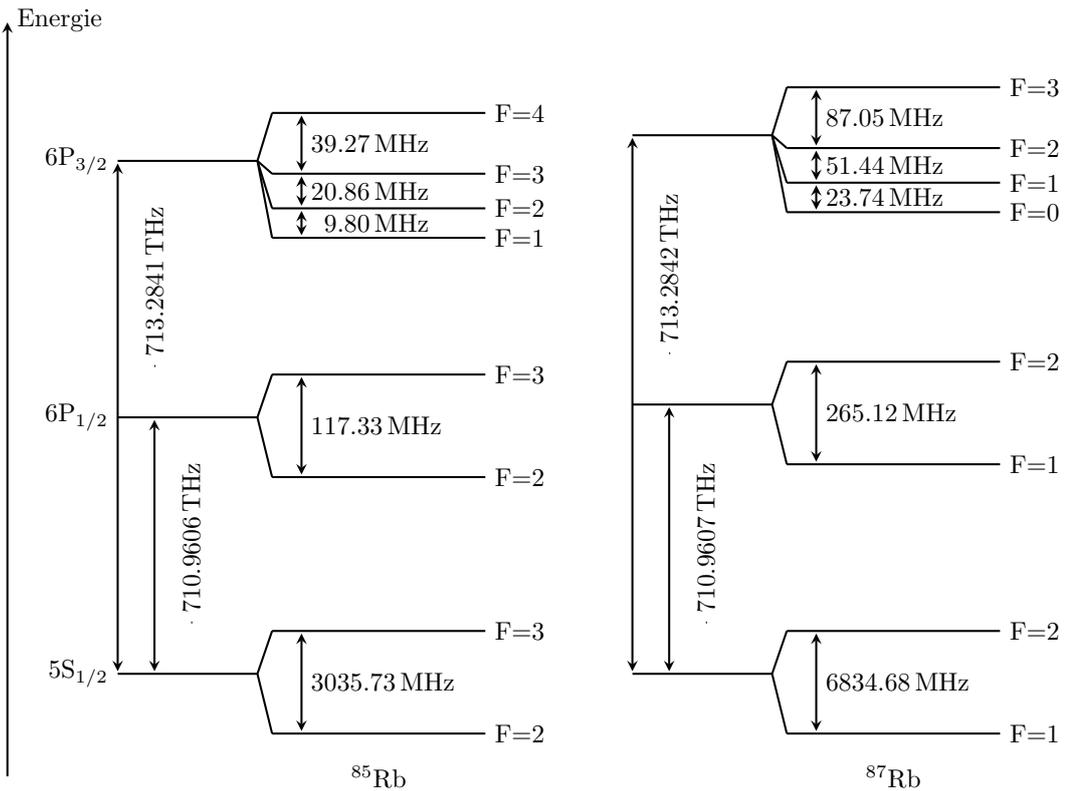


Abbildung 4.2: Levelschema der  $6P_{1/2}$  und  $6P_{3/2}$  Zustände für  $^{85}\text{Rb}$  und  $^{87}\text{Rb}$ , mit Hyperfeinstruktur. Alle Werte sind [9] und [11] zu entnehmen.

Hierbei kann  $F = |\mathbf{F}|$  die Werte  $|J - I| \leq F \leq |J + I|$  annehmen. Hervorgerufen durch die Ladungsverteilung innerhalb des Atoms, wechselwirkt das magnetische Dipolmoment des Kerns mit dem vom Elektron erzeugten magnetischen Dipolfeld. Die dadurch hervorgerufene Aufspaltung der Energieniveaus, wird als Hyperfeinstruktur bezeichnet und ist gegeben durch

$$\Delta E_{\text{HFS}} = \frac{1}{2} A_{\text{HFS}} [F(F + 1) - I(I - 1) - J(J - 1)] \quad (4.2)$$

mit der Hyperfeinekonstante  $A_{\text{HFS}}$ , welche experimentell bestimmt werden muss. Wie

Abbildung 4.2 zu entnehmen ist, unterscheidet sich die Levelstruktur der beiden Isotope aufgrund des unterschiedlichen Kernspins.

## 5 Four-Wave-Mixing

Durch den Begriff Four-Wave-Mixing (im Folgenden als FWM bezeichnet) wird ein Prozess beschrieben, bei dem in der Regel die Übergänge dreier Niveaus eines atomaren Vierniveau-Systems über drei Laser nahe der atomaren Resonanz getrieben werden. Der Zerfall des letzten Zustands schließt dann den Prozess und liefert dabei die kohärente Emission von Photonen. Im Rahmen dieser Arbeit soll der bereits beschriebene Rydbergblockade-Effekt ausgenutzt werden, um die Emission eines einzelnen Photons zu erzeugen. Dafür wird hier eine Zwei-Photonen-Anregung vom Grundzustand in den Rydbergzustand verwendet. Von diesem aus führt eine zweite Zwei-Photonen-Anregung wieder zurück in den Grundzustand. Das Atom wird also in einem geschlossenen Kreislauf getrieben und durchläuft dabei den Rydbergzustand. Dadurch wird die Ausnutzung der mit dem Rydbergzustand einhergehenden Effekte, wie dem Blockade-Effekt ermöglicht.

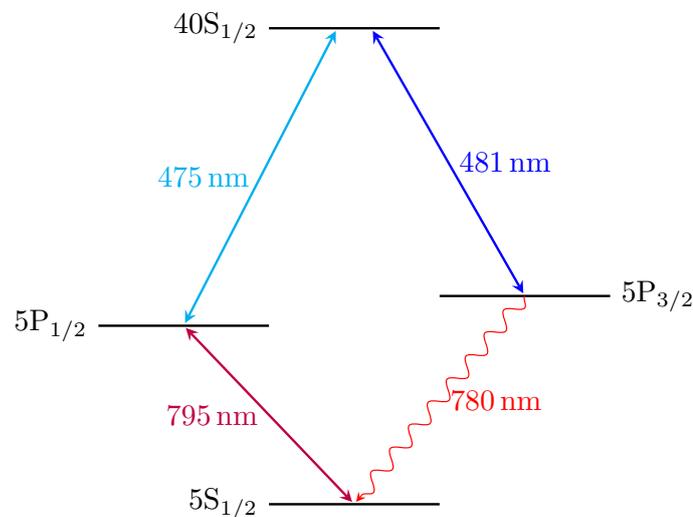


Abbildung 5.1: Die Abbildung zeigt das Anregungsschema mit den am FWM-Prozess beteiligten Energiezuständen in Rubidium. Die Anregung startet im  $5S_{1/2}$  Grundzustand und erfolgt im Uhrzeigersinn. Die drei Laser, jeweils gekennzeichnet durch ihre Wellenlänge, transferieren die Population über den Rydbergzustand in den Zielzustand  $5P_{3/2}$ , von dem aus letztlich die Photonen emittieren.

## 5.1 Das normale Anregungsschema

Wie bereits beschrieben, führt die Kopplung von vier atomaren Niveaus über drei Lichtfelder in einem FWM-Schema zur Emission eines vierten Lichtfelds, durch welches der Prozess geschlossen wird. Bei der Verwendung von Rubidium als atomares Vierniveau-System passiert die Anregung ausgehend vom  $5S_{1/2}$  Grundzustand über einen Zwischenzustand  $nP_J$  bis zum Rydbergzustand  $n'S_{1/2}$ . Von dort wird über einen zweiten Zwischenzustand  $nP_{J'}$  abgeregt, von welchem aus das System durch Emission des vierten Lichtfelds zurück in den Grundzustand gelangt. Die Machbarkeit eines solchen Schemas wurde von F. Ripka in dessen Arbeit bereits bewiesen. Das dort verwendete, hier als „normal“ bezeichnete Schema, ist in Abbildung 5.1 zu sehen. Dafür wird ein 795 nm Laser und ein 475 nm Laser verwendet, um das Rubidiumatom vom  $5S_{1/2}$  Grundzustand über den  $5P_{1/2}$  Zwischenzustand in den  $40S_{1/2}$  Rydbergzustand anzuregen. Über einen dritten Laser mit einer Wellenlänge von 481 nm, wird der Kreis über den Zustand  $5P_{3/2}$  und Emission von Photonen mit 780 nm Wellenlänge geschlossen. Durch die für dieses Schema verwendeten Laser treten jedoch erhebliche Nachteile auf. Die von F. Ripka verwendeten blauen Laser für die Rydberganregung waren durch eine sehr geringe Repetitionsrate von 50 Hz und großen Zeitjitter charakterisiert. Naheliegender ist daher ein Wechsel zu einem leicht veränderten Anregungsschema, welches die Verwendung verbesserter Lasersysteme ermöglicht.

## 5.2 Das invertierte Anregungsschema

Um die in der Arbeit von F. Ripka demonstrierte Einzelphotonenquelle zu optimieren und die eben genannten Nachteile zu umgehen, wird im Rahmen dieser Arbeit das Schema aus Abbildung 5.2 verwendet. Für eine ungestörte Rydbergblockade soll der Rydbergzustand einem S-Zustand entsprechen [10]. Ein direkter Übergang vom Grundzustand zu einem solchen Rydbergzustand ist nach den Auswahlregeln dipol-verboden. Die Anregung erfordert also einen Zwischenzustand  $nP_J$ . Für einen Zwischenzustand mit zu großem  $n$  wird dann jedoch die Wellenlänge des ersten Übergangs zu klein und des zweiten Übergangs zu groß für ein technisch realisierbares Lasersystem. Demzufolge wird der  $40S_{1/2}$  Rydbergzustand über den  $6P_{1/2}$  Zustand angeregt. Dies erfordert einen 422 nm Laser und einen 1011 nm Laser. Mit einem dritten Laser bei 1019 nm Wellenlänge wird der Kreis über den  $6P_{3/2}$  Zustand geschlossen. Die Photonenemission findet bei einer Wellenlänge von 420 nm statt. Da bei diesem Schema die Verwendung von blauen und infraroten Lasern gegenüber dem normalen Schema in der Reihenfolge vertauscht ist, wird es hier als „invertiert“ bezeichnet.

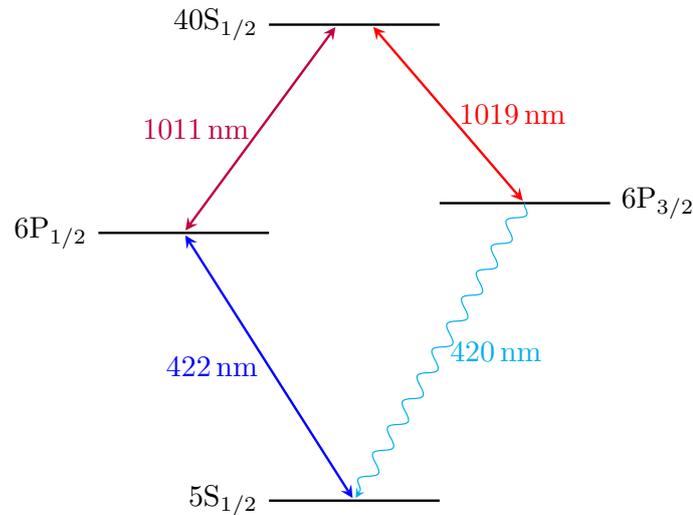


Abbildung 5.2: Die Abbildung zeigt das Anregungsschema mit den am FWM-Prozess beteiligten Energiezuständen in Rubidium. Die Anregung startet im  $5S_{1/2}$  Grundzustand und erfolgt im Uhrzeigersinn. Die drei Laser, jeweils gekennzeichnet durch ihre Wellenlänge, transferieren die Population über den Rydbergzustand in den Zielzustand  $6P_{3/2}$ , von dem aus letztlich die Photonen emittieren.

### 5.3 Normal vs. invertiert

Das invertierte Schema hat im Vergleich mit dem normalen nicht nur Vorteile. Ein kurzer Vergleich soll dies näher diskutieren. Im direkten Vergleich ist das Dipol-Matrix-Element des Übergangs beim normalen Schema ca. 10 mal größer ( $d_{12,\text{norm}} = 2,99 ea_0$ ,  $d_{12,\text{invert}} = 0,24 ea_0$ ). Nach Gleichung (2.17) wird ein deutlich schwächeres elektrisches Feld, also weniger Laserleistung benötigt, um die gleiche Rabi-Frequenz zu erreichen. Für den zweiten Übergang ist jedoch das Dipol-Matrix-Element des invertierten Schemas knapp 20 mal größer ( $d_{12,\text{norm}} = 0,012 ea_0$ ,  $d_{12,\text{invert}} = 0,23 ea_0$ ). Typischerweise ist die Kopplung an den Rydbergzustand verglichen mit der zum Zwischenzustand sehr klein. Zusätzlich liegt die Wellenlänge der Rydberganregung beim invertierten Schema im Infraroten. Für diesen Wellenlängenbereich können deutlich einfachere und leistungsfähigere Lasersysteme gebaut werden, als im Bereich der blauen Wellenlängen. Der veränderte Rydbergübergang liefert also einen entscheidenden technischen Vorteil gegenüber dem normalen Schema. Mit dem Wechsel des Schemas und dem damit einhergehenden Wechsel zu einem neuen Lasersystem sind dann Repetitionsraten von 100 kHz im Vergleich zu den früher erreichten 50 Hz möglich. Abbildung 5.2 zeigt auch, dass für das invertierte Schema die Wellenlänge für den ersten Übergang (422 nm) sehr nahe an der der emittierten Photonen (420 nm) liegt. In der Folge ist es daher nötig sehr genau zwischen

den beiden Wellenlängen selektieren zu können. Um die hohe Intensität des einfallenden Lasers des Grundzustandsübergang von den letztlich emittierten einzelnen Photonen zu filtern, sind hohe Ansprüche an die verwendeten Filter gestellt. Darüber hinaus weisen die meisten Detektoren im blauen Wellenlängenbereich eine deutlich geringere Detektionseffizienz auf, was in Summe mit den durch das Filtern erzeugten Verlusten, die Messung erheblich erschwert.

# 6 Photonenstatistik

Für die Beschreibung einer Einzelphotonenquelle ist die Statistik der Photonen, insbesondere deren zeitliche Korrelation von zentraler Bedeutung. Im Folgenden sollen daher die Grundlagen der Photonenstatistik im Hinblick auf Bunching und Antibunching von Photonen, diskutiert werden.

## 6.1 Korrelation von Photonenpaaren

Im Experiment wird die Korrelation der Photonen mit einem Hanbury-Brown-Twiss Interferometer, siehe Abbildung 6.1, gemessen. Ein solches Interferometer misst die Kor-

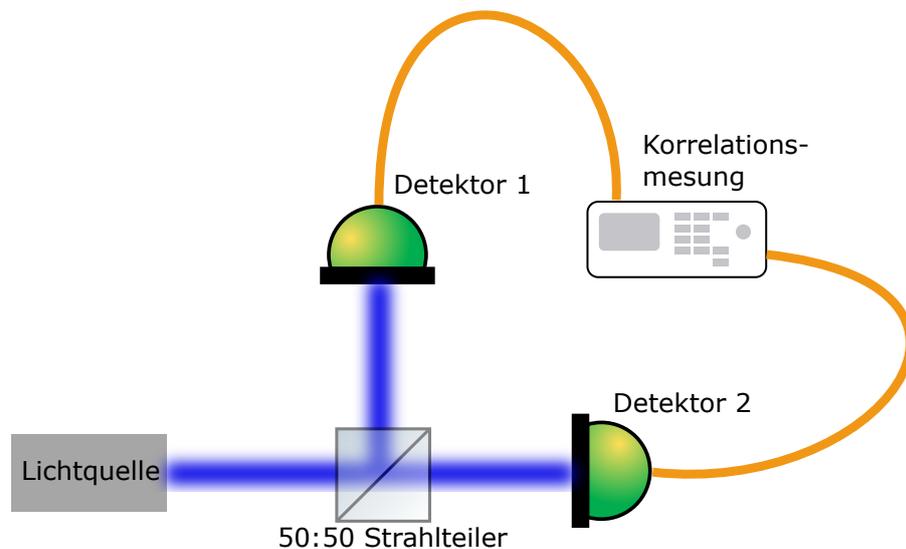


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung eines Hanbury-Brown-Twiss Interferometer.

relation zweiter Ordnung einer Feldintensität und kann als Teilchen-Interferometer betrachtet werden. Unter Annahme periodisch erzeugter Photonen und einer durch  $p(n)$  gegebenen Teilchenverteilung der Photonen, ist die Gesamtwahrscheinlichkeit in beiden

Armen des Interferometers zeitgleich je ein Photon zu detektieren, gegeben durch

$$P_s = \sum_{n=0}^{\infty} S_s(n)p(n). \quad (6.1)$$

Durch  $S_s(n)$  ist die Wahrscheinlichkeit beschrieben in beiden Armen ein Photon zu detektieren wenn  $n$ -viele Photonen ins Interferometer eingekoppelt werden. Der Index  $s$  bezeichnet dabei den Fall, dass die beiden Photonen zusätzlich im selben Zyklus erzeugt wurden. Es gilt dann

$$S_s(n) = \frac{1}{2^n} \sum_{i=1}^n \binom{n}{i} i(n-i) = \frac{1}{4}n(n-1) \quad (6.2)$$

Anschaulich drückt  $S$  dann aus, wie stark die Photonen miteinander korreliert sind. Über Gleichung (6.1) wird also die Wahrscheinlichkeit beschrieben in beiden Armen des Interferometers zeitgleich ein Photon aus dem selben Zyklus zu detektieren. Im Gegensatz dazu ist durch

$$S_d(n_1, n_2) = \frac{1}{4}n_1n_2 \quad (6.3)$$

die Korrelation zwischen Photonen aus verschiedenen Zyklen definiert. Dabei beschreibt  $n_i$  wie viele Photonen im  $i$ -ten Zyklus erzeugt wurden. Über

$$P_d = \sum_{n=0}^{\infty} S_d(n)p(n) \quad (6.4)$$

ist dann die Wahrscheinlichkeit für Photonen in beiden Armen, jedoch aus verschiedenen Zyklen gegeben. Die normalisierte Korrelation von Photonenpaaren, welche im gleichen Zyklus erzeugt wurden, ist dann gerade durch das Verhältnis zwischen  $P_s$  und  $P_d$  gegeben.

$$g^{(2)}(0) = \frac{P_s}{P_d} = \frac{\langle n(n-1) \rangle}{\langle n \rangle^2} \quad (6.5)$$

Unter Annahme einer konstanten Photonenzahl kann der Erwartungswert  $\langle n \rangle$  durch  $n$  ersetzt werden. Damit folgt

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n}. \quad (6.6)$$

Eine perfekte Einzelphotonenquelle würde in jedem Zyklus genau ein Photon emittieren; es würde also gelten  $g^{(2)}(0) = 0$ .

## 6.2 Bunching und Antibunching

Mit der hergeleiteten Photonenpaarkorrelation kann nun zwischen zwei Extremfällen unterschieden werden. Von Photonbunching wird gesprochen, wenn Photonen statistisch häufiger in der zeitlichen Nähe anderer Photonen auftreten, als dies für einen Poisson Prozess zu erwarten wäre. Dieser Effekt wurde erstmals von Hanbury Brown und Twiss beschrieben. Für diesen Fall gilt

$$g^{(2)}(0) > g^{(2)}(\tau). \quad (6.7)$$

Bunching tritt also genau dann auf, wenn es wahrscheinlicher ist in beiden Armen des Interferometers zeitgleich je ein Photon zu detektieren ( $g^{(2)}(0)$ ) als in beiden Armen Photonen mit einer endlichen Verzögerung  $\tau$  zu detektieren ( $g^{(2)}(\tau)$ ). Antibunching von Photonen beschreibt das genaue Gegenteil hiervon. Es ist also sehr unwahrscheinlich in beiden Armen je ein Photon zum selben Zeitpunkt zu detektieren.

$$g^{(2)}(0) < g^{(2)}(\tau). \quad (6.8)$$

Photon Antibunching verstößt dabei gegen die Schwarz-Ungleichung [**Schwarzungleichung**] und kann somit nur quantenmechanisch beschrieben werden. Der Effekt tritt bei klassischen Lichtquellen daher nicht auf, kann aber als Maß für den nicht-klassischen Charakter eines Emitters herangezogen werden. Die Messung der  $g^{(2)}$ -Korrelation spielt daher zur Charakterisierung der hier diskutierten Einzelphotonenquelle eine wesentliche Rolle.

## **Teil II**

### **Details des experimentellen Aufbaus**



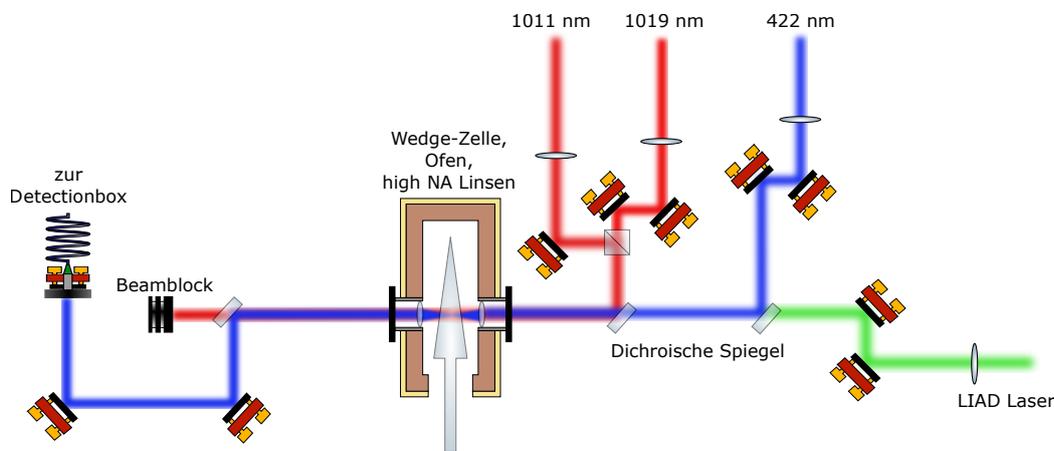


Abbildung 7.1: Der blaue und die beiden infraroten Laser für den FWM-Prozess und der grüne LIAD Laser werden vor der Zelle mittels Beamsplittern und dichroischen Spiegeln überlagert. Die Linsen in den jeweiligen Strahlengängen dienen der Anpassung der Strahlgröße. Nach der Zelle wird der infrarote Anteil gefiltert und der blaue Anteil über eine Faser in die Detektionseinheit gekoppelt.

## 7 Aufbau Four-Wave-Mixing

Der in Abbildung 7.1 gezeigte Aufbau stellt das Herzstück des Experiments dar. Hier werden alle für den FWM-Prozess benötigten Laserstrahlen mittels Linsen auf die notwendige Strahlgröße gebracht und überlagert auf die Mikrozele justiert. Diese befindet sich innerhalb eines Kupferofens und im Fokus eines Linsenpaares mit kurzer Brennweite (4 mm) und hoher numerischer Apertur ( $NA = 0,62$ ). Die zweite Linse ist auf einer 3-Achsen-Stage montiert, um die im Experiment erzeugten Photonen zu kolimieren und in eine Faser zur Detektionseinheit einzukoppeln. Die Zelle selbst ist auf einer 6-Achsen-Stage montiert, um sie exakt im Fokus, senkrecht zum Strahlverlauf positionieren zu können. Hinter der zweiten NA-Linse werden zunächst die infraroten Strahlanteile gefiltert. Die Anteile des blauen 422 nm Lasers und der erzeugten 420 nm Photonen werden über eine Faser in die Detektionseinheit gekoppelt. In dieser werden die beiden Anteile, abgeschottet vom Raumlicht, separiert und die 420 nm Photonen mittel Einzelphotonenzählern detektiert. Genauer es hierzu im Abschnitt 9. Zusätzlich zu den drei Lasern für

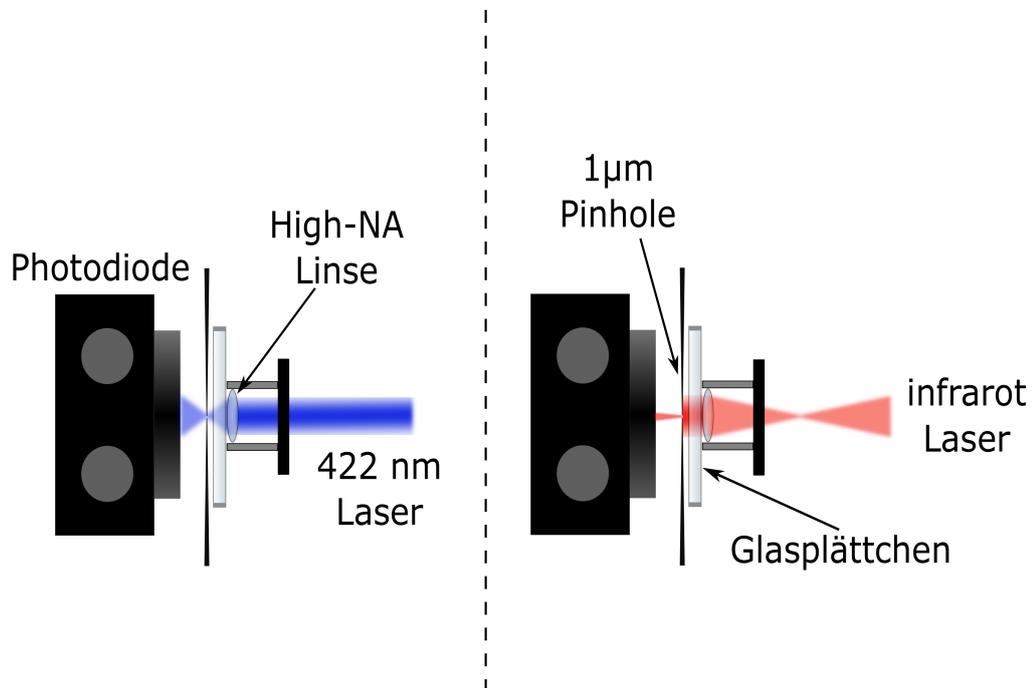


Abbildung 7.2: Messanordnung zur Charakterisierung der Laserstrahlen für den FWM-Prozess, bestehend aus Linse hoher numerischer Apertur, Glasplättchen,  $1\ \mu\text{m}$  Pinhole und Photodiode montiert auf 3D-Piezostage.

den FWM-Prozess wird auch der grüne LIAD-Laser (532 nm) mit den anderen Strahlen überlagert. Dieser dient dann zur Erhöhung der atomaren Dichte unmittelbar vor dem FWM-Prozess.

## 7.1 Strahlparameter

Für den FWM-Prozess wird ein blauer 422 nm und zwei infrarote (1011 nm, 1019 nm) Laser verwendet. Zur Erhöhung der atomaren Dichte wird zusätzlich ein grüner 532 nm Laser eingesetzt. Die Strahlen dieser vier Laser müssen also für das Experiment im Bereich der Zelle bestmöglich überlagert werden. Darüber hinaus hängt der Erfolg des Experiments auch von der Größe des jeweiligen Strahls ab. Diese muss ebenfalls bereits vor der Zelle über die Verwendung entsprechender Linsen angepasst werden. Der kritischste Faktor ist dabei die Strahlgröße des blauen Lasers. Dieser soll durch die Ver-

wendung der Linsen hoher NA so stark fokussiert werden, dass der Strahldurchmesser im Fokus ca  $1 \mu\text{m}$  beträgt, also in einer Größenordnung kleiner der Rydbergblockade liegt. Die Größe der drei restlichen Strahlen ist weniger kritisch, soll jedoch für die infraroten Laser im Bereich von  $10 \mu\text{m}$  und für den LIAD Laser im Bereich von  $20 \mu\text{m}$  liegen. Somit wird eine hinreichend große, aber dennoch homogene Intensität sichergestellt. Die Strahlparameter können über eine Linse eingestellt werden, die zusammen mit der ersten Linse hoher numerischer Apertur die Strahlgröße bestimmt. Um diese und auch die Qualität der Überlagerung zu prüfen, wird die zweite Linse hoher numerischer Apertur durch eine Photodiode mit einem Pinhole mit Durchmesser  $1 \mu\text{m}$  ersetzt. Zwischen Linse und Pinhole wird ein Glasplättchen gebaut. Dieses besitzt die selbe Dicke wie die Zellwand und simuliert dadurch die Anwesenheit der Zelle. Der verwendete Aufbau ist in Abbildung 7.2 zu sehen. Die Kombination aus Photodiode und Pinhole ist auf einer 3D-Piezostage montiert. Somit kann der gesamte Raum nahe dem Fokus abgerastert werden, um die Strahlen zu vermessen. Die so gemessenen Signale entsprechen mathematisch der Faltung des Strahlprofils und der Form des Pinholes. So lange der gemessene Strahl größer als das Pinhole selbst ist, kann dieses in guter Näherung als eine Deltafunktion angenommen werden. Demnach entspricht der gemessene Strahldurchmesser innerhalb dieser Näherung, dem tatsächlichen Strahldurchmesser. Die Ergebnisse einer solchen Strahlvermessung sind in Abbildung 7.3 und 7.4 dargestellt. Für jede y-Position wird an die aufgenommene xz-Karte eine 2D Gaussfunktion gefittet und daraus der  $1/e^2$  Radius bestimmt. Die so bestimmten Radien werden dann über der y-Position geplottet. Unter der Annahme von Gausstrahlen kann

$$\omega(y) = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{y}{z_R}\right)^2} \quad (7.1)$$

als Fitfunktion angenommen werden, um den Strahlradius im Fokus zu ermitteln. Die Ergebnisse dieser Auswertung sind Tabelle 7.1 zu entnehmen. Durch die Linse hoher

Tabelle 7.1: Fitergebnisse einer Fitfunktion der Form (7.1) für die Strahlvermessung der drei Laser.

Laser	Strahltaile
420 nm	1,434 $\mu\text{m}$
1011 nm	8,116 $\mu\text{m}$
1019 nm	7,987 $\mu\text{m}$

numerischer Apertur sollte der 420 nm Strahl auf eine noch kleinere Strahltaile fokussiert werden. Da für die Messung aber ein  $1 \mu\text{m}$  großes Pinhole verwendet wird, erscheint der gemessene Strahl jedoch größer als der tatsächliche. Grund dafür ist die bereits erläuterte Faltung mit der Form des Pinholes, die für einen so kleinen Strahl nicht mehr vernachlässigt werden kann.

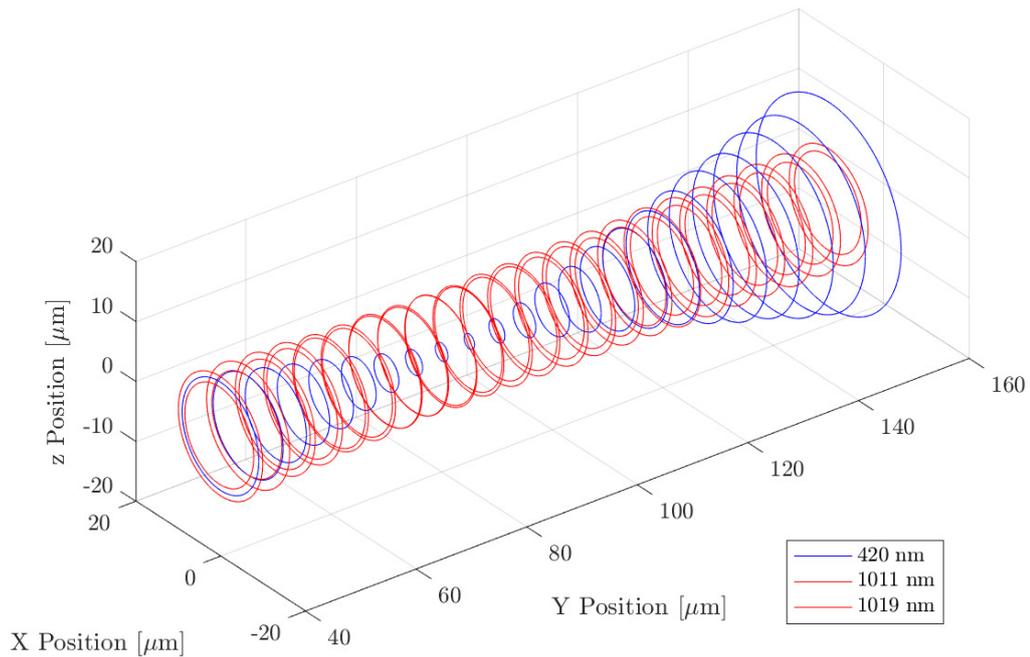


Abbildung 7.3: Dargestellt sind Kreise deren Radien und Positionen den Fitergebnissen für die  $1/e^2$  Radien und Positionen der Maxima der 2D Gaussfunktionen für verschiedene y-Positionen entsprechen.

## 7.2 Die Mikrozele

Das Herzstück des Experiments in dieser Arbeit ist eine mit Rubidium-Dampf gefüllte Glaszelle. Diese wird aus zwei mit Saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) beschichteten Glasplatten aus Quarzglas ( $\text{SiO}_2$ ) gefertigt. Eine der Platten erhält am vorderen Rand einen winkelförmigen Anschliff. Das Gegenstück erhält einen  $50\text{--}100\ \mu\text{m}$  großen "Glaspickel" am gegenüberliegenden Ende. Beim Zusammenschmelzen der beiden Platten entsteht so eine keilförmige Zellgeometrie. Durch diese Geometrie treten in der Zelle entlang ihrer Längsachse kontinuierliche Zelldicken zwischen  $0$  und ca.  $100\ \mu\text{m}$  auf. An das hintere Ende der Zelle wird ein Röhrchen geschmolzen, das anschließend unter Vakuum mit Rubidium befüllt wird und so als Reservoir dient. Die atomare Dichte in der Zelle kann dann über das Temperaturverhältnis zwischen Zelle und Reservoir kontrolliert werden. Ein Temperaturgradient zwischen Zelle und Reservoir verhindert dabei Kondensation in der Zelle. Die Saphirbeschichtung des Inneren der Zelle soll die Glasoberfläche später vor dem reaktiven Rubidium schützen. Eine solche Zelle ist in Abbildung 7.5 zu sehen. Die dort erkennbaren Interferenzstreifen sind so genannte Newtonringe. Diese werden durch die endliche Re-

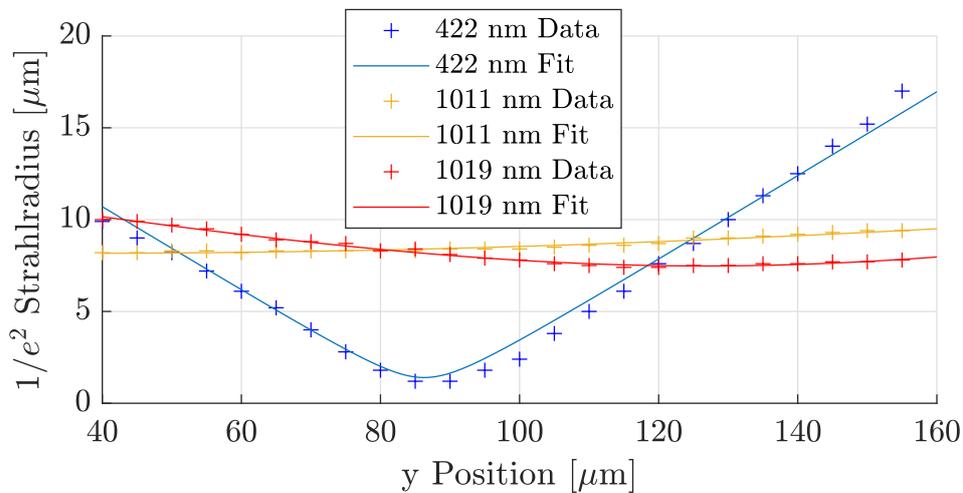


Abbildung 7.4: Resultierende Strahlradien aufgetragen über der y-Position. An die Messwerte wurde eine Fitfunktion der entsprechend Gleichung (7.1) angepasst. Die Ergebnisse dieser Fits sind Tabelle 7.1 zu entnehmen

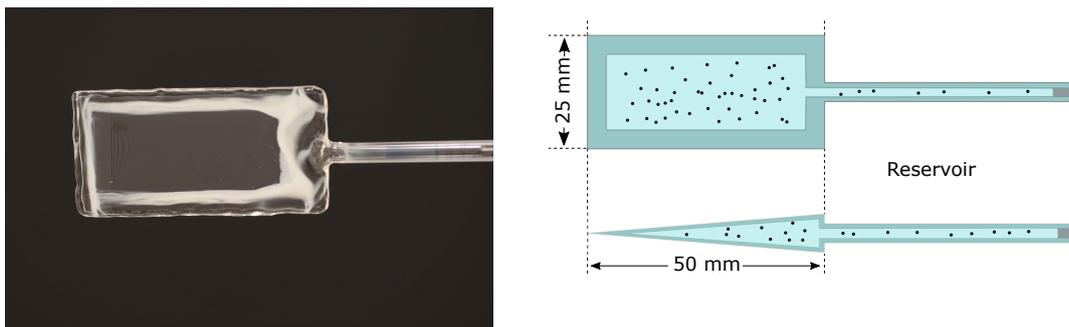


Abbildung 7.5: Fotografie einer der Zellen mit erkennbaren Newtonringen links und schematischer Aufbau der Zelle rechts.

flektivität der Glasplatten verursacht. Durch diese verhält sich die Zelle analog zu einem Fabry-Perot Interferometer mit variabler Länge entlang der Zelle. Demnach treten bei Zelllängen, die einem Vielfachen von  $\lambda/2$  entsprechen, Maxima in der Transmission auf. Das Auftauchen dieses Interferenzphänomens kann im Experiment genutzt werden, um die Zelldicke zu bestimmen. Dafür wird die Transmission hinter der Zelle gemessen, während diese in der x-z-Ebene abgerastert wird. Eine solche 2D-Transmissionmessung ist in Abbildung 7.6 zu sehen. Zur Ermittlung des Kontaktpunkts, also dem Punkt an dem sich die beiden Glasplatten tatsächlich berühren, wird für jede Interferenzstreifen aus Abbildung 7.6 ein Rubidiumspektrum der D2 Linie aufgenommen. Aus dem gemessenen Spektrum kann jeweils die optische Dichte (OD) berechnet werden. Die Ergebnisse einer solchen Messung sind in Abbildung 7.7 dargestellt. Werden die Maxima eines entspre-

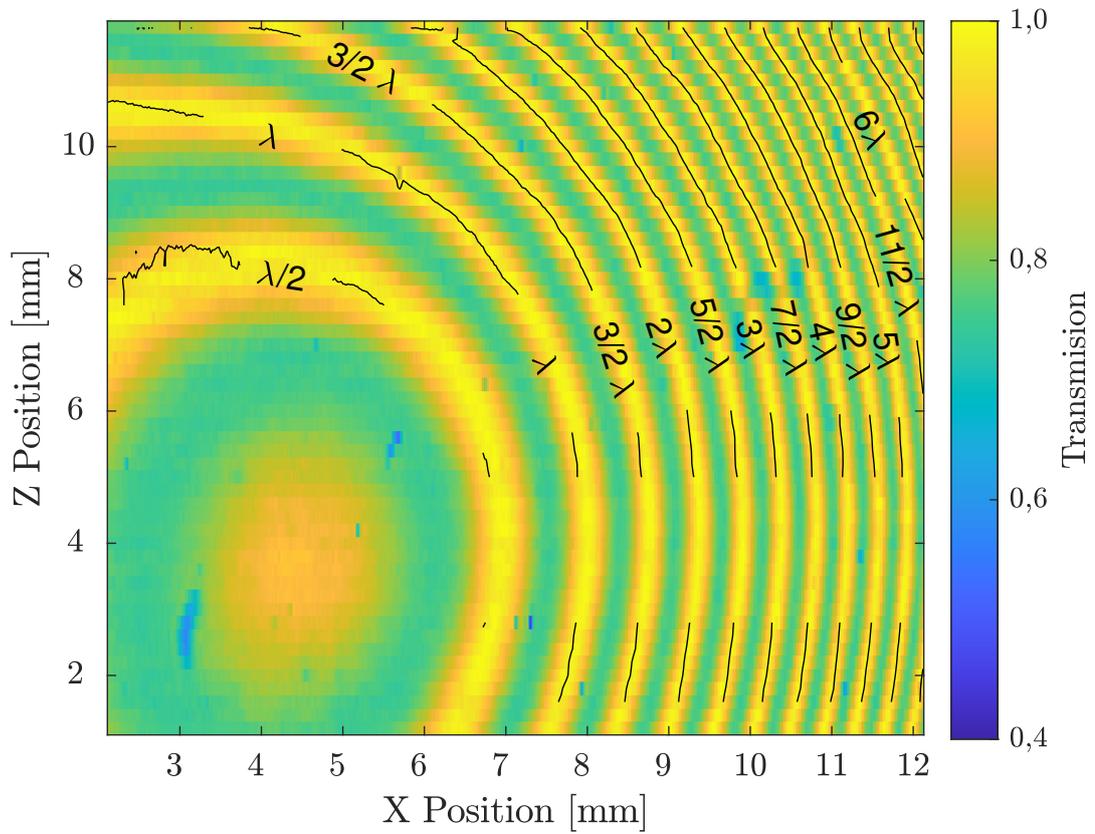


Abbildung 7.6: Die Abbildung zeigt die normierte Transmission aufgetragen über der x- und z-Position. Die Linien markieren Bereiche der Dicke  $n\lambda/2$ , wobei  $n$  die Ringnummer definiert.

chenden Gaussfits an die Spektren, über der Ringnummer aufgetragen, kann bestimmt werden, welcher dem Nullten entspricht. Jeder weitere Ring korrespondiert dann mit einer Zelldicke von  $n \cdot \lambda/2$ , wenn  $n$  die Ringnummer angefangen beim nullten Ring definiert. Wird eine neue Zelle ins Experiment eingebaut, muss über eine solche Messung der Arbeitsbereich der Zelle ermittelt werden. Nur so kann die Zelle richtig positioniert werden, um ein Volumen kleiner dem des Blockaderadius in Strahlrichtung zu garantieren. Wird die Zelle nun in den Fokus des Strahls gefahren, so ist das Volumen in allen Richtungen begrenzt und kleiner als die Rydbergblockade.

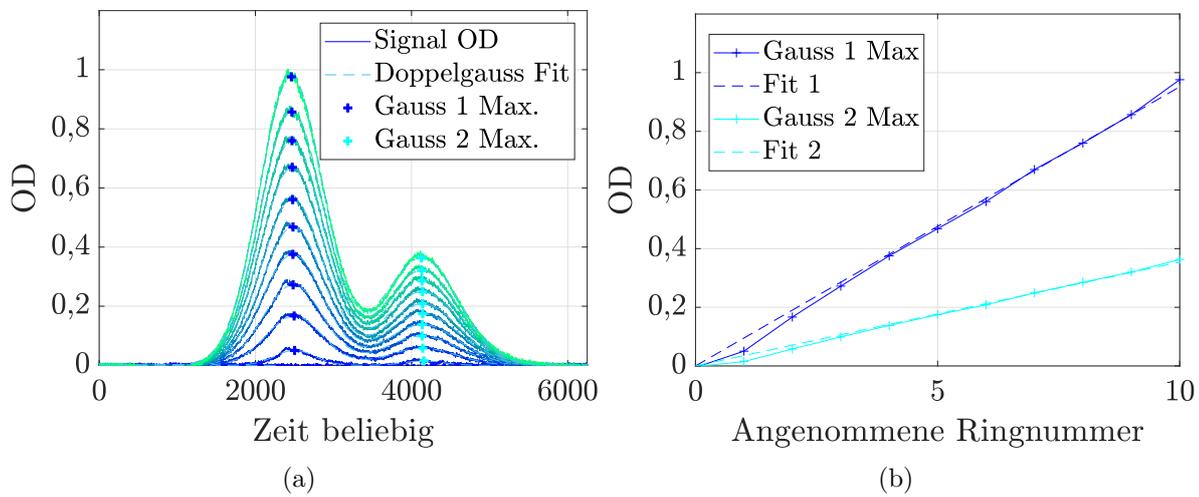


Abbildung 7.7: a) Optische Dichte für verschiedene Ringpositionen mit angepassten Gaussfits. b) Maxima der Gaussfits aufgetragen gegen die angenommene Ringnummer mit linearem Fit. Da die beiden Fits Ursprungsgeraden darstellen, besitzt die vermessene Zelle einen Kontaktpunkt.

# 8 Aufbau der Frequenzstabilisierung

Auf dem Fachgebiet der Atomphysik spielt die Kontrolle über die Frequenz der verwendeten Laser eine zentrale Rolle. Ziel ist es die Frequenz des Lasers zu kennen und so zu kontrollieren bzw. stabilisieren, dass die Rahmenbedingungen des Experiments erfüllt werden. Im speziellen Fall des hier diskutierten FWM-Experiments werden frequenzstabilisierte Laser benötigt, um die gewünschten Energiezustände effizient anregen zu können. Diese Bedingung muss insbesondere für mindestens drei Laser verschiedener Wellenlänge über den gesamten Zeitraum des Experiments erfüllt werden, auch wenn sich äußere Parameter verändern. Es wird daher ein System zur Frequenzstabilisierung erforderlich, welches es ermöglicht Laser unterschiedlicher Wellenlängen zeitgleich und flexibel in der Frequenz zu stabilisieren (im Nachgang auch als locken bezeichnet). Der folgende Abschnitt soll die nötigen Grundlagen für ein solches System aufzeigen. Für eine detailliertere Beschreibung sei hier auf [12] verwiesen.

## 8.0.1 Optischer Resonator

Für die Frequenzstabilisierung eines Lasers ist die Möglichkeit zur Messung der absoluten Frequenzänderung erforderlich. Ein Fabry-Perot-Interferometer, im Nachgang als Cavity bezeichnet, bietet die Möglichkeit einer solchen Messung. Im Folgenden wird eine Cavity bestehend aus einem planaren und einem konkaven Spiegel im Abstand  $d$  angenommen. Das in der Cavity eingekoppelte Licht wird viele Male hin und her reflektiert, bevor es an einem der Spiegel transmittiert. Dabei bildet sich eine stehende Welle aus, welche durch eine Resonanzfrequenz charakterisiert werden kann. Das so entstehende Transmissionssignal einer solchen Cavity ist in Abbildung 8.1 dargestellt. Die Cavity selbst ist dann maßgeblich charakterisiert über den freien Spektralbereich

$$FSR = \frac{c}{2nd}. \quad (8.1)$$

Hier beschreibt  $c$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und  $n$  dem Brechungsindex des Mediums. Die  $FSR$  definiert gerade den Abstand zweier benachbarter Transmissionspeaks im Frequenzraum. Die zweite wichtige Größe einer Cavity ist die so genannte Finesse

$$\mathcal{F} = \frac{FSR}{\delta f}, \quad (8.2)$$

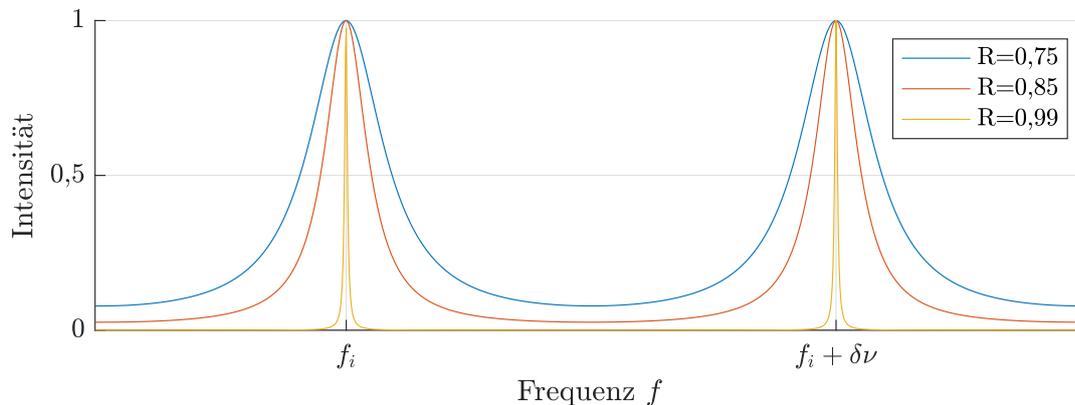


Abbildung 8.1: Transmissionssignal eines Fabry-Perot-Interferometer für verschiedene Reflektivitäten der Spiegel. Die  $FSR$  entspricht genau dem Frequenzabstand zweier Peaks.

definiert über die  $FSR$  und die Linienbreite der Transmissionspeaks  $\delta f$ . Anschaulich gesprochen beschreibt die Finesse ein Maß dafür, wie scharf die Transmissionspeaks sind. Die Position der Transmissionspeaks kann dann genutzt werden, um die Änderung in der Laserfrequenz zu detektieren.

## 8.0.2 Pound-Drever-Hall Verfahren

Um nicht nur die Frequenzänderung zu detektieren, sondern die Frequenz auf einen festen Wert zu stabilisieren, müssen zwei Aspekte berücksichtigt werden. Es benötigt ein Fehlersignal und eine Feedbackschleife, um die Abweichung vom Zielwert zu korrigieren. Ein solches Fehlersignal beschreibt eben diese Abweichung zwischen momentaner Frequenz und dem Wert auf den gelockt werden soll. Die offensichtlichste Wahl eines Fehlersignals wäre die Verwendung des Transmissionssignals. Dabei kann jedoch nicht zwischen einer Intensitäts- und einer Frequenzschwankung unterschieden werden. Das so genannte Pound-Drever-Hall Verfahren (PDH) umgeht diese Problematik, indem hier die Phase des Signals verwendet wird. Im resonanten Fall bietet diese einen Nulldurchgang und somit auch einen Vorzeichenwechsel. Da die Phase eines Signals nicht direkt detektiert werden kann, wird beim PDH-Verfahren eine Phasenmodulation der Laserfrequenz mit Hilfe eines elektro-optischen Modulators (EOM) eingesetzt. Die so aufmodulierten Seitenbänder interferieren mit dem nicht modulierten Anteil, was auf einer Photodiode detektiert werden kann. Durch Demodulation des Signals mit der Modulationsfrequenz wird so das PDH-Fehlersignal (siehe Abbildung 8.2) gewonnen. Da die für die Gewinnung des Fehlersignals notwendigen Seitenbänder in der Transmission herausgefiltert werden, wird stattdessen das Reflexionssignal verwendet. Dieses stellt anschaulich das invertierte Transmissionssignal unter Berücksichtigung der Phase dar. Für eine tiefere Beschreibung des PDH-Verfahrens sei an dieser Stelle auf [13] verwiesen.

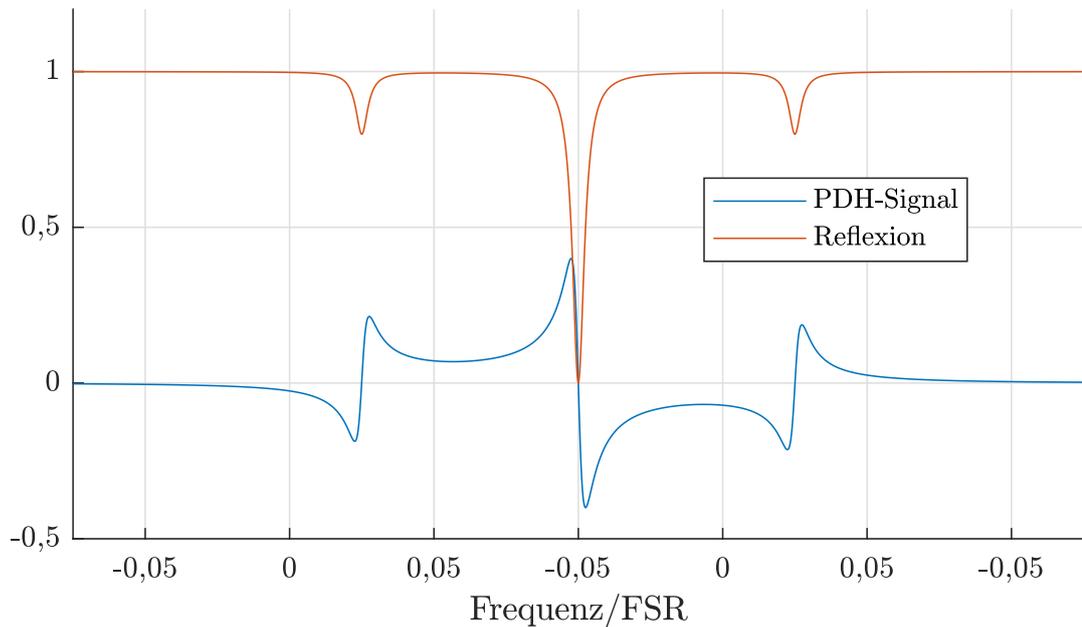


Abbildung 8.2: Reflektiertes Signal der Cavity mit den aufmodellierten Seitenbändern und PDH-Fehlersignal.

### 8.0.3 PID-Regler

Der Aspekt der Feedbackschleife kann über einen so genannten PID-Regler realisiert werden. Ein solcher Regler verfügt über drei Regelanteile (proportional, integral, derivativ). Der Proportionalteil erzeugt ein Ausgangssignal proportional zur Differenz zwischen Ist- und Sollwert. Bei alleiniger Verwendung eines solchen proportionalen Reglers beginnt das Signal um den Sollwert zu oszillieren. Der Integralteil des PID-Reglers korrigiert zusätzlich die im Mittel auftretende Abweichung des Signals vom Sollwert. Die Ausgabe dieses Regelanteils ist proportional zum über die Zeit integrierten Fehlersignal. Bei einem Regler bestehend aus P und I-Teil, besteht die Gefahr eines Overshoots, für sich schnell ändernde Signale. Der Ableitungsteil des PID-Reglers (derivativ) liefert ein Ausgangssignal proportional zur zeitlichen Änderung des Fehlersignals. Ändert sich das Signal zu schnell, kann so das Ausgangssignal des PID-Reglers angepasst werden. Das Verhältnis der drei Regelanteile muss dann optimal aufeinander abgestimmt werden.

### 8.0.4 Transfer-Lock

Werden unter realen äußeren Einflüssen Cavities wie beschrieben zur Frequenzstabilisierung eingesetzt, müssen auch Faktoren wie Temperatur- oder Luftdruckänderungen berücksichtigt werden. Durch diese verändert sich im Wesentlichen der Brechungsindex der Luft, was einer effektiven Veränderung des Spiegelabstandes  $d$  entspricht. Abhilfe schafft hier die Verwendung einer ULE-Cavity (ultra low expansion). Diese ist aktiv

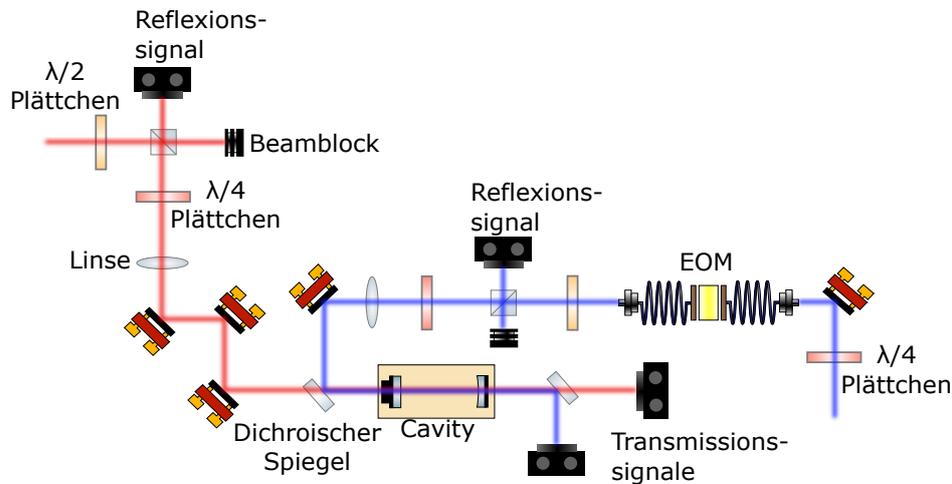


Abbildung 8.3: Schematischer Aufbau des im Text beschriebenen Transferlocks. Der rote Laser entspricht hier dem auf die ULE-Cavity stabilisierten Referenzlaser und dient der Längenstabilisierung der Cavity. Der blaue Laser wird dann mit dem roten überlagert in die Cavity eingekoppelt und kann so ebenfalls gelockt werden. Über die Linsen in den Strahlengängen werden die Strahlen bezüglich Taille an die Moden der Cavity angepasst.

temperaturstabilisiert. Zwischen den Spiegeln befindet sich ein Glasblock mit extrem geringer thermischer Expansion und einem Nulldurchgang in der Ausdehnung am Arbeitspunkt, sodass der Abstand  $d$  sehr stabil bleibt. Da im Experiment jedoch mindestens drei Laser unterschiedlicher Wellenlänge stabilisiert werden sollen, scheidet die Verwendung einer ULE für jeden Laser aus Kostengründen aus. Auch die Verwendung einer einzigen ULE wird angesichts der verschiedenen Wellenlängen und dem Justageaufwand hinfällig. Die Lösung in diesem Fall ist daher die Verwendung einer ULE-Cavity, mit deren Hilfe ein Laser gelockt werden kann. Dieser Laser dient dann als Referenz für alle weiteren zu lockenden Laser. Mit dieser Referenz können so genannte Transfer-Cavities aufgebaut und aktiv in ihrer Länge stabilisiert werden. Eine solche Transfer-Cavity besitzt einen planaren Spiegel, dessen Position über einen Piezokristall angepasst werden kann. Da eine Längenänderung der Cavity zu einem Transmissionssignal analog zu dem einer Frequenzänderung führt, kann auch hier die PDH-Methode genutzt werden, um die Länge der Cavity aktiv zu stabilisieren. Der für das Experiment relevante Laser kann dann auf die stabile Cavity gelockt werden. Dieses Prinzip ist beliebig erweiterbar, da für jeden neuen Laser lediglich eine zusätzliche Transfer-Cavity analog zu Abbildung 8.3 aufgebaut werden muss. Im Experiment soll die Frequenz der Laser später genau auf die einer atomaren Resonanz stabilisiert werden. Dafür wird der EOM mit einer zweiten

Modulationsfrequenz zwischen 50 und 500 MHz betrieben. In diesem Fall wird der EOM jedoch auf maximale Signalstärke in der ersten Ordnung optimiert. Durch Änderung der Modulationsfrequenz wird dann die Position der ersten Ordnung relativ zum nicht modulierten Anteil bestimmt. Demnach verändert sich so auch die Frequenz auf die gelockt wird. Der so auf einen Cavitypeak gelockte Laser kann also langsam in seiner Frequenz durchgeföhren werden. Um den Laser für jede beliebige Frequenz zu stabilisieren muss lediglich die Scanrange des EOM größer als die halbe  $FSR$  der Cavity gewählt werden. Ein detaillierter Einblick in ein solches Setup und dessen Charakterisierung ist in [14] zu finden.

## 8.1 Aufbau EIT-Referenz

Wie im vorangegangenen Abschnitt erläutert, sollen die Laser für den FWM-Prozess auf die Frequenzen der entsprechenden atomaren Übergänge in Rubidium stabilisiert werden. Zur Bestimmung der Frequenz ist daher eine Referenzmessung notwendig. Dafür werden im Experiment Referenzzellen in einer Anordnung entsprechend Abbildung 8.5 verwendet. Die 10 cm langen Referenzzellen sind mit Rubidium befüllt. Die atomare Dichte kann über die Temperaturen der Zelle und des Reservoirs eingestellt werden. Die Funktionsweise des Referenz-Setups sei hier am Beispiel der linken Seite des FWM-Levelschemas erklärt. Die verwendeten Laser sind daher ein blauer 422 nm Laser und ein infraroter 1011 nm Laser. Der blaue Laser wird über eine Kombination aus  $\lambda/2$ -Plättchen und PBS (polarizing beam splitter) in zwei Teilstrahlen aufgeteilt. Ein Teilstrahl wird um die Zelle herumgeleitet. Der zweite Teilstrahl wird erneut durch eine Kombination aus  $\lambda/2$ -Plättchen und PBS aufgeteilt. Beide so entstehenden Strahlen werden parallel zueinander durch die Zelle justiert. Der um die Zelle geleitete Strahl wird gegenläufig mit einem der beiden anderen Strahlen überlagert. Hinter der Zelle werden die beiden Strahlen mittels Spiegel und PBS auf einer differentiellen Photodiode detektiert. Dabei dient der nicht überlagerte Strahl als Hintergrundmessung. In dieser Anordnung kann eine Sättigungsspektroskopie für den Grundzustand gemessen werden. Für die Referenzmessung wird zusätzlich der infrarote Laser mittels dichroischer Spiegel innerhalb der Zelle überlagert. In Anwesenheit beider Laser der linken Seite des FWM-Schemas, kann das System als 3-Niveau-System siehe Abbildung 8.4, beschrieben werden. Ist in diesem Fall der Grundzustandslaser, also

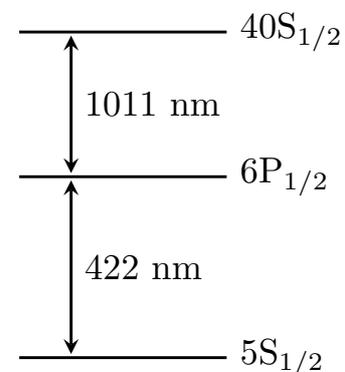


Abbildung 8.4: Das Anregungsschema der linken Seite des FWM-Schemas kann in Anwesenheit beider Laser als Drei-Niveau-System beschrieben werden.

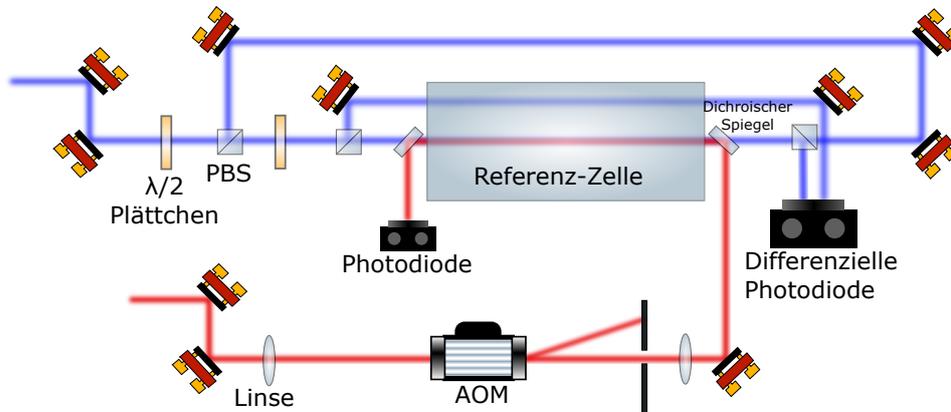


Abbildung 8.5: Schematischer Aufbau des zur Frequenzbestimmung verwendeten Referenz-Setups. Dieser Aufbau verwendet eine 15 cm lange Dampfzelle gefüllt mit Rubidium. Der Aufbau ermöglicht sowohl die Messung einer Sättigungsspektroskopie mit dem blauen Laser, als auch die Messung eines EIT-Signals unter Verwendung beider Laser in gegenläufiger Konfiguration. Zwischen den Messungen kann durch Blockieren der entsprechenden Strahlen gewechselt werden. Der zusätzliche blaue Strahl durch die Zelle dient zur Hintergrundmessung und sorgt in Kombination mit der differentiellen Photodiode für ein besseres Signal-Rausch-Verhältnis.

der blaue Laser resonant mit dem Übergang zum Zwischenzustand  $6P_{3/2}$ , wird das Medium für diesen in Anwesenheit des starken infraroten Lasers, der den  $6P_{3/2}$  Zustand und den Rydbergzustand koppelt, transparent. Es bildet sich also ein Transmissionsfenster wie in Abbildung 8.6 zu sehen. Dieser Effekt wird elektromagnetisch induzierte Transparenz (EIT) genannt. Für eine ausführliche Behandlung, sei hier auf die Arbeit von Annika Belz [14] verwiesen. Da im betrachteten System der dritte Zustand einen Rydbergzustand darstellt, wird ein nur schwach ausgeprägtes EIT-Signal erwartet. Um dieses trotzdem messbar zu machen, wird ein so genannter Lock-in-Verstärker verwendet. Ein solcher Verstärker filtert ein mit bekannter Trägerfrequenz modulierte Signal, wodurch Rauschen unterdrückt wird. Dafür wird der infrarote Laser über einen AOM (akusto-optischen Modulator) mit einer Frequenz von ca 80 kHz moduliert, siehe Abbildung 8.5. Der EIT-Effekt kann im Rahmen dieses Experiments als Referenzmessung zur Einstellung der Laserfrequenz genutzt werden. Dafür wird die Wellenlänge über ein Wavemeter grob eingestellt und der infrarote Laser über die Resonanz gescannt bis ein EIT-Signal sichtbar wird. Bei gefundenem EIT-Signal werden beide Laser auf die bereits beschriebenen Transfercavities gelockt. Geht hierbei das EIT-Signal verloren, kann

die Frequenz des im Locking-Setup verwendeten EOM in kleinen Schritten ( $< 1$  MHz) verändert werden. Der PID-Regler kann diese kleinen Schritte kompensieren. Der Laser kann somit langsam in der Frequenz gescannt werden bis das EIT-Signal wieder gefunden wird, während der der Lock aktiv ist. Resultierend ist so die Frequenzstabilisierung beider Laser auf Resonanz mit den gewünschten atomaren Übergängen. Für die rechte Seite des FWM-Schemas wird ein identischer Versuchsaufbau verwendet. Allerdings wird der 420 nm Übergang, der im FWM-Kreis durch die Emission der Photonen gegeben ist, durch einen zusätzlichen 420 nm Laser als Referenz sichergestellt. So kann auch die rechte Seite des Schemas analog zur linken als Drei-Niveau-System beschrieben werden. Im Zusammenspiel aus Frequenzstabilisierung mittels Transfercavities und der hier beschriebenen Referenzmessung ist es möglich alle drei Laser zeitlich stabil bei den benötigten Wellenlängen zu betreiben. Sowohl die Frequenzstabilisierung, als auch die Referenzmessung wird dabei mit den CW-Ausgängen (continuous wave) des Lasersystems durchgeführt. Ausschließlich für das eigentliche Experiment werden die gepulsten Laser verwendet, um ausreichend große Intensitäten für die zu erreichenden Rabi-Frequenzen sicherzustellen.

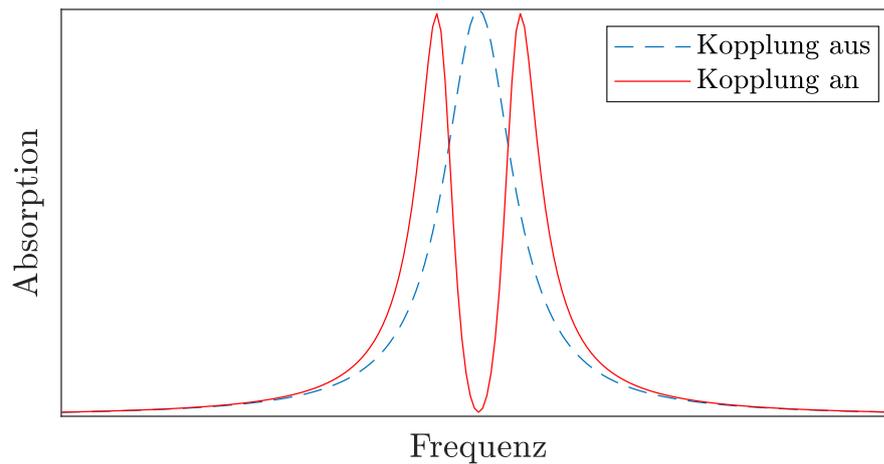


Abbildung 8.6: Simulierter EIT-Effekt für eine Absorptionslinie. In Abwesenheit des Kopplungslasers erfährt ein schwacher Probelaser eine Absorption (blau). Wird zusätzlich der Kopplungslaser eingeschaltet, entsteht ein Transmissionsfenster für den Probelaser (rot).

## 9 Detektionseinheit

Um die durch den FWM-Prozess erzeugten Photonen zu detektieren, werden diese wie bereits erläutert mit der hinteren Linse hoher numerischer Apertur rekollimiert und über eine Multimodefaser in die Detektionseinheit eingekoppelt. Die Detektionseinheit selbst beinhaltet eine Reihe an Filtern und den eigentlichen Aufbau zur Photonendetektion. Der gesamte Aufbau ist in Abbildung 9.1 aufgezeigt und befindet sich im Experiment eingehaust, zum Schutz vor Raumlicht. Im Einzelnen setzt sich der Aufbau wie folgt zusammen. Nach dem Auskoppeln der Photonen aus der Multimodefaser durchlaufen diese eine Reihe von fünf Dünnschicht-Filtern. Diese können als Tiefpassfilter angenommen werden. Über Justage des Winkels gemessen zum Strahlengang, lässt sich die Filterkante so einstellen, dass die Transmission für die 420,3 nm Photonen maximiert und für den 421,7 nm Hintergrund minimiert wird. Zusätzlich zu den Dünnschicht-Filtern wird ein Etalon zum Filtern verwendet. Dieses ist aktiv temperaturstabilisiert. Somit kann die Resonanzfrequenz des Etalons über einen 50:50 Strahlteiler aufgeteilt und mit Hilfe zweier Fasern auf zwei Einzelphotonenzähler geschickt werden. Der Messaufbau entspricht somit einem Hanbury Brown-Twiss Interferometer (siehe Abschnitt 6.1).

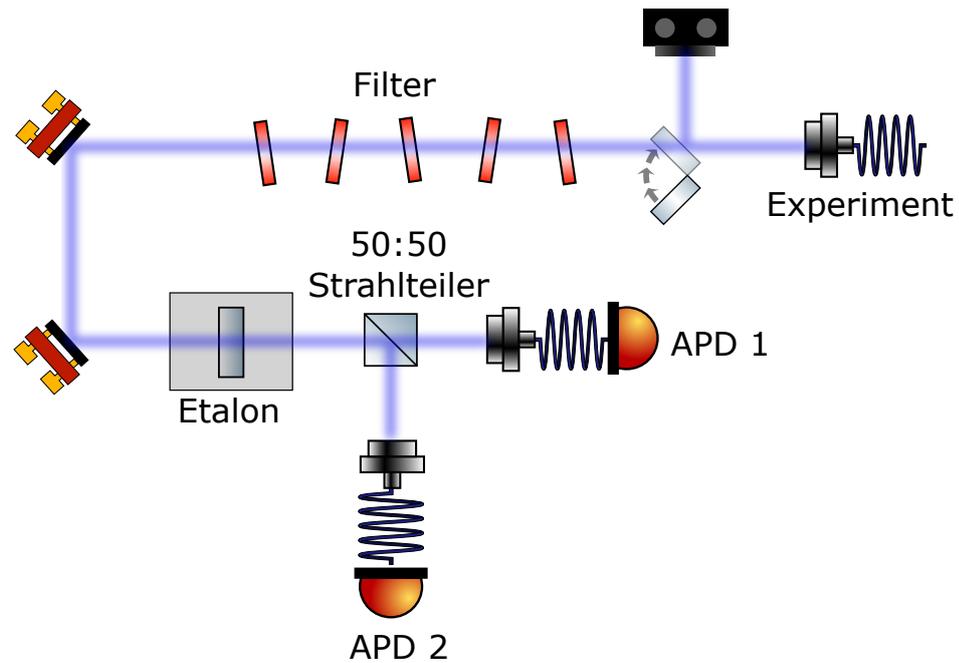


Abbildung 9.1: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Filterung und Detektion der im Experiment erzeugten Photonen. Die Photonen werden vom Experiment kommend über eine Multimodefaser in die Detektionbox eingekoppelt. Über einen Klappspiegel kann der Strahl auf eine Photodiode umgelenkt werden, um während dem Experiment über eine Feedbackschleife die Faserkopplung zu optimieren. Die fünf Dünnschicht-Filter und das temperaturstabilisierte Etalon dienen der Filterung zwischen erzeugten blauen Photonen und dem Hintergrund durch den ebenfalls blauen Anregungslaser. Die Photonen werden über einen 50:50 Strahlteiler aufgeteilt und auf den beiden Einzelphotonenzählern detektiert. Der Messaufbau stellt somit ein Hanbury Brown-Twiss Interferometer dar.

# **Teil III**

## **Experimentelle Untersuchung**



# 10 Vorbereitende Justageschritte

Um im experimentellen Aufbau letztendlich Einzelphotonen und deren Statistik messen zu können, muss zunächst das FWM-Signal also die Anzahl der durch den FWM-Prozess emittierten und schließlich detektierten Photonen, optimiert werden. Die nachfolgenden Abschnitte sollen daher diesen Optimierungsprozess illustrieren.

## 10.1 Experimenteller Ablauf

Zur Erzeugung der 420 nm Photonen wird eine gepulster FWM-Kreis verwendet, siehe Abschnitt 5. Die Abfolge der Laserpulse erfolgt analog Abbildung 10.1. Zu Beginn der Sequenz wird ein 1,6 ns langer LIAD-Puls auf die Zelle geschickt. Dieser offresonante Laserpuls mit einer Wellenlänge von 532 nm löst Rubidiumatome von der Zellwand und erhöht somit die optische Dichte für den Übergang  $^{85}\text{Rb } |5S_{1/2}\rangle$  nach  $|6P_{1/2}\rangle$  während dem FWM-Kreislauf. Dieser Effekt wird als LIAD-Effekt (light induced atomic desorption) beschrieben. Für eine detailliertere Beschreibung sei hier auf die Arbeit von Felix Mounstilis [15] und [7] verwiesen. Wie in Abbildung 10.1 zu sehen folgen unmittelbar nach dem LIAD-Puls die Pulse der drei Laser für den FWM-Prozess mit einer Länge von ca. 10 ns. Da die Atome sich bewegen ( $\tilde{v} \approx 300$  m/s), liegt die so genannte Transitzeit in der Größenordnung einer Nanosekunde, bevor sie den nur  $1 \mu\text{m}$  großen Fokus verlassen. Die Pulse sind zwar wesentlich länger, die gemessenen Events können jedoch nachträglich so selektiert werden, als würden Pulse mit einer Länge von 1 ns verwendet werden. Experimentell ist auch die Verwendung von 1 ns langen Pulsen möglich. Da das FWM-Signal mit so kurzen Pulsen jedoch wesentlich schwieriger zu optimieren ist, werden für den Optimierungsprozess längere Pulse verwendet. Um im Anregungsschema eine Besetzungsinversion zu erzeugen, müssen die Anregungspulse möglichst einem  $\pi$ -Puls entsprechen. Die Rabi-Frequenzen aller Übergänge liegen daher in der Größenordnung von 1 GHz.

## 10.2 Zellpositionierung im Fokus

Um die Auswirkungen der Rydbergblockade nutzen zu können, muss die Zelle präzise positioniert werden, sodass sich eine Stelle mit entsprechender Zelldicke exakt im Fokus des ersten Anregungslasers befindet. Für die Positionierung senkrecht zum Strahl wird die Dicke dafür über die in Kapitel 7.2 beschriebene Messung bestimmt. Für die Positionierung der Zelle im Fokus wird eine Sättigungsspektroskopie verwendet. Für einen Laser

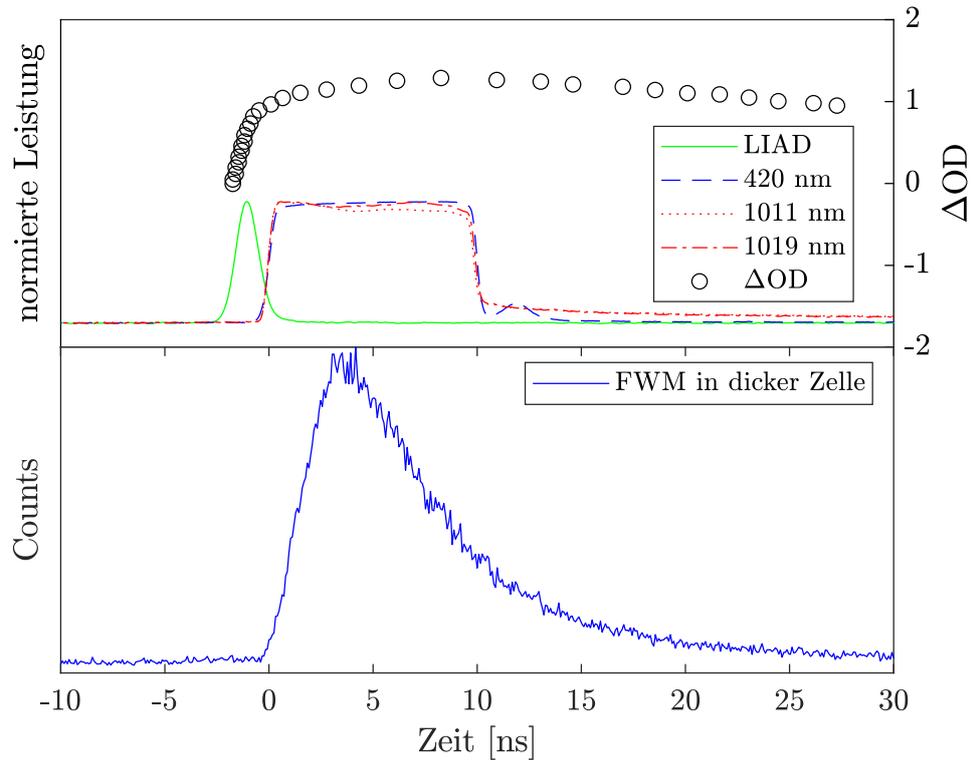


Abbildung 10.1: Im Experiment verwendete Pulssequenz. Der LIAD-Puls sorgt dabei für eine Erhöhung der optischen Dichte kurz vor dem eigentlichen FWM-Prozess. Die hier aufgetragene  $\Delta OD$  entspricht keiner realen Messung, sondern soll vielmehr den LIAD-Effekt illustrieren. Die An- und Abregungspulse haben hier eine Länge von etwa 10 ns da hier das Signal einfacher gefunden und optimiert werden kann. Die Pulslänge kann jedoch später auf 1 ns verkürzt werden. Das hier aufgezeigt FWM-Signal wurde in einer Zelldicke von ca.  $5 \mu\text{m}$  und bei einer Reservoirtemperatur von  $190^\circ\text{C}$  gemessen.

dessen Intensität im Fokus größer als die Sättigungsintensität ist, nimmt die Absorption im Fokus ein Minimum an. Für ein dauerhaft getriebenes System aus Atomen können sich, für große Zeiten, maximal 50% der Atome im angeregten Zustand befinden. Da für diesen Grenzfall Absorption und spontane Emission mit gleicher Wahrscheinlichkeit auftreten, kommt es zu einem Sättigungseffekt. Wird die Zelle für eine Laserintensität im Bereich der Sättigungsintensität ( $I_{\text{sat}} = 1,65 \text{ mW/cm}^2$  für die D2 Linie in Rubidium [16]), parallel zum Strahl durch den Fokus bewegt, sinkt die Absorption daher auf dieses Minimum, bevor sie nach Durchlaufen des Fokuspunktes wieder steigt. Durch eine solche Messung kann die Zelle genau im Fokus positioniert werden. Ein Nachteil der Methode ist, dass diese Kalibrierung immer nur vor einer Messung durchgeführt werden kann. Für die Sättigungsspektroskopie muss der Laser über das atomare Spektrum scannen.

Da die Laser für das Experiment frequenzstabilisiert werden müssen, ist die Fokusbildung nur im Vorfeld möglich. Im resonanten Fall ist für eine solche Messung der Kontrast zu gering.

# 11 Messergebnisse mit dem vorhandenen Aufbau

Nach erfolgreicher Positionierung der Zelle können die Laser gelockt und die Messung gestartet werden. Da für den Bereich der dünnen Zelle ( $\leq 1 \mu\text{m}$ ) nur ein sehr schwaches Signal erwartet wird, bietet es sich an, zunächst in einem dickeren Zellbereich zu messen und in diesem Regime das FWM-Signal zu optimieren. Das größere Zellvolumen sorgt zwar für ein verstärktes FWM-Signal an sich; allerdings kann hier der Effekt der Rydbergblockade nicht ausgenutzt werden, sodass hier keine sinnvolle Korrelationsmessung durchgeführt werden kann. Abbildung 11.1 zeigt eine typische Messung des FWM-Signals im dicken Zellbereich der Wedge-Zelle. Für eine solche Messung werden über einen Zeitraum  $t$  die detektierten Klicks auf den beiden Einzelphotonenzählern des Hanbury-Brown-Twiss Interferometers gezählt. Da die emittierten Photonen im Experiment über eine Singlemodefaser in das Interferometer eingekoppelt werden, hängt die Effizienz der Detektion sensibel von der Kopplung der Faser ab. Diese Kopplung muss im Experiment daher regelmäßig optimiert werden. Dazu wird zwischen den Messintervallen die Position der hinteren Linse hoher numerischer Apertur über eine Feedbackschleife so angepasst, dass die Kopplung in die Detection-Box optimiert wird. Die einzelnen Zeitintervalle können so später zu einer Gesamtmessung zusammengefügt werden, ohne das Signal während der Messung aufgrund verschlechterter Kopplung zu verlieren. Da die emittierten Photonen und der erste Anregungslaser bezüglich ihrer Wellenlänge sehr nahe beieinander liegen, ist trotz Filter eine Hintergrundmessung nötig. Nur so kann verifiziert werden, dass nicht nur die Resttransmission des Anregungslasers gemessen wird. Für die Hintergrundmessung werden bei jedem zweiten Messintervall die beiden Infrarotlaser geblockt. Ein typischer Zeitraum für eine solche Messung liegt im Bereich von 20 bis 60 Minuten, unterteilt in fünfminütige Intervalle. Das Signallevel kann zusätzlich über eine Erhöhung der Reservoir-Temperatur verbessert werden. Wie in Abbildung 11.2 erkennbar, nimmt die Photonenausbeute für steigende Reservoir-Temperatur zu. Da die Teilchenzahl berechnet über das ideale Gasgesetz  $pV = Nk_{\text{B}}T$  und Gleichung (4.1b) mit der Temperatur zunimmt, beteiligen sich im Bereich der dicken Zelle, mehr Atome am FWM-Prozess. Entsprechend steigt die Zahl der emittierten Photonen. Die Optimierung des Signals über die Temperatur ist jedoch nur bedingt möglich, da bei zu hohen Temperaturen sowohl die Linsen als auch die Zelle selbst Schaden nehmen. Darüber hinaus wird die Messanordnung mit steigender Temperatur mechanisch instabiler, was thermische Drifts hervorruft. Die Auswirkung von konstanter Hitzeeinwirkung auf die Zelle, über einen Zeitraum von einigen Wochen ist in Abbildung 11.3 aufgezeigt. Durch die

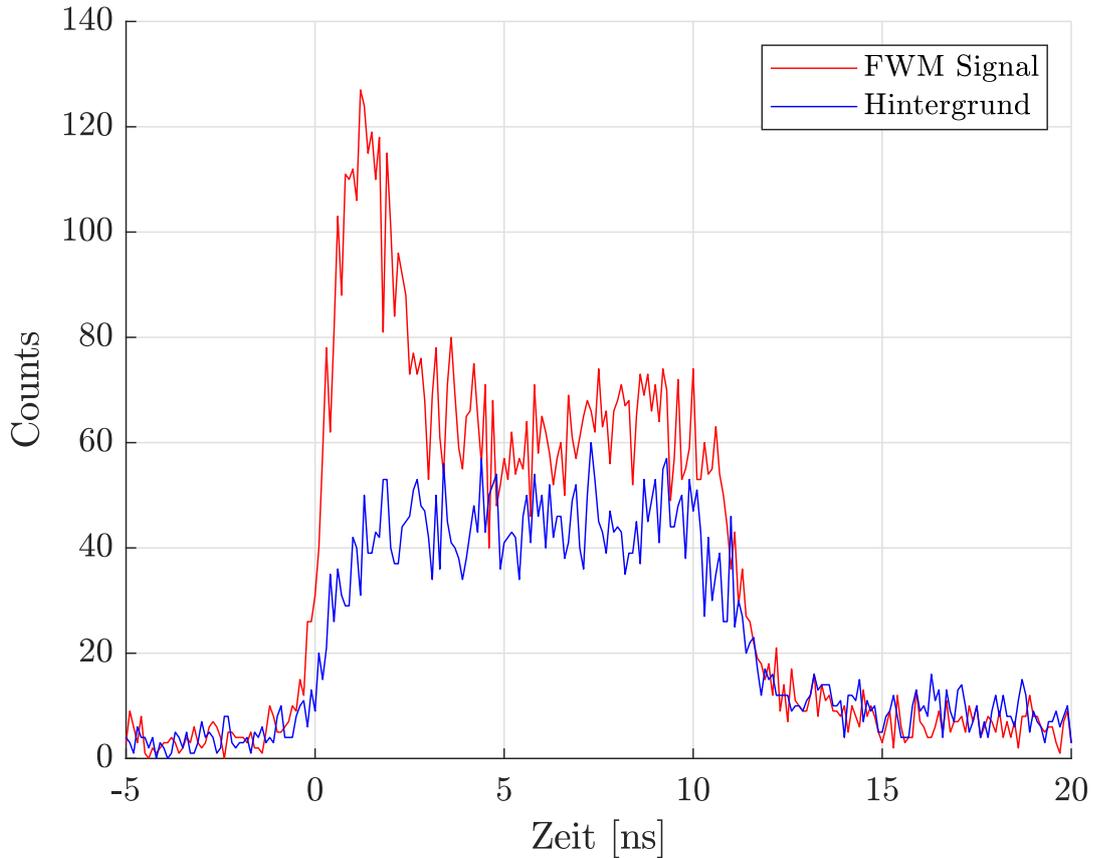


Abbildung 11.1: FWM-Signal aufgenommen in einer dicken Zelle ( $> 5 \mu\text{m}$ ) bei einer Messdauer von 5 Minuten.

Hitzeinwirkung wird die Zelle zunehmend braun. Unklar ist ob hier die Schutzschicht aus Saphir zerstört wird und für die Verfärbung sorgt, oder ob es sich um eine chemische Reaktion zwischen dem Glas und dem Rubidium handelt. Die Degradation der Zelle sorgt in jedem Fall für eine stetig abnehmende Transmission. Die Zelle wird damit unbrauchbar und hat somit eine endliche Lebensdauer. Aus Abbildung 11.3 ist ersichtlich, dass die Zelle in dem Bereich transparent bleibt, in dem die Saphir-Beschichtung intakt ist. Um das Optimierungspotential des in Abbildung 11.1 dargestellten FWM-Signal abzuschätzen dient nachfolgende Rechnung. Für eine 20 minütige Messung bei einer Pulsrate von 50 kHz ergibt sich eine Anzahl  $n_P$  an Pulsen von

$$n_P = 50000 \text{ 1/s} \cdot 60 \text{ s} \cdot 20 = 6 \cdot 10^7 \quad (11.1)$$

Pulsen. Werden die Counts aus der Messung innerhalb des 10 ns Zeitfensters in dem die Pulse wirken abzüglich der Hintergrundcounts aufsummiert, ergibt sich eine Anzahl von ca. 4000 Events. Dementsprechend führt nur jeder 1500ste Puls zu einem detektierten Photon. Diese sehr geringe Effizienz ist multifaktoriell bedingt und soll in einem

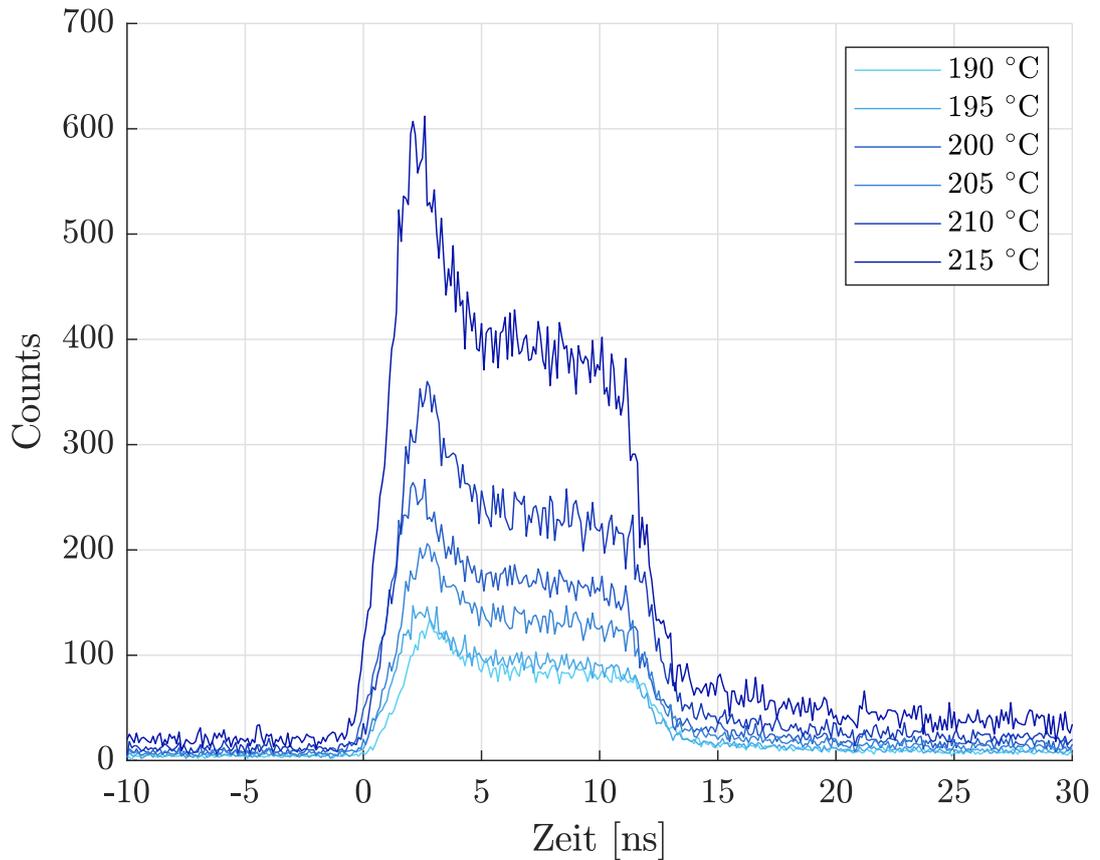


Abbildung 11.2: FWM-Signal aufgenommen für je 5 Minuten in einer dicken Zelle für verschiedene Reservoir-Temperaturen von 190 bis 215 °C.

späteren Abschnitt genauer erörtert werden. Die trivialste Methode um die Anzahl an detektierten Photonen zu maximieren, liegt zunächst darin die Messdauer zu erhöhen. Wie bereits erläutert muss für eine Langzeitmessung in regelmäßigen Abständen die Faser zum Detection-Setup über Positionierung der hinteren Linse hoher numerischer Apertur nachgekoppelt werden. Daher werden immer kürzere Zeitintervalle gemessen und erst in der Auswertung zusammenaddiert. Werden jedoch die einzelnen Messungen separat betrachtet, wie in Abbildung 11.4 aufgezeigt, so ist eine deutliche Schwankung des FWM-Signals zu beobachten. Diese Schwankung lässt sich damit erklären, dass die Zelle über die Zeitdauer der Messung langsam durch den Fokus driftet. Ursache dafür ist die Halterung der Zelle, welche durch eine einzelne Schraube am Reservoir sichergestellt wird. Die Halterung ist dadurch anfällig für thermische Schwankungen und Vibrationen. Durch die extrem kurze Rayleigh Länge reichen bereits kleinste Schwankungen aus um die Zelle gegenüber dem Fokus zu depositionieren. Um diesen Drifts entgegenzuwirken wurde eine neue Zellhalterung nach Abbildung 11.5 designed. Diese ermöglicht nicht nur eine stabilere Fixierung der Zelle selbst, sondern über die Verwendung neuer Heizpatro-



Abbildung 11.3: Die Zelle wird unter Einwirkung von Hitze (ca. 280 °C maximal) zunehmend braun, wodurch die Transmission abnimmt.

nen mit integriertem Temperatursensor auch eine präzisere Temperatursteuerung. Damit kann auch die Gefahr der Kondensation der Zellwände mit Rubidium und der Verschleiß der sonst separat verbauten Temperatursensoren minimiert werden. Zur weiteren Optimierung der Photonen ausbeute wird eine effizientere Pulssequenz implementiert. Die angepasste Sequenz ist in Abbildung 11.6 aufgezeigt. Der blaue Anregungslaser wird vier mal schneller, also mit 200 kHz gepulst. Die beiden infraroten Laser dagegen nur mit 100 kHz. Somit enthält nur jeder zweite Puls alle drei Laseranteile. Signal und Hintergrund können daher in der selben Messung aufgenommen werden. Somit kann das Verhältnis zwischen Signal und Hintergrund, in Echtzeit, zur Optimierung der Zellposition, der Filterung und des Laserdetunings herangezogen werden. Der LIAD-Laser wird mit 50 kHz gepulst. Somit kommt unmittelbar vor jedem vierten Puls ein zusätzlicher LIAD-Puls, um die atomare Dichte zu erhöhen. Dadurch wird auch direkt sichtbar wie groß der Vorteil durch den LIAD-Effekt ist. Eine typische Messung mit der abgewandelten Pulssequenz ist in Abbildung 11.7 zu sehen. Bei gleicher Messdauer zeigt sich eine deutliche Verbesserung des Signallevels um einen Faktor von ca. 10. Die beiden infraroten Laser könnten mit einer Frequenz von bis zu 1 MHz gepulst werden. Der limitierende Faktor in diesem System ist mit 200 kHz, die Pockelszelle, mit der der blaue Laser gepulst wird. An dieser Stelle sei nochmals hervorgehoben, dass die bisher gezeigten Messungen des FWM-Signals in Zelldicken von 50 – 200  $\mu\text{m}$  aufgenommen wurden. Die Daten können also nicht für eine sinnvolle Korrelationsmessung herangezogen werden. Es wird darüber hinaus erkennbar, dass die Anwesenheit des LIAD-Pulses nur einen eher vernachlässigbaren Effekt hat. Der absolute Beitrag bleibt unabhängig von der Zelldicke der selbe, siehe Abbildung 11.8. Für den Bereich der dünnen Zelle nimmt die Amplitude des FWM-Signals stetig ab, sodass der relative Anteil zunehmend an Bedeutung gewinnt

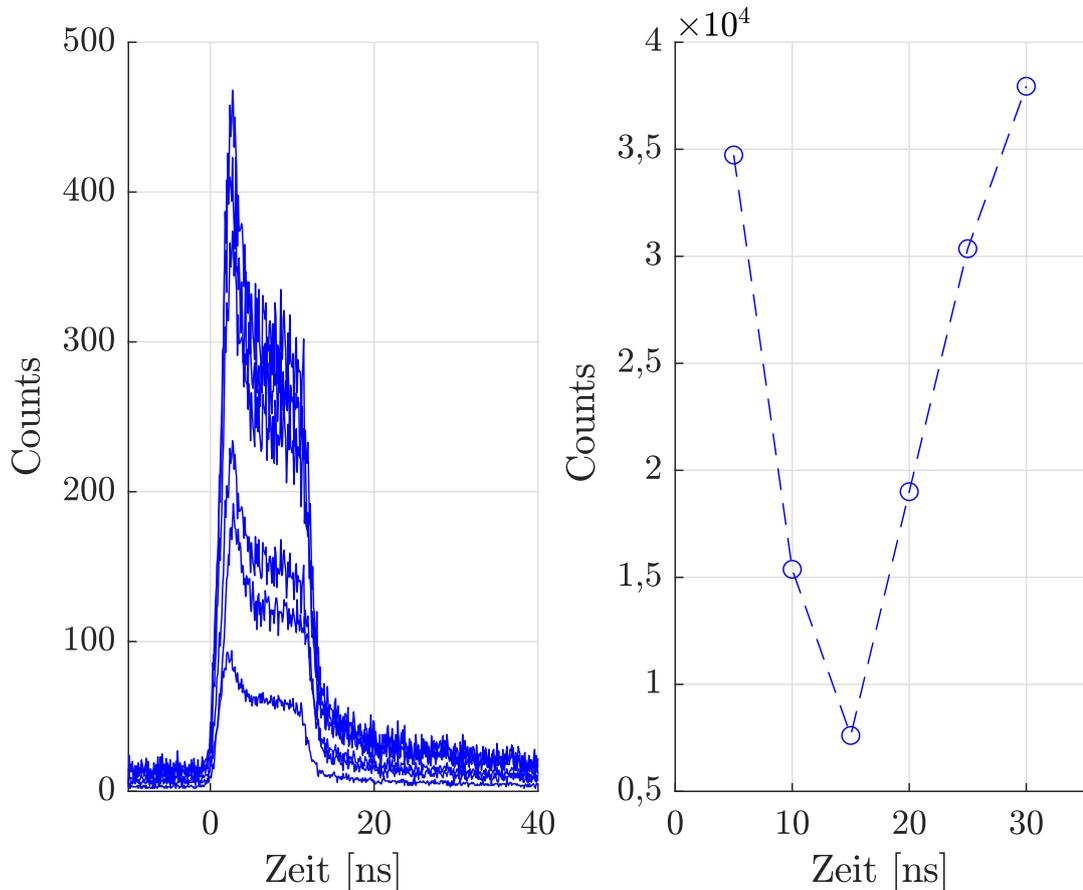


Abbildung 11.4: FWM-Signal aufgenommen in einer  $5 \mu\text{m}$  dicken Zelle und  $190^\circ\text{C}$  Reservoirtemperatur links. Die Messung ist unterteilt in fünfminütige Sequenzen. Rechts die aufsummierten Counts im  $10 \text{ ns}$  Zeitfenster mit subtrahiertem Hintergrund, aufgetragen über die Zeit. Es wird deutlich erkennbar, dass das Signallevel zeitlich stark variiert, was auf die Bewegung der Zelle im Fokus zurückzuführen ist.

um das Signal zu maximieren.

## 11.1 Messung für Zelldicke im Bereich der Rydbergblockade

Je dünner die Zelle, desto sensibler hängt das Experiment von der Positionierung der Zelle im Fokus des Anregungslasers ab. Die Zelle wird daher stückweise vertikal zum Strahl verschoben und für jeden Zwischenschritt zunächst wieder das FWM-Signal optimiert. Iterativ kann sich so der Zellposition genähert werden, in der die Zelldicke kleiner

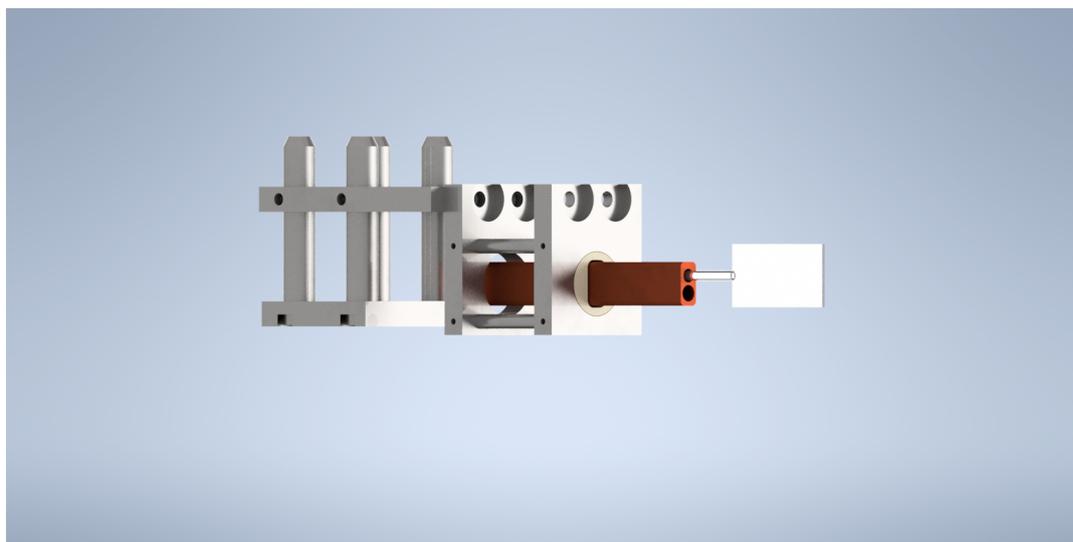


Abbildung 11.5: Die Abbildung zeigt die Konstruktion der überarbeiteten Zellhalterung. Mittels einer Adapterplatte können die vier Stangen auf der 6-Achsen-Stage montiert werden. Damit kann der L-förmige Überhang höhenverstellbar angebracht werden. Die Zelle selbst wird in einem Kupferquader mittels zwei Schrauben festgeklemmt. Der untere Einschub im Kupfer ist für eine Heizpatrone mit integriertem Temperatursensor vorgesehen. Der Kupferquader wird mit Hilfe eines Adapter aus PEEK im Überhang verschraubt.

als der Blockaderadius ist. Da hier der  $40S_{1/2}$  Rydbergzustand verwendet wird, ergibt sich nach Gleichung (3.3) ein Blockaderadius von  $r_B = 1,08 \mu\text{m}$ . Die Zelldicke kann über das in Abschnitt 7.2 beschriebene Interferenzmuster bestimmt werden, sodass der Arbeitsbereich bei einer Wellenlänge von 420 nm im Bereich der ersten beiden Newtonringe liegt. Abbildung 11.9 zeigt eine typische Messung für den Bereich der dünnen Zelle. Eine erneute Abschätzung der Effizienz zeigt, dass im Bereich der dünnen Zelle, lediglich jeder 25000 Puls zu einem detektierten Photon auf einer der Einzelphotonenzählern (kurz APD für Avalanche Photo Diode) führt. Die Faktoren, die zu dieser geringen Effizienz führen, werden im Abschnitt 12 erörtert. Obwohl hier zum Zeitpunkt dieser Arbeit keine weitere Verbesserung erzielt werden konnte, wurde ein Versuch zur Messung der Photonenstatistik unternommen.

## 11.2 Messung der Korrelationsfunktion der Photonen

Die Statistik der durch den FWM-Prozess erzeugten Photonen ist bestimmt, durch eine Intensitätskorrelation zweiter Ordnung, siehe Abschnitt 6. Im Experiment bedeutet dies die Korrelation der in beiden Armen des Hanbury Brown-Twiss Interferometer detektier-

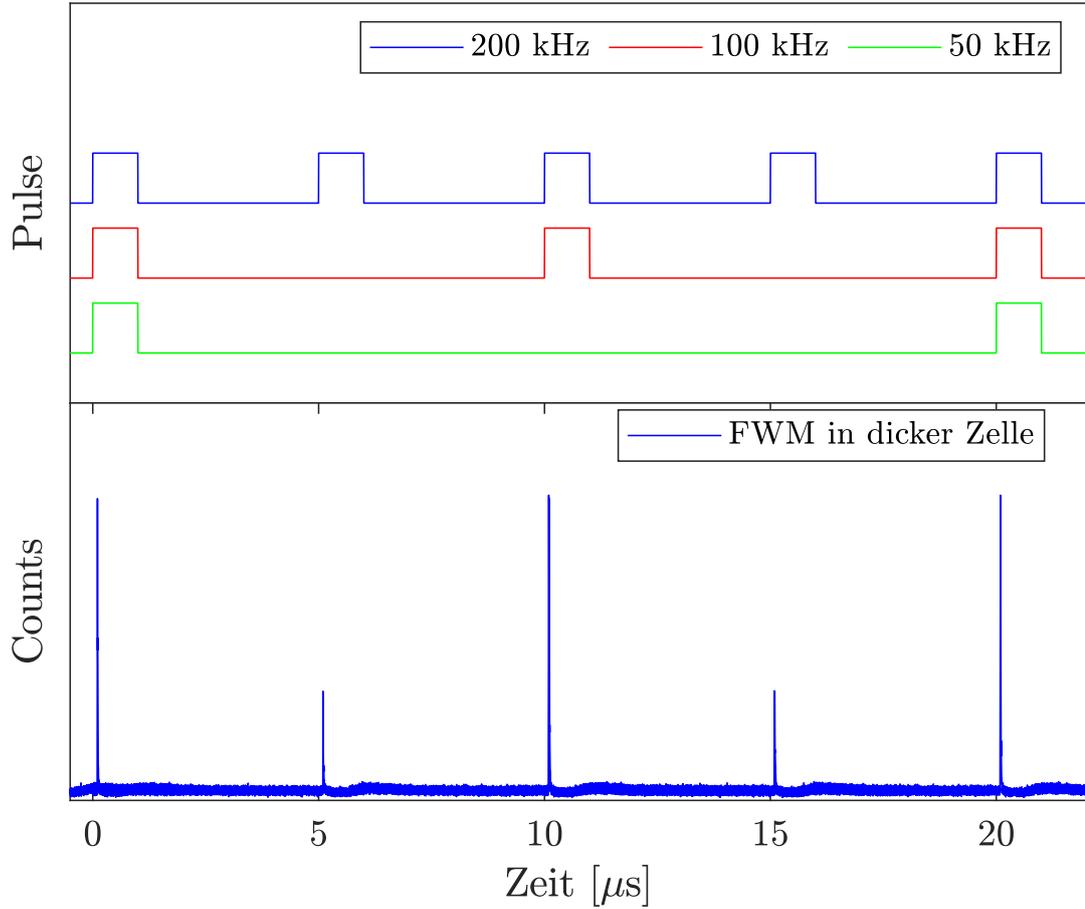


Abbildung 11.6: Angepasste Pulssequenz ermöglicht schnellere Messung und demnach mehr Signal pro Zeitintervall und mehr Stabilität gegenüber äußeren Einflüssen. Der blaue Laser wird mit 200 kHz, die infraroten Laser mit 100 kHz und der LIAD-Laser mit 50 kHz gepulst.

ten Photonen. Während der Messung detektieren die beiden APDs ( $i = 1, 2$ ) eine Reihe von Photonen  $N_i(t)$  in Abhängigkeit der Zeit  $t$ . Im Fall einer idealen Einzelphotonenquelle nimmt  $N_i(t)$  zu jedem Zeitpunkt die Werte 0 oder 1 an. 1 falls zum Zeitpunkt  $t$  ein Photon detektiert wurde, 0 falls kein Photon detektiert wurde. Wird die Messdauer in Intervalle  $T$  kleiner der Totzeit der APDs unterteilt, so können die Messevents innerhalb dieser Intervalle aufsummiert werden zu

$$N_i(t, T) = \sum_{t < t' < t+T} N_i(t'). \quad (11.2)$$

Da  $T$  kleiner als die Totzeit der APDs ist kann dann auch  $N_i(t, T)$  nur die Werte 0 oder 1 annehmen. Die Korrelation zwischen den beiden Interferometerarmen ergibt sich dann

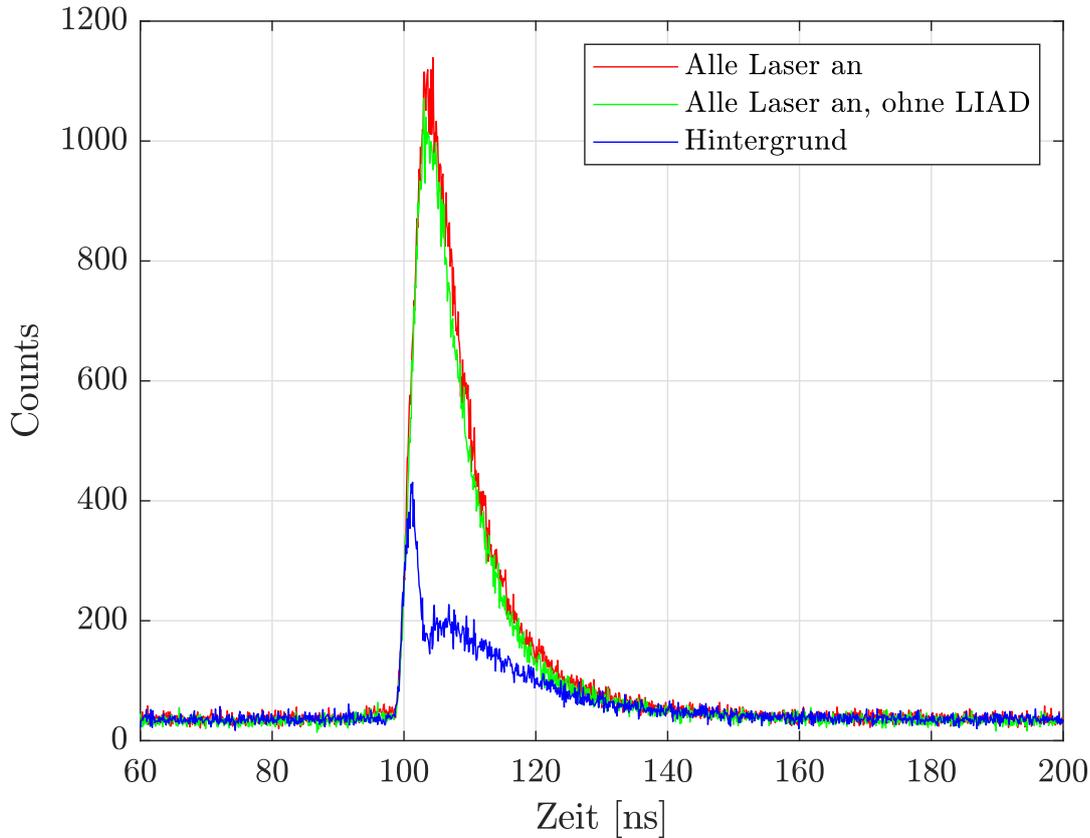


Abbildung 11.7: Typische Messung des FWM-Signals, nach Anpassung der Pulssequenz, gemessen in einer ca.  $3\ \mu\text{m}$  dicken Zelle bei  $190\ ^\circ\text{C}$  Reservoirtemperatur. Durch die schnellere Messung wird eine deutliche Verbesserung des Signallevels erreicht.

zu

$$c_{1,2}(\tau, t) = \int_{-\infty}^{\infty} N_1(t, T) N_2(t + \tau, T) dt. \quad (11.3)$$

$\tau$  bezeichnet dabei die Zeitdifferenz zwischen einem mit der ersten APD detektierten Photon relativ zu einem Event bei der zweiten APD.  $\tau = 0$  entspricht damit der Korrelation zwischen Photonen die durch den selben Puls erzeugt wurden. Um aus den im Experiment gemessenen Daten eine solche Korrelation zu berechnen, müssen die detektierten Photonen zunächst selektiert werden. Es werden nur die Photonen betrachtet, die mit dem FWM-Prozess assoziiert werden können. Im Experiment werden  $10\ \text{ns}$  lange Pulse verwendet. Aufgrund der Atombewegung in der heißen Zelle sind allerdings nur die innerhalb der ersten Nanosekunde erzeugten Photonen sinnvoll zu betrachten. Daher werden nachträglich nur die Photonen aus der ersten Nanosekunde für die Korrelationsanalyse verwendet (siehe Abbildung 11.9). Anhand der nachträglich selektierten Photonen kann dann die Korrelation nach Gleichung (11.3) berechnet werden. Ziel der

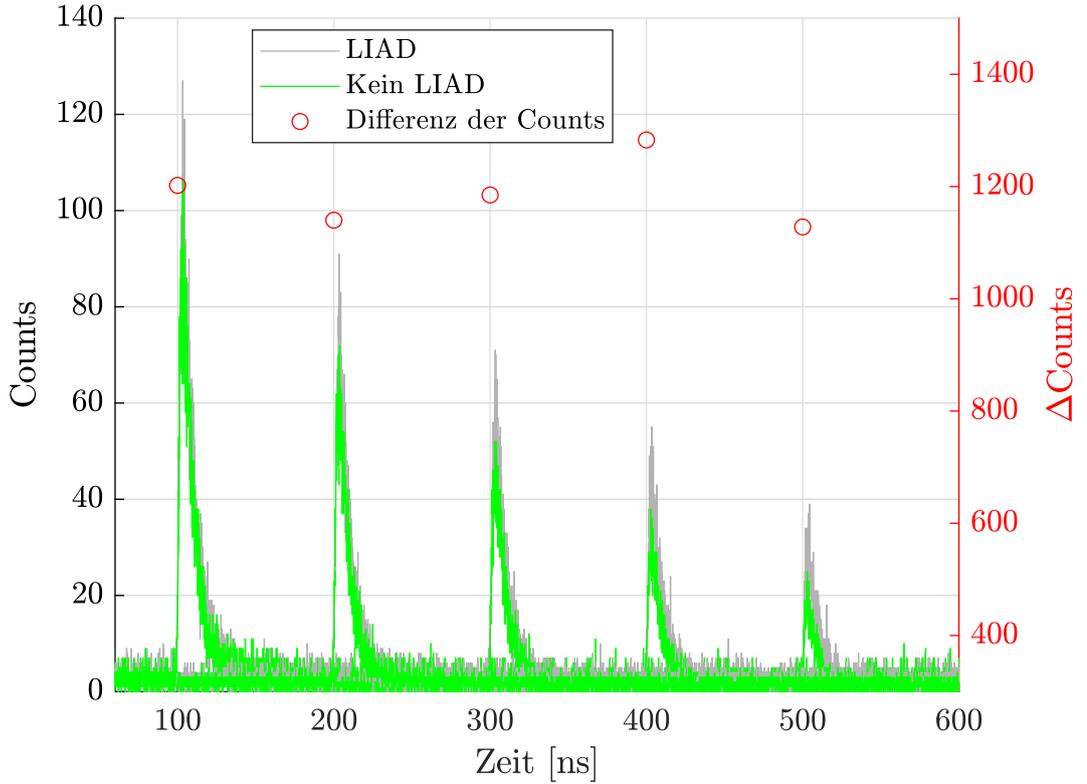


Abbildung 11.8: FWM-Signal mit und ohne LIAD Puls gemessen für verschiedene Zelldicken von  $4,2 \mu\text{m}$  bis  $2,5 \mu\text{m}$  in  $420 \text{ nm}$  Schritten. Jedes der fünf FWM-Signale korrespondiert mit einer der Zelldicken. Zusätzlich ist die Differenz der über das  $10 \text{ ns}$  Zeitfenster aufsummierten Counts für den Fall mit und ohne LIAD Puls in Rot aufgetragen. Diese erscheint unabhängig von der Zelldicke konstant. Der zusätzliche Benefit durch den LIAD Puls wird also im Fall einer dünnen Zelle (geringeres absolutes Signallevel) relevanter.

Korrelationsbetrachtung ist es letztlich den statistischen Charakter der Photonenquelle zu beschreiben. Dafür wird (siehe Abschnitt 6) die so genannte  $g^{(2)}$ -Korrelation herangezogen. Diese beschreibt anschaulich, wie sehr die Statistik von einer poissonischen Verteilung abweicht. Zum Erhalt der  $g^{(2)}$ -Korrelation muss die bisher berechnete Korrelation  $c_{1,2}(\tau, T)$  noch auf den Hintergrund normiert werden. Dieser kann hier als 1 angenommen werden, da keine zusätzliche Korrelation zwischen Photonen aus verschiedenen FWM-Zyklen zu erwarten ist. Dementsprechend folgt

$$g^{(2)}(\tau, T) = \frac{c_{1,2}(\tau, T)}{M_{1,2}(T)}, \quad (11.4)$$

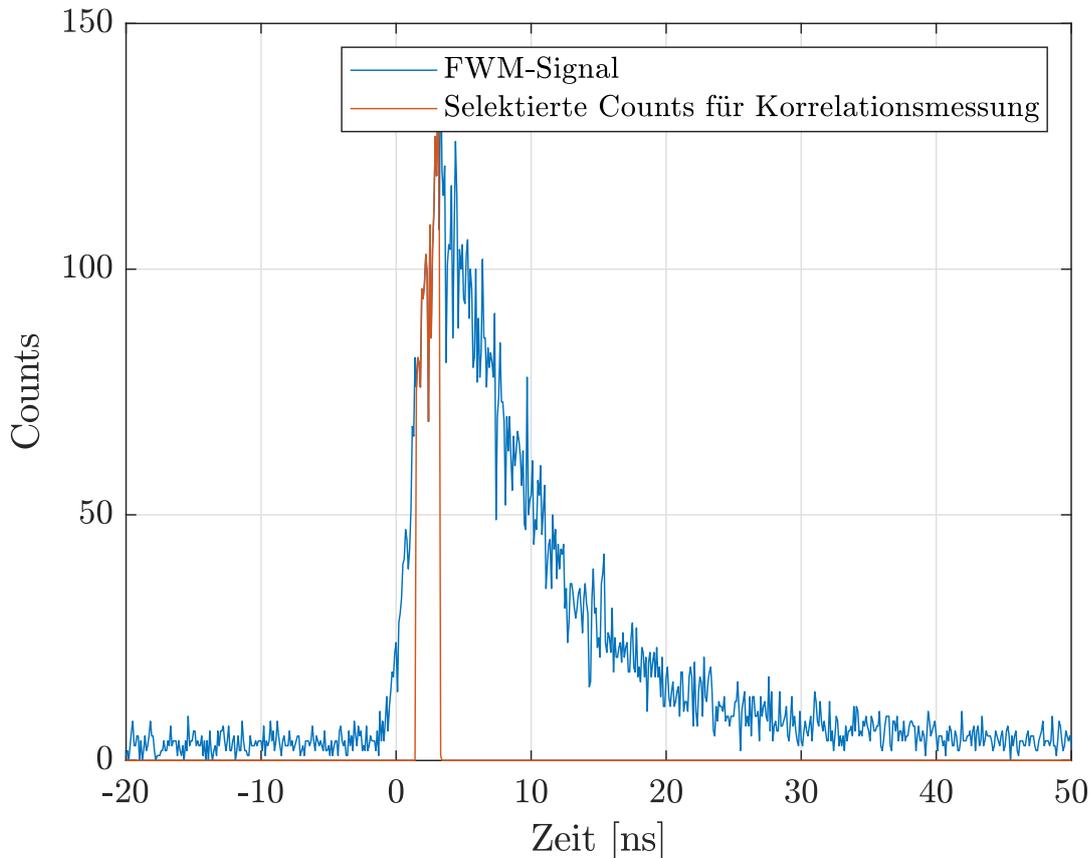


Abbildung 11.9: FWM-Signal gemessen in einer 420 nm dicken Zelle. Im Experiment wurden Anregungspulse mit einer Länge von 10 ns verwendet. Für die Auswertung der  $g^2$ -Korrelation werden daher nachträglich nur die Photonen selektiert, die innerhalb der ersten Nanosekunde detektiert wurden. Diese Selektion ist hier in rot dargestellt.

wobei  $M_{1,2}(T)$  dem Mittelwert von  $c_{1,2}(\tau \neq 0, T)$  entspricht. Die Ergebnisse einer solchen Messung sind in Abbildung 11.10 aufgezeigt. Für diese Korrelationsmessung wurden 177 fünfminütige Messungen zusammen ausgewertet. Für eine ideale Einzelphotonenquelle wäre  $g^{(2)}(\tau = 0) = 0$  zu erwarten. Im Experiment werden nie ausschließlich die durch den FWM-Prozess erzeugten Photonen detektiert, sodass eine Überlagerung mit einer klassischen Poissonverteilung erwartet wird. Dennoch sollte der nichtklassische Charakter durch Verringerung von  $g^{(2)}(\tau = 0) < 1$  sichtbar sein. Abbildung 11.10 zeigt hingegen keine solche nichtklassische Charakteristik, sondern eine reine Poissonverteilung. Dafür können verschiedene Ursachen verantwortlich sein. Zunächst muss in Betracht gezogen werden, dass die Messung in einem Bereich der Zelle aufgenommen wurde, in dem das Zellvolumen größer als der Rydbergblockaderadius ist. Für den FWM-Prozess selbst ist dies nicht ausschlaggebend. Allerdings kann in einer zu dicken Zelle der Blockadeeffekt

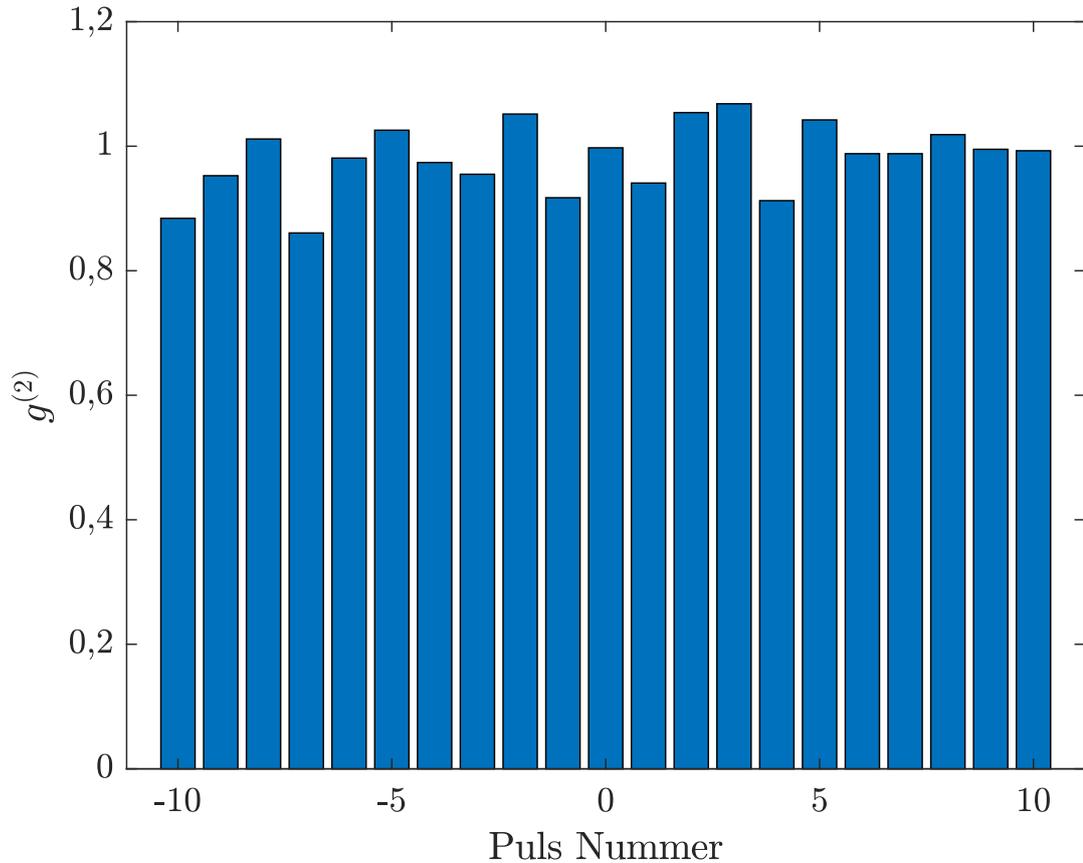


Abbildung 11.10: Die Abbildung zeigt die auf den Hintergrund normierte  $g^2$ -Korrelation der in einem dünnen Zellbereich detektierten Photonen.

nicht zur Unterdrückung einer Mehrfachanregung genutzt werden. Der Charakter eines Einzelphotonenemitters geht somit verloren. Die Zelldicke wurde über die in Abschnitt 7.2 beschriebene Messung zu ca  $0,42 \mu\text{m}$  bestimmt. Der Blockaderadius für den  $40S_{1/2}$  Rydbergzustand liegt bei  $1,08 \mu\text{m}$ . Das Volumen wäre somit deutlich kleiner. Allerdings ist es möglich, dass die Zelle im Verlauf der Messungen durch die Einwirkung von zu hohen Temperaturen beschädigt wurde. Es ist daher unklar ob die bestimmten Zelldicken auch während der Messungen weiterhin korrekt angenommen wurden. Aufgrund einer deutlichen Verfärbung, analog zu Abbildung 11.3, in allen relevanten Zellregionen, ist eine nachträgliche Messung der Zelldicke unter Verwendung der Newtonringe nicht mehr möglich. Des Weiteren kann eine unzureichende Filterung der emittierten  $420,3 \text{ nm}$  Photonen von der Resttransmission des  $421,7 \text{ nm}$  Anregungslasers die Korrelation verfälschen. Allerdings erscheint das Signal-Hintergrundverhältnis der Messung (siehe Abbildung 11.9) hinreichend, um eine mögliche Charakteristik eines Einzelphotonenemitters zu messen. Aus den gemessenen Korrelationsdaten kann die Natur eines solchen Einzelphotonenemitters nicht belegt werden. Die genaue Ursache dafür kann

jedoch an dieser Stelle nicht abschließend geklärt werden. Um den Faktor Zelldicke ausschließen zu können, wurde eine solche Messung in einer noch dünneren Zelle wiederholt. Für diesen Zellbereich verringert sich allerdings die Messeffizienz so drastisch, dass selbst nach einer Messdauer von über 20 Stunden keine Korrelationsmessung möglich war. Im Experiment wird mit einer Repititionsrate von 100 kHz gemessen. Im Optimalfall würde sich dadurch eine Photonenrate von 100 kHz ergeben. Im relevanten Zeitbereich werden bei einer Messdauer von fünf Minuten jedoch nur ca. 1200 Photonen detektiert. Dies entspricht einer Photonenrate von 4 Hz und demnach einer Gesamteffizienz von  $\eta = 0,00004$ . im Vergleich dazu lag die Effizienz beim Experiment von F. Ripka bei ca. 0,03. Für die Korrelationsmessung geht  $\eta$  sogar quadratisch ein. Demnach folgt eine Detektionsrate von  $100 \text{ kHz} \cdot \eta^2 = 160 \mu\text{Hz}$ . Dies entspricht etwa einem Korrelationsevent alle zwei Stunden. Es muss daher zunächst die Ursache für diese Effizienz geklärt werden. Daher werden im folgenden Abschnitt alle diesbezüglichen Faktoren aufgelistet und erörtert.

# 12 Ursachensuche für geringe Detektionseffizienz

Zur Ursachenklärung der geringen Detektionseffizienz ist in Tabelle 12.1 eine Übersicht über die Faktoren, die zu dieser Effizienz beitragen aufgezeigt. Die sich aus dieser Betrachtung ergebende Effizienz ist sogar um ein Fünffaches schlechter, als die aus den Messdaten abgeschätzte Effizienz. Das kann jedoch damit begründet werden, dass im Experiment auch Photonen gemessen werden, die nicht aus dem kohärenten Prozess stammen. Die aufgezeigten Faktoren lassen sich in vier Kategorien unterscheiden, in die Tabelle 12.1 unterteilt ist.

## 12.1 Optische Komponenten

Zur ersten Kategorie zählen die im Versuchsaufbau verwendeten optischen Komponenten, wie Spiegel, Strahlteiler und Fasern. Hier werden herkömmliche Komponenten verwendet. Diese weisen angemessen hohe Effizienzen auf. Dennoch ergibt sich in Summe eine Minderung der Effizienz von ca. 50%, die hauptsächlich durch die Kopplungseffizienz der verwendeten Singlemodefaser verursacht wird.

## 12.2 Filterung

In die zweite Kategorie lassen sich die Komponenten zur Filterung zwischen den im Experiment erzeugten Photonen und dem Hintergrund durch die Anregungslaser einteilen. Dazu zählen das Etalon, der Dichroische Spiegel und die Thin-Film-Filter. Diese verringern die Effizienz in Summe zwar auf ca. 20%, sind aber notwendig, da die Messung sonst im Hintergrund verschwindet. Zu Beginn dieser Arbeit sollte ein Beschichtungs-Design für Filter mit verbesserter Effizienz erarbeitet werden. Die Berechnung eines solchen Filter-Designs ist mit der Essential Macleod Software möglich. Für die Herstellung eines Thin-Film-Filters werden abwechselnd sehr dünne Lagen (bis Nanometer Regime) verschiedener Materialien mit unterschiedlichen Brechungsindizes, auf ein Substrat beschichtet. Aufgrund von Interferenzeffekten zwischen den Schichten und dem alternierenden Brechungsindex, ergibt sich so ein für das Schichtsystem charakteristisches Transmissions- und Reflektionsverhalten. Um einen Filter in Kooperation mit dem 4. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart (PI4) herzustellen, werden die

Tabelle 12.1: Die Tabelle zeigt eine Übersicht der zur Effizienz des Experiments beitragenden Faktoren.

Faktor	Vorab angenommene Effizienz	Korrigierte Effizienz	Basierend auf
Neue Zelle Transmission	92%	92%	Messung
Alte Zelle Transmission	45%	45%	Messung
50:50 Strahlteiler im Hanbury Brown-Twiss Interferometer	98%	98%	Datenblatt
Thorlabsspiegel E02 Effizienz	$(99,5\%)^5 = 97,5\%$	97,5%	Datenblatt
Single-Mode-Faser zur Detektionbox	50%	50%	Messung
Dichroischer Spiegel als Filter	97%	97%	Datenblatt
Etalon als Filter	30%	30%	Datenblatt, Messung
Vier Thin-Film-Filter	60%	60%	Messung
Multi-Mode-Fasern zu den APDs	90% von Fasern 65% von SPCM	58%	Messung, Datenblatt
Quanteneffizienz der SPCM	4%	4%	gemessen von Simon Kopenhagen [17]
Effizienz den Zielzustand anzuregen	$< 10\%$	$< 10\%$	Simulationen Forschungszentrum Jülich
Photonen emittieren ungerichtet in $4\pi$ , können nur mit $NA = 0,62$ kollimiert werden	100%	10%	$\Omega = 4\pi$ $\sin^2(\alpha/2) = 0,107\pi\text{sr}$ mit $\alpha = \arcsin(NA)$
Branchingratio	nicht berücksichtigt	318 kHz anteilig an 1,35 MHz $\cong 23,5\%$	Betrachtung Levelschema
Ausbreitung nicht gaußförmiger Mode	?	?	
<b>Gesamteffizienz</b>	0,0001795	0,0000043	

Materialien Siliziumdioxid ( $\text{SiO}_2$ ) und Tantalpentoxid ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) verwendet. Als Substrat werden Glassubstrate aus UV-Fused Silica von Thorlabs verwendet. Mittels der Software kann dann ein Schichtsystem errechnet und unter bestimmten Zielvorgaben und Parametern optimiert werden. In diesem Fall wird ein Schichtsystem gesucht, für welches die Transmission bei einer Wellenlänge von 420,3 nm ein Maximum und bei 421,7 nm ein Minimum annimmt. Gesucht wird also ein so genannter Edge-Filter mit einer sehr steilen Kante. Sowohl für die theoretische Berechnung, als auch für die Herstellung eines Schichtsystems sind einige Limitierungen zu beachten. Aus der Fourieranalyse folgt als Bedingung für eine möglichst steile Filterkante, ein System mit möglichst vielen, möglichst dünnen Schichten. Für eine genauere Betrachtung sei an dieser Stelle auf die Literatur verwiesen [18]. Auf der Seite der Theorie können die Anforderungen an das Schichtsystem also für immer dünner werdende Einzelschichten besser erfüllt werden. Da im Anwendungsfall nur endliche Schichtdicken hergestellt werden können, müssen bei der Optimierung zusätzlich die Grenzen des Herstellungsprozesses mit einbezogen werden. Mit dem am PI4 verwendeten Sputtering-Verfahren sind Schichtdicken im Bereich von 40 nm möglich. Dünner Lagen können zwar theoretisch beschichtet werden, allerdings mit einer erhöhten Ungenauigkeit. Als weitere Anforderung folgt aus dem Herstellungsprozess eine maximale Gesamtdicke im Bereich von 5 – 10  $\mu\text{m}$ . Demnach ergibt sich auch eine maximale Anzahl an Schichten, was neben der Schichtdicke die finale Filterperformance limitiert. Unter Berücksichtigung dieser Anforderungen und Zielparameter kann mit der Software dann ein Schichtsystem errechnet werden. Das Transmissionsverhalten für dieses System ist in Abbildung 12.1 aufgezeigt. Für dieses Schichtsystem wurde das Limit für die minimale Schichtdicke auf 60 nm festgesetzt. Die Gesamtdicke des Systems beträgt 6  $\mu\text{m}$ . Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Versuch zur Herstellung dieses Schichtsystems unternommen, allerdings ohne Erfolg. Dies kann wie folgt begründet werden. Während dem Beschichtungsprozess wird permanent das Transmissionsverhalten gemessen. Somit erhält die Maschine jeder Zeit die Information über die Dicke der aktuellen Lage und kann so rechtzeitig zwischen den Materialien wechseln. Werden jedoch sehr viele sehr dünne Lagen beschichtet, ändert sich das Transmissionsverhalten nur minimal. Dadurch steigt die Ungenauigkeit des Verfahrens. Während eine kleine Abweichung bei einer einzelnen Schicht vernachlässigt werden kann, führt eine solche Ungenauigkeit bei einem solch komplizierten, vielschichtigen System zu extremen Abweichungen der Filterperformance. In diesem speziellen Fall konnte der Beschichtungsprozess daher nicht vollendet werden. Da ein Design mit einer größeren Schichtdicke keine Verbesserung gegenüber den kommerziellen Thin-Film-Filtern erzielen würde, wurde von einem zweiten Beschichtungsversuch abgesehen. Die Lösung zur Verbesserung der Filterperformance wäre im Fall der hier diskutierten Anwendung, die Verwendung eines so genannten Volume-Bragg-Gratings. Bei einem solchen Grating wird die Interferenz zweier schmalbandiger ultravioletter Laser genutzt, um in einem photosensitiven Material eine Modulation des Brechungsindex einzubrennen. Mit dieser Methode können sehr viele und sehr dünne Schichten unterschiedlicher Brechungsindizes erzeugt werden. Ein solches Volume-Bragg-Grating bewegt sich jedoch außerhalb der finanziellen

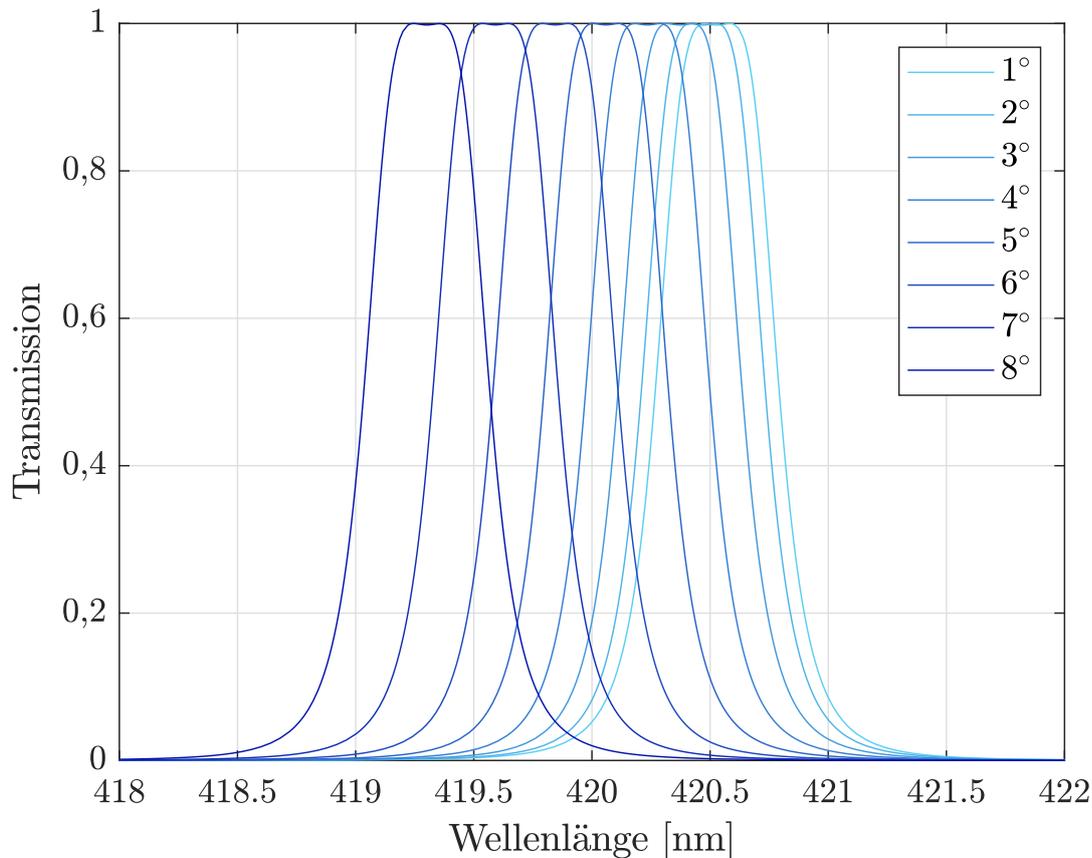


Abbildung 12.1: Transmissionsverhalten des mit Essential Macleod errechneten Schichtsystem bestehend aus ( $\text{SiO}_2$ ) und ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ). Die unterschiedlichen Kurven korrespondieren mit verschiedenen Einfallswinkeln des Lichts. Der Filter kann also über Verkippung nachträglich justiert werden.

und zeitlichen Möglichkeiten dieser Arbeit. Daher wurden im weiteren Verlauf dieser Arbeit weiterhin die kommerziellen Thin-Film-Filter verwendet.

## 12.3 Photonendetektion

In die dritte Kategorie werden die Komponenten eingeteilt, die unmittelbar mit der Photonendetektion assoziiert werden können. Im Experiment werden fasergekoppelte Einzelphotonenzähler der Firma Laser Components verwendet. Den Messergebnissen von Simon Koppenhöfer [17] zufolge ergibt sich damit eine Effizienz von lediglich 4%. Um diesen Faktor zu verbessern wurden neue Detektoren der Firma Hamamatsu gekauft. Diese besitzen zum Einen einen Chip mit verbesserter Effizienz. Zum anderen werden die neuen Module nicht über eine Faser gekoppelt. Die Justage wird dadurch deutlich schwerer, der zusätzlich Verlust durch die Faser entfällt jedoch. Laut Datenblatt wird eine

Effizienz von rund 70% angegeben, im Labor wurde eine deutlich geringere Effizienz von rund 40% gemessen. Dies entspricht jedoch einer zehnfach besseren Effizienz als zuvor. Aufgrund der langen Lieferzeit der Module wurden die Messergebnisse dieser Arbeit jedoch fast ausschließlich mit den Modulen der Firma Laser Components aufgenommen. Im Zeitraum zwischen Lieferung der neuen Detektoren und der Beendigung dieser Arbeit war dann keine intakte Zelle mehr verfügbar.

### 12.4 Physikalische Ursachen

Zur letzten Kategorie zählen dann die Faktoren, die aus der physikalischen Natur der verwendeten Rubidiumatome abgeleitet werden können. Die Simulationsergebnisse von Jan Reuter [19] am Forschungszentrum Jülich zeigen, dass für das hier verwendete Anregungsschema, im Gegensatz zu dem von F. Ripka [6] verwendeten Schema, keine kollektive Emission der Photonen in eine bestimmte Vorzugsrichtung besteht. Vielmehr werden die erzeugten Photonen über den gesamten Raumwinkel, also in  $4\pi$  emittiert. Mit Hilfe der verwendeten numerischen Apparatur von  $NA = 0,62$  können daher nur rund 10% der erzeugten Photonen überhaupt eingesammelt werden. Darüber hinaus zeigen die Simulationen, dass auch der gewünschte Zielzustand, von welchem aus die Photonemission stattfinden soll, nur mit einer Effizienz von unter 10% angeregt werden kann. Die Verwendung kürzerer Anregungspulse würde eine Verbesserung für diesen Faktor bedeuten. Unter den verfügbaren experimentellen Mitteln sind jedoch stand jetzt, keine Anregungspulse kürzer einer Nanosekunde möglich. Der als Branchingratio bezeichnete Faktor muss hier mit besonderer Sorgfalt diskutiert werden, da sich dieser in doppelter Hinsicht auswirkt. Das Branchingratio beschreibt das Verhältnis der Wahrscheinlichkeiten der verschiedenen, möglichen Übergänge eines Zustandes. Durch das in Abbildung 12.2 aufgezeigt Anregungsschema wird klar, dass der angeregte  $6P_{3/2}$  Zustand nicht ausschließlich direkt in den Grundzustand zerfällt. Der Zerfall über den  $5P_{3/2}$  oder den  $5P_{1/2}$  Zustand läuft mit 1,032 MHz deutlich schneller ab. Somit wird die Emission eines Photons mit Wellenlänge 780 nm oder 795 nm deutlich wahrscheinlicher, als die eines 420 nm Photons. Durch das Branchingratio wird an dieser Stelle indirekt ein zweiter Faktor beeinflusst. Es kann argumentiert werden, dass sich bei einer hinreichend großen optischen Dichte des finalen Übergangs ( $OD \geq 1$ ) ein kollektives Verhalten der Atome begünstigt wird; es somit also zu einer kollektiven Emission der Photonen bei einer Wellenlänge von 420 nm kommt. Diese führt nicht nur zu einem deutlich schnelleren Zerfall, sondern auch zu einer Gleichrichtung der Emission in eine bestimmte Vorzugsrichtung. Die Photonen werden somit nicht in den gesamten Raumwinkel emittiert, und können so besser kollimiert werden. Das Erreichen einer hinreichend großen optischen Dichte erscheint daher essentiell, um den Faktor Branchingratio durch ein Kollektivverhalten des Systems zu egalisieren. Im Nachgang soll daher Näher auf die optische Dichte des Übergangs vom  $6P_{3/2}$  Zustand in den Grundzustand eingegangen werden.

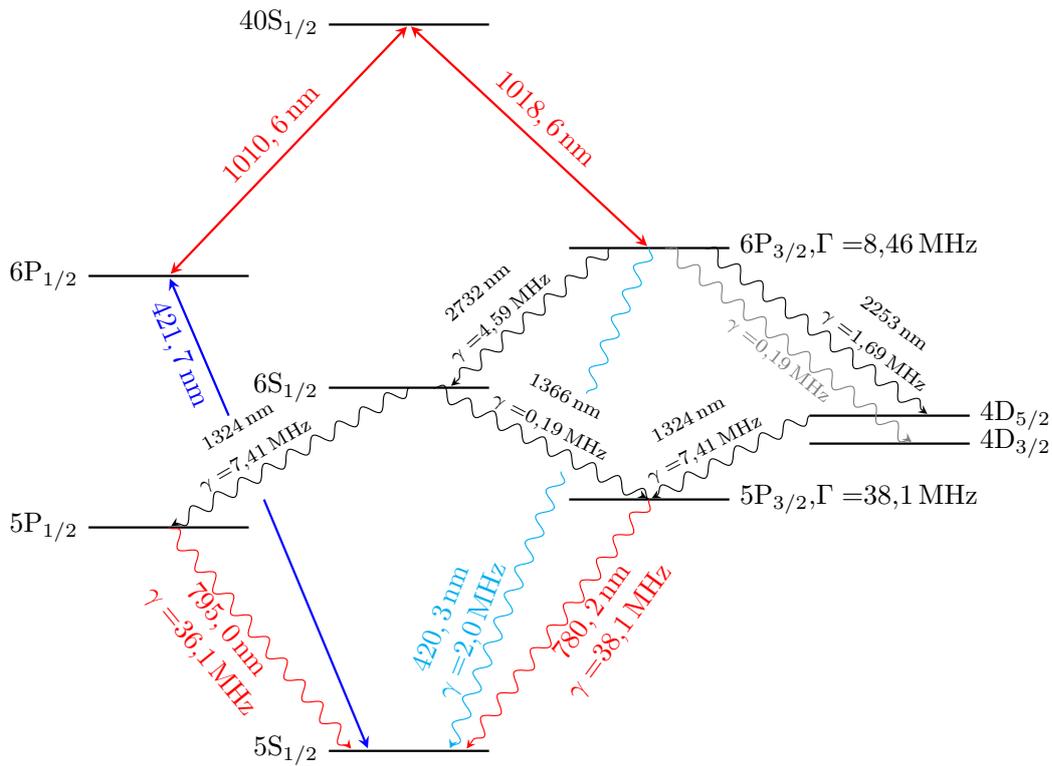


Abbildung 12.2: Dargestellt ist das invertierte Anregungsschema unter Berücksichtigung aller möglichen Übergänge ausgehend vom  $6P_{3/2}$  Zustand.

## 12.5 Betrachtung der optischen Dichte

Wie bereits diskutiert, ist das Erreichen einer hinreichend großen optischen Dichte für den Übergang des  $6P_{3/2}$  Zustands in den Grundzustand essentiell für die Effizienz der Photonenemission bei  $420,3 \text{ nm}$  Wellenlänge. Eine solch hohe optische Dichte muss darüber hinaus in einer Zelldicke kleiner als der Rydberg-Blockaderadius ( $\mu\text{m}$ -Regime) erreicht werden. Im Experiment kann die optische Dichte daher ausschließlich über die Temperatur und die Ausnutzung des LIAD-Effekts verbessert werden. Um aufzuzeigen, in welchem Maß die Temperatur im Experiment erhöht werden muss, dient die nachfolgende Betrachtung.

### 12.5.1 Berechnung der optischen Dichte

Zur Berechnung der optischen Dichte eines Übergangs wird zunächst die Definition der Suszeptibilität herangezogen

$$\chi(\delta\nu) = in \frac{|d|^2}{\hbar\epsilon_0} (\rho_{gg} - \rho_{ee}) \frac{1}{\Gamma_{\text{rad}} - i\delta\nu}. \quad (12.1)$$

Hierbei bezeichnet  $n$  die atomare Teilchendichte,  $d$  das Übergangsdipolmoment,  $\rho_{gg}, \rho_{ee}$  die Diagonalelemente der Dichtematrix,  $\Gamma_{\text{rad}}$  die Zerfallsrate des Zustandes und  $\delta\nu$  der Verstimmung des Lasers gegenüber der atomaren Resonanz (Detuning). Unter der Annahme einer resonanten Anregung und einem schwachen Probelaser gilt dann

$$\chi = in \frac{|d|^2}{\hbar\epsilon_0} \frac{1}{\Gamma_{\text{rad}}}. \quad (12.2)$$

Dementsprechend kann die optische Dichte geschrieben werden als

$$\text{OD} = \text{Im}(\chi)kL = n \frac{|d|^2}{\hbar\epsilon_0} kL, \quad (12.3)$$

mit der Wellenzahl  $k$  und der Eindringtiefe in das Medium  $L$ . Mit dem Übergangsdipolmoment nach Abschnitt 2.2 kann so die optische Dichte für einen beliebigen Übergang unter Einbeziehung der Hyperfeinstruktur berechnet werden. Die Temperaturabhängigkeit ist dann durch die atomare Teilchendichte

$$n = \frac{N}{V} = \frac{p}{k_{\text{B}}T} \quad (12.4)$$

mit dem Gasdruck  $p$  und der Maxwell-Boltzmann-Konstante  $k_{\text{B}}$  gegeben. Um die Richtigkeit der Berechnungen zu verifizieren, wird die optische Dichte für einen 420 nm Laser in einer 10 cm langen Rubidium-Dampfzelle gemessen und mit den Rechenergebnissen verglichen. Abbildung 12.3 und 12.4 zeigen eine gute Übereinstimmung zwischen Messung und Simulation, sodass diese im Weiteren zur Berechnung der optischen Dichte des  $6\text{P}_{3/2} \rightarrow 5\text{S}_{1/2}$  Übergangs genutzt werden kann. Die Ergebnisse in Abhängigkeit der Temperatur sind in Abbildung 12.5 dargestellt. Für den Bereich zwischen 250 und 300 °C Reservoirtemperatur ergibt sich eine optische Dichte sehr viel kleiner als 1. Wie bereits diskutiert, kann  $\text{OD} \geq 1$  als Grenzwert für das Auftreten eines kollektiven Verhaltens herangezogen werden. Um eine so hohe optische Dichte zu erreichen, wären Temperaturen um die 600 °C notwendig. Im Vergleich dazu zeigt Abbildung 12.6 die optische Dichte im Fall des von F. Ripka verwendeten Übergangs. Eine Temperatur von 300 °C führt hier bereits zu  $\text{OD} = 4,3$ . Diese Diskrepanz der optischen Dichte folgt direkt unter Einbeziehung des Branchingratios. In Gleichung (12.3) kann das Übergangsdipolmoment

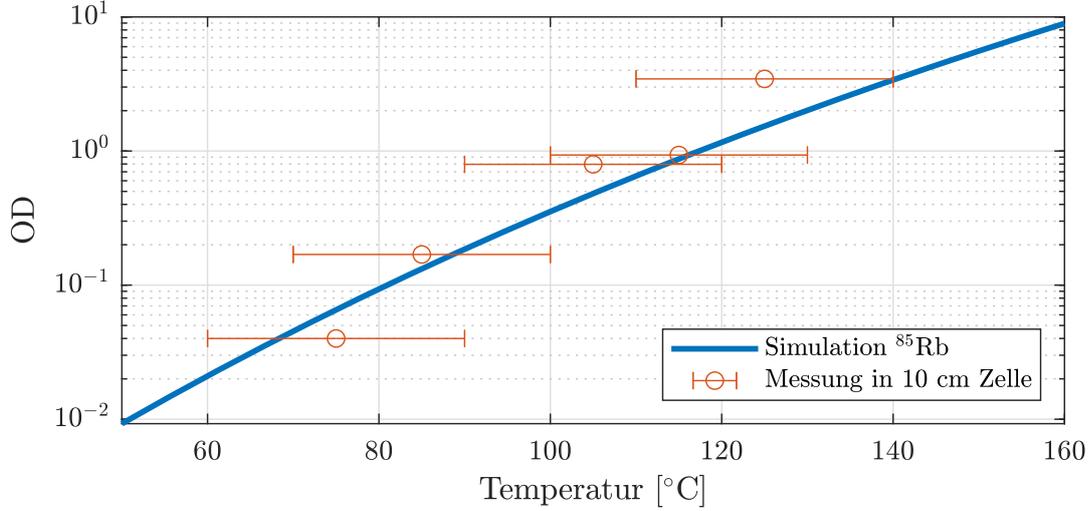


Abbildung 12.3: Dargestellt ist die optische Dichte für einen 420 nm Laser gemessen in einer 10 cm langen Zelle für verschiedene Temperaturen. Die berechnete optische Dichte zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Messdaten.

mit der Rate für die spontane Emission

$$\Gamma_{\text{spont}} = \frac{|d|^2 k^3}{\hbar \epsilon_0} \quad (12.5)$$

in Verbindung gebracht werden. Mit der Wellenzahl  $k = \frac{\lambda}{2\pi}$  ergibt sich demnach

$$\text{OD} = \frac{3}{4\pi} n L \lambda^3 \frac{\Gamma_{\text{spont}}}{\Gamma_{\text{rad}}}. \quad (12.6)$$

Im Fall des Übergangs von  $5P_{3/2}$  in den  $5S_{1/2}$  Grundzustand, im Schema von F. Ripka kann das System als ein Zwei-Niveau-System genähert werden. Hier gilt  $\Gamma_{\text{spont}} = 2\Gamma_{\text{rad}}$  und somit folgt

$$\text{OD} = \frac{3}{2\pi} n L \lambda^2 \quad (12.7)$$

Für die Betrachtung des  $6P_{3/2}$  Zustands kann das System nicht mehr als reines Zwei-Niveau-System angenommen werden, da neben dem Übergang in den Grundzustand auch andere Übergänge möglich sind (siehe Abbildung 12.2). Gleichung (12.6) muss somit erweitert werden zu

$$\text{OD}' = \frac{n|d|^2}{\hbar \epsilon_0} k L \frac{1}{\Gamma_{\text{rad}} + \Gamma_{\text{extra}}} = \text{OD} \frac{\Gamma_{\text{rad}}}{\Gamma_{\text{rad}} + \Gamma_{\text{extra}}} \quad (12.8)$$

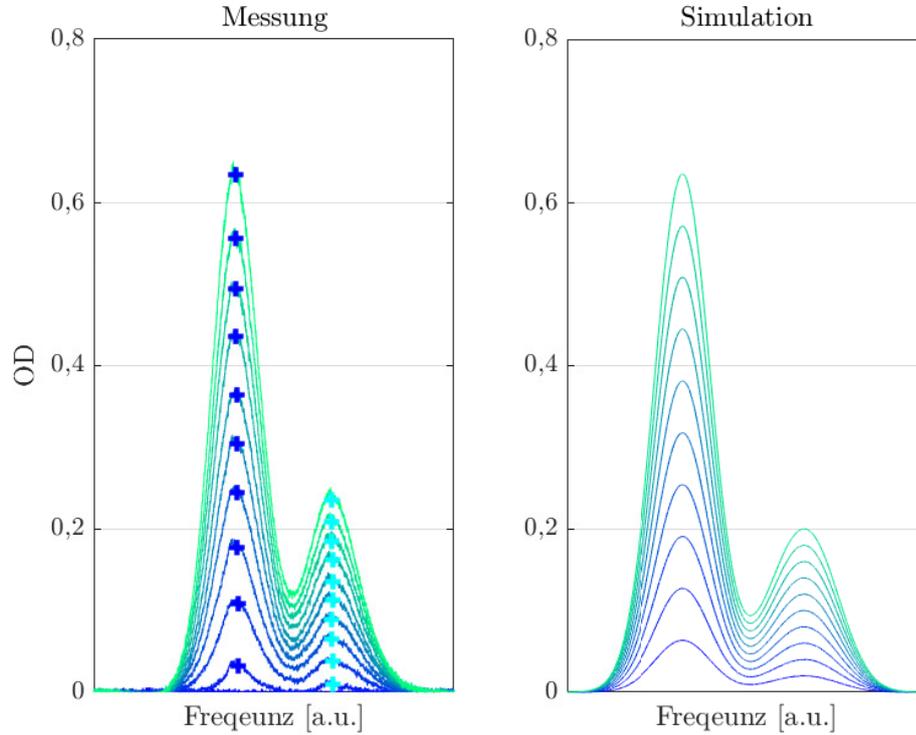


Abbildung 12.4: Gemessene und berechnete optische Dichte für einen 780 nm Laser in unterschiedlichen Zelldicken zwischen 0 und 10  $\mu\text{m}$ , bei 180  $^{\circ}\text{C}$  Reservoirtemperatur. Messung und Simulation zeigen eine gute Übereinstimmung.

In die Berechnung der optischen Dichte geht also ein zusätzlicher Vorfaktor

$$\Gamma_{\text{eff}} = \frac{\Gamma_{\text{rad}}}{\Gamma_{\text{rad}} + \Gamma_{\text{extra}}} \quad (12.9)$$

mit ein, der sich aus den verschiedenen Zerfallsraten berechnet. Im Fall des  $6\text{P}_{3/2}$  Zustands ergibt sich  $\Gamma_{\text{eff}} \approx 1/6$ . Wird abschließend eine inhomogene Verbreiterung, hervorgerufen durch den Dopplereffekt angenommen, folgt ein weiterer Vorfaktor.

$$\text{OD}_{\text{inhomo}} = \frac{3}{2\pi} nL \frac{\sqrt{\pi}\Gamma_{\text{tot}}}{2kv_{\text{T}}} = \text{OD} \frac{\sqrt{\pi}\Gamma_{\text{tot}}}{2kv_{\text{T}}}. \quad (12.10)$$

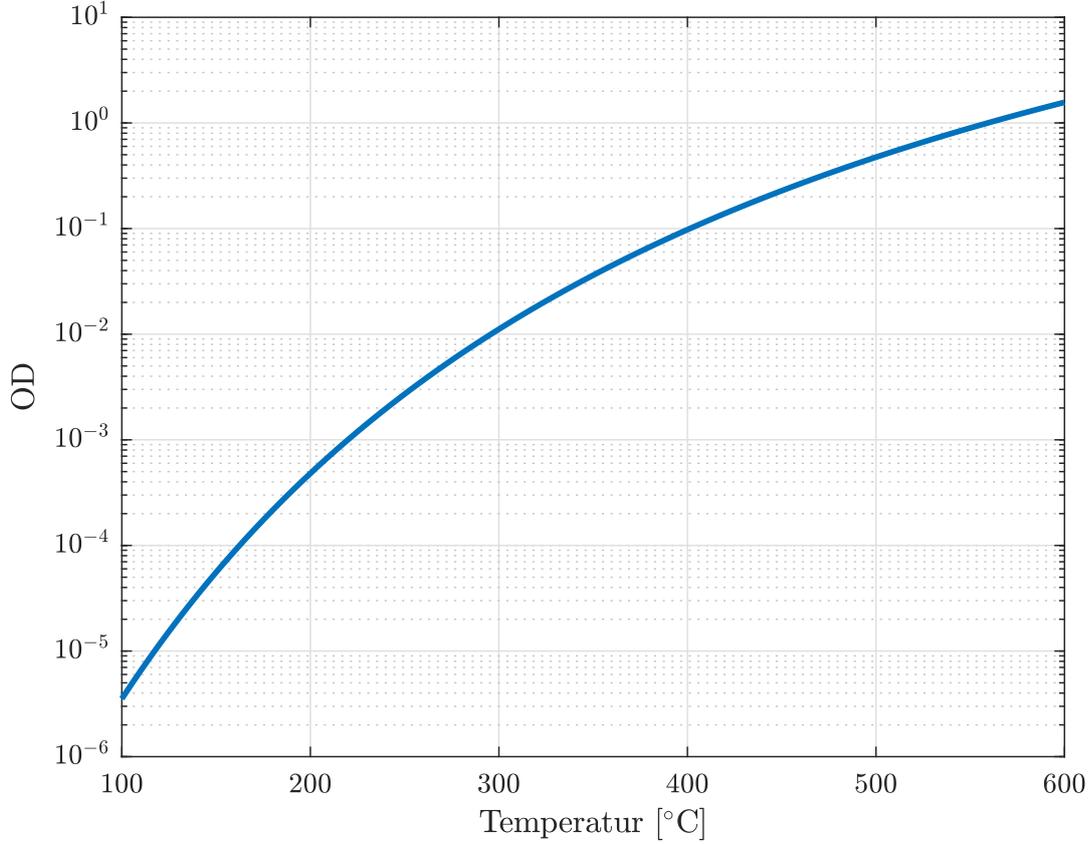


Abbildung 12.5: Berechnete optische Dichte für den  $6P_{3/2}$  Zustand, für eine  $1\ \mu\text{m}$  dicke Zelle, aufgetragen über der Temperatur. Eine optische Dichte größer eins wird erst für über  $600\ \text{°C}$  erreicht.

Um den Einfluss des Branchingratios deutlich zu machen, wird die optische Dichte für den Fall des  $6P_{3/2}$  und des  $6P_{3/2}$  Zustandes verglichen.

$$\frac{\text{OD}_{\text{inhomo}}(780)}{\text{OD}_{\text{inhomo}}(420)} = \frac{\frac{3}{2\pi} \lambda_{780}^2 n L \frac{\sqrt{\pi} \Gamma_{\text{tot},780}}{2k_{780} v_T}}{\frac{3}{2\pi} \lambda_{420}^2 n L \frac{\sqrt{\pi} \Gamma_{\text{tot},780}}{2k_{420} v_T} \Gamma_{\text{eff}}} = \left( \frac{\lambda_{780}}{\lambda_{420}} \right)^3 \frac{\Gamma_{780}}{\Gamma_{420}} \frac{1}{\Gamma_{\text{eff}}}. \quad (12.11)$$

Der durch das Branchingratio hervorgerufene Vorfaktor limitiert dabei die im Experiment erreichbare optische Dichte erheblich, da Temperaturen überhalb von  $350\ \text{°C}$  sowohl die Zelle als auch die Linsen hoher numerischer Apertur schädigen. Die durch das Branchingratio ohnehin deutlich verringerte Effizienz kann somit auch nicht durch ein kollektives Verhalten des Systems ausgeglichen werden. Die vorangegangene Diskussion zeigt auf, dass die geringe Effizienz der detektierten Photonen maßgeblich durch die physikalische Natur des verwendeten  $6P_{3/2}$  Zustand hervorgerufen wird. Im Experiment von F. Ripka stellt vor allem die Reputationsrate von  $50\ \text{Hz}$ , bedingt durch das Laser-

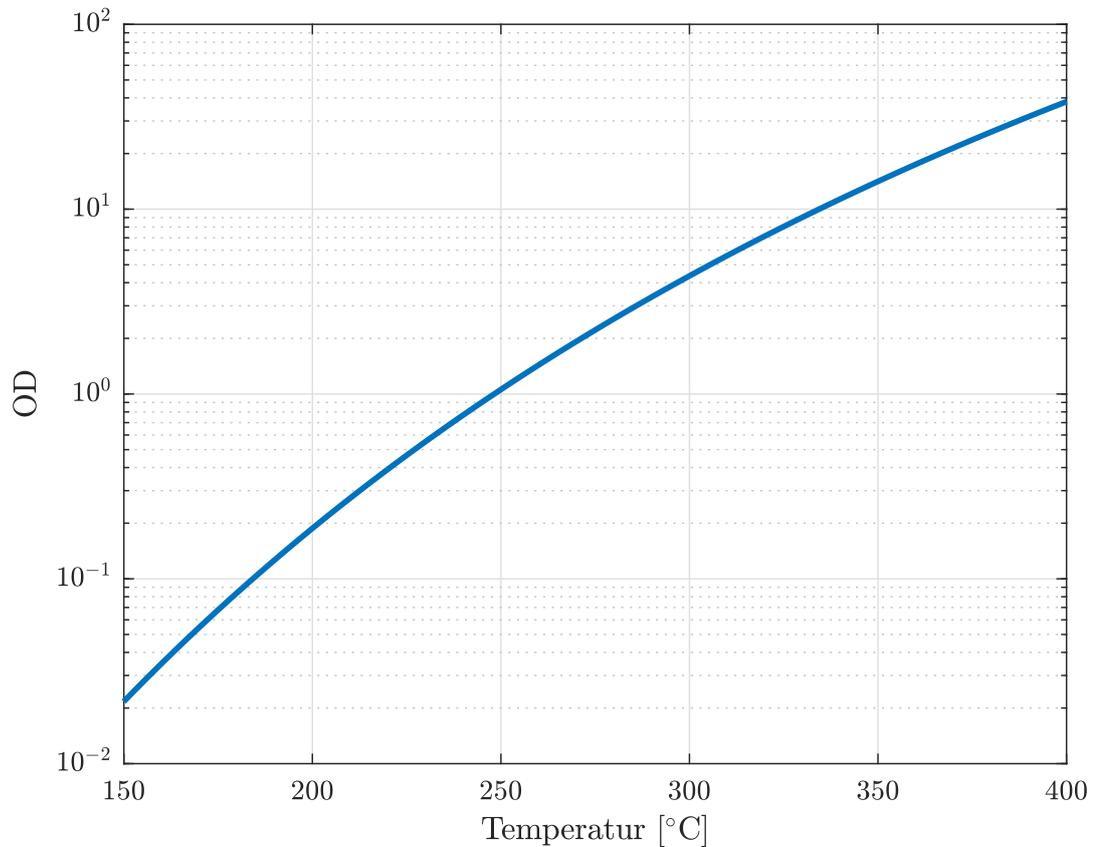


Abbildung 12.6: Berechnete optische Dichte für den  $5P_{3/2}$  Zustand, für eine  $1\ \mu\text{m}$  dicke Zelle, aufgetragen über der Temperatur. Eine optische Dichte größer eins wird bereits ab  $250\ \text{°C}$  erreicht.

system einen limitierenden Faktor dar. Beim Wechsel auf den  $6P_{3/2}$  Zustand wird diese Limitierung durch ein verbessertes Lasersystem mit  $200\ \text{kHz}$  Repititionsrate aufgehoben. Durch die deutlich schlechtere Effizienz des hier verwendeten Anregungsschemas, wird diese Verbesserung jedoch egalisiert. Es muss daher diskutiert werden, inwiefern die Problematik, welche durch den  $6P_{3/2}$  Zustand hervorgerufen wird, umgangen werden kann.

# 13 Lösungsansätze für verbesserte Photonenausbeute

Wie im vorangegangenen Abschnitt diskutiert, ist eine zu geringe optische Dichte des  $6P_{3/2}$  Zustands die Hauptursache für die geringe Photonenausbeute. Im Folgenden sollen daher Lösungsansätze diskutiert werden, um diese Nachteile zu umgehen.

## 13.1 Isotopenreines Rubidium

Alle Messungen dieser Arbeit wurden mit Rubidium in Form des natürlich vorkommenden Isotopengemisch aus  $^{85}\text{Rb}$  und  $^{87}\text{Rb}$  durchgeführt. Da über die verwendeten Laser nur die Teilchen des Isotops  $^{85}\text{Rb}$  angesprochen werden, liegt die Überlegung nahe, isoto-penreines Rubidium zu verwenden. Somit kann der Gasdruck für die  $^{85}\text{Rb}$  Teilchen und somit die optische Dichte erhöht werden. Aus einer naiven Betrachtung lässt sich der Trugschluss ziehen, dass der Gasdruck für die  $^{85}\text{Rb}$  Atome unabhängig von der Anwesenheit von  $^{87}\text{Rb}$  Atomen, der selbe bleibt. Unter Beachtung des Raoulschen Gesetz [20], gilt diese Annahme jedoch nicht. Abbildung 13.1 zeigt daher die optische Dichte, berechnet für den Fall von isotopenreinem Rubidium. Dabei zeigt sich, dass die Verwendung von isotopenreinem Rubidium zwar zu einer Verbesserung gegenüber dem natürlichen Isotopengemisch führt. Im Bezug auf das Erreichen des Limits  $OD \geq 1$  ist der Zuwachs jedoch eher vernachlässigbar. Der naheliegenste Ansatz zur Verbesserung der optischen Dichte, besteht in der Erhöhung der Temperatur.

## 13.2 Temperaturerhöhung

Abbildung 12.5 zeigt, dass die Temperatur auf über  $600^\circ\text{C}$  erhöht werden muss um eine optische Dichte größer 1 zu erhalten. Die Umsetzung des Experiments bei solch hohen Temperaturen ist fraglich in Bezug auf die Hitzebeständigkeit der Zelle und der optischen Komponenten. Eine Zelle aus reinem Saphir würde eine ausreichende Temperaturresistenz aufweisen. Eine solche Zelle stand im zeitlichen Rahmen dieser Arbeit jedoch nicht zur Verfügung. Darüber hinaus muss in diesem Temperaturregime eventuell bereits mit der Molekülbildung von Rubidiumatomen gerechnet werden [21]. Dies würde neue Probleme hervorrufen.

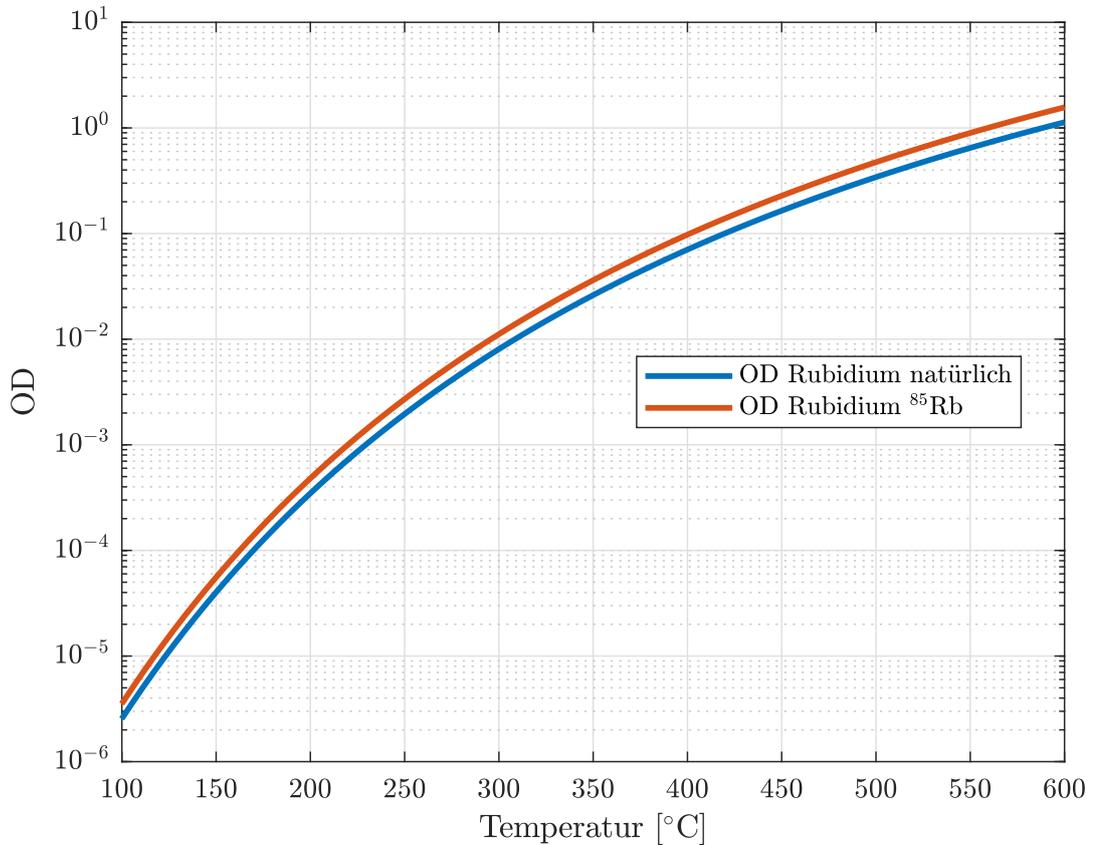


Abbildung 13.1: Berechnete optische Dichte aufgetragen über der Temperatur für den Fall des natürlichen Isotopenverhältnis und für isotopenreines Rubidium.

### 13.3 Resonator für finalen Übergang

Ein weiterer Ansatz besteht darin, einen Resonator für den finalen Übergang des FWM-Prozess in den Versuchsaufbau zu integrieren. Eine Finesse von  $\mathcal{F} \approx 100$  würde genügen um die Photonenemission bei einer Wellenlänge von 420,3 nm zu begünstigen. Ein solcher Resonator muss jedoch die folgenden Anforderungen erfüllen. Die Lebensdauer eines Photons im Resonator, muss ungefähr einer Nanosekunde entsprechen. Zusätzlich sollte die Linienbreite in der Größenordnung von 1 GHz liegen. Demnach muss der Resonator nach Abschnitt 8.0.1 sehr kurz (ca. 1 mm) sein. Als letzte Bedingung folgt, dass die Resonatorbedingung nur für 420,3 nm, nicht aber für 421,7 nm gelten darf. Einen solchen Resonator im Experiment zu integrieren, erscheint unter diesen Aspekten nicht umsetzbar. Da Temperaturerhöhung und die Verwendung eines Resonators die Problematik nur von einem theoretischen Standpunkt aus lösen, soll ein weiterer Ansatz diskutiert werden.

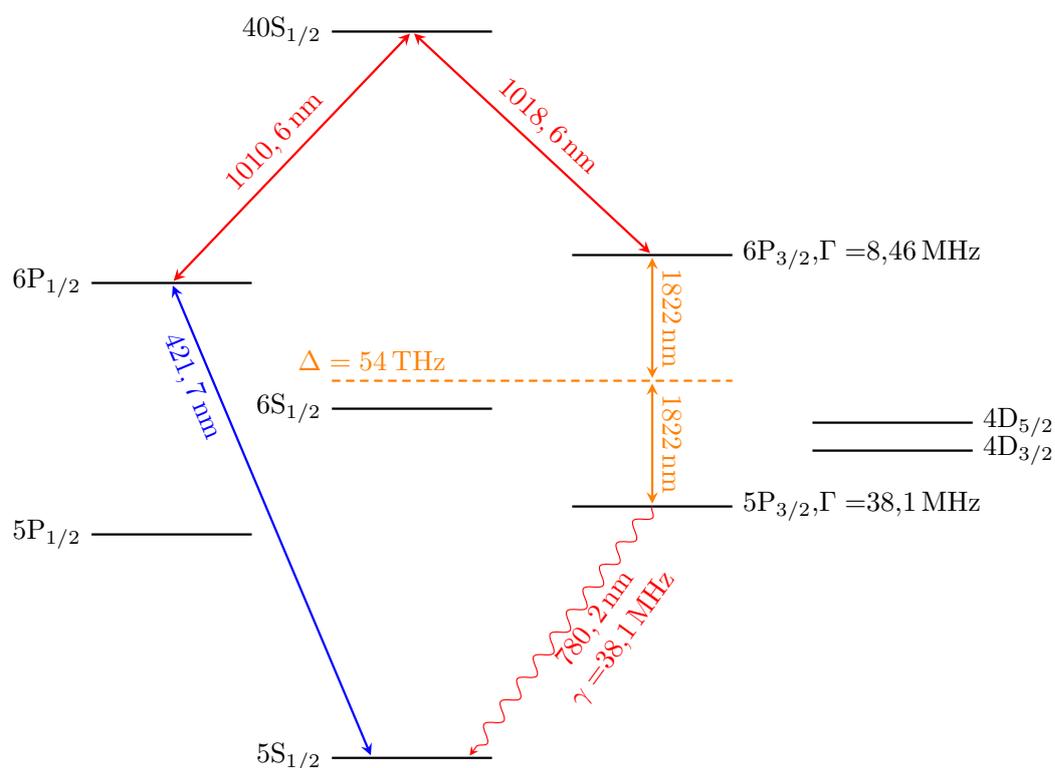


Abbildung 13.2: Darstellung des mit einem 1822 nm Laser erweiterten Anregungsschemas. Durch den nichtresonanten Zwei-Photonen-Übergang werden die Nachteile des  $6P_{3/2}$  Zustandes umgangen.

## 13.4 Ein verbessertes Anregungsschema

Ein weiterer Ansatz zur Behebung der geringen Effizienz des  $6P_{3/2}$  Zustands, besteht in der erneuten Anpassung des verwendeten Anregungsschemas. Abbildung 13.2 zeigt ein solches Schema. Hierbei soll ein zusätzlicher, nichtresonanter Laser den  $6P_{3/2}$  Zustand mittels eines Zwei-Photonen-Übergangs, in den  $5P_{3/2}$  Zustand abregen. Für eine solche kohärente Abregung ist ein Laser mit einer Wellenlänge von 1822 nm notwendig. Der dadurch adressierte Zielzustand ist dann wieder der von F. Ripka verwendete  $5P_{3/2}$  Zustand. Für diesen kann eine ausreichend große optische Dichte erreicht werden, sodass es zusätzlich zu einem kollektiven Verhalten des Systems kommt. Die Photonen werden demnach in eine bestimmte Vorzugsrichtung emittiert. Zusätzlich besitzen die erzeugten Photonen eine Wellenlänge von 780 nm. Bedingt dadurch steigt auch sofort die erreichbare Detektionseffizienz der Einzelphotonenzähler selbst. Darüber hinaus besitzen fast alle optischen Komponenten bei dieser Wellenlänge eine deutlich verbesserte Effizienz, gegenüber dem blauen Wellenlängenbereich. Die durch die Thin-Film-Filter und das Etalon verursachten Verluste fallen ebenfalls weg. Es muss allerdings diskutiert werden,

ob für den zusätzlichen Laser eine eventuelle Resonanz mit einem anderen atomaren Zustand besteht.

### 13.4.1 Berechnungen für den Zwei-Photonen-Übergang

Zur Berechnung der Frequenz möglicher Übergänge, wird das ARC (Atomic Rydberg Calculator) Paket für Python verwendet [22]. Erlaubt sind Übergänge, für welche die Auswahlregeln  $\Delta L = 0, \pm 1$  und  $\Delta J = 0, \pm 1$  erfüllt sind. Ausgehend von den vier Zuständen ( $5S_{1/2}$ ,  $6P_{1/2}$ ,  $6P_{3/2}$ ,  $40S_{1/2}$ ), können so die Frequenzen der möglichen Übergänge berechnet werden. Die Ergebnisse einer solchen Rechnung sind in Abbildung 13.3 aufgezeigt. Für die Übergänge, für welche nach Abbildung 13.3 eine Resonanz mit dem 1822 nm Laser möglich erscheint, werden zusätzlich die Rabifrequenzen und erreichbaren Populationen für einen 10 W starken Laser mit  $5 \mu\text{m}$  Strahlradius, berechnet. Die Ergebnisse sind Tabelle 13.1 zu entnehmen. Aus den Ergebnissen wird ersichtlich, dass

Tabelle 13.1: Für mögliche Übergänge berechnete Rabifrequenzen und erreichbare Populationen.

Übergang	Rabifrequenz $\Omega$	max. Population [%]
$40S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2}$	3,189(2 $\pi$ ) GHz	$8,31 \cdot 10^{-8}$
$40S_{1/2} \rightarrow 7P_{1/2}$	1,694(2 $\pi$ ) GHz	$1,65 \cdot 10^{-8}$
$6P_{3/2} \rightarrow 7D_{5/2}$	40,34(2 $\pi$ ) GHz	$5,19 \cdot 10^{-7}$
$6P_{3/2} \rightarrow 7D_{3/2}$	17,125(2 $\pi$ ) GHz	$9,37 \cdot 10^{-8}$
$6P_{3/2} \rightarrow 8S_{1/2}$	29,745(2 $\pi$ ) GHz	$2,71 \cdot 10^{-6}$
$6P_{3/2} \rightarrow 9S_{1/2}$	14,98(2 $\pi$ ) GHz	$4,71 \cdot 10^{-8}$
$6P_{3/2} \rightarrow 7D_{3/2}$	40,449(2 $\pi$ ) GHz	$4,46 \cdot 10^{-7}$
$6P_{3/2} \rightarrow 8S_{1/2}$	42,399(2 $\pi$ ) GHz	$1,01 \cdot 10^{-5}$
$6P_{3/2} \rightarrow 9S_{1/2}$	21,473(2 $\pi$ ) GHz	$8,48 \cdot 10^{-8}$
$6P_{3/2} \rightarrow 5P_{3/2}$	0,533(2 $\pi$ ) GHz	0,97

für einen 1822 nm Laser, ausgehend von den vier Zuständen ( $5S_{1/2}$ ,  $6P_{1/2}$ ,  $6P_{3/2}$ ,  $40S_{1/2}$ ) in Rubidium, keine relevante Resonanz mit einem zusätzlichen Übergang besteht. Da der Laser, siehe Abbildung 13.2, für einen nichtresonanten Zwei-Photonen-Übergang genutzt werden soll, muss überprüft werden ob ein weiterer, unerwünschter Zwei-Photonen-Übergang für diese Wellenlänge möglich ist. Dabei müssen die selben Auswahlregeln berücksichtigt werden. Abbildung 13.4 zeigt die berechneten Frequenzen für mögliche Übergänge, ausgehend von den Endzuständen aus Tabelle 13.1. Um zu verifizieren, ob einer der berechneten möglichen Zwei-Photonen-Übergänge einen relevanten Beitrag liefert, muss das Zwei-Photonen-Detuning betrachtet werden. Für die Berechnung des Zwei-Photonen-Detunings, muss jedoch die Charakteristik des Anregungsschemas mit einbezogen werden. Abbildung 13.5 zeigt beispielhaft die drei Möglichkeiten die unterschieden

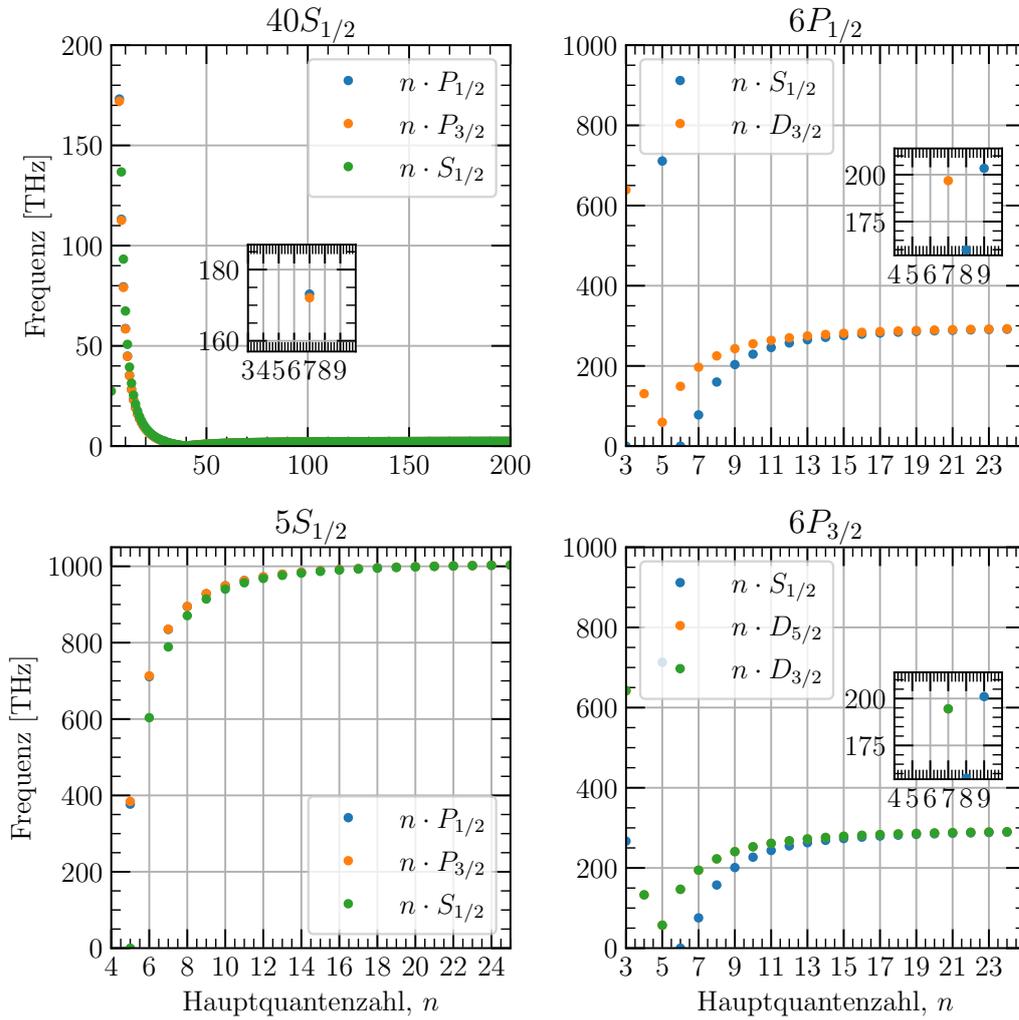


Abbildung 13.3: Berechnete Frequenz der nach den Auswahlregeln erlaubten Übergänge, ausgehend von den vier Zuständen  $6P_{1/2}$ ,  $5S_{1/2}$ ,  $6P_{3/2}$  und  $40S_{1/2}$ , aufgetragen über der Hauptquantenzahl  $n$ .

werden müssen. Im Fall eines Leiterschemas ergibt sich das Zwei-Photonen-Detuning aus der Summe der einzelnen Detunings zu

$$\delta = \Delta_1 + \Delta_2. \quad (13.1)$$

Im Fall eines  $\lambda$ - oder V-Schemas folgt dagegen

$$\delta = \Delta_1 - \Delta_2. \quad (13.2)$$

Tabelle 13.2: Berechnetes Zwei-Photonen-Detuning und Rabifrequenzen für die Zwei-Photonen-Übergänge von Interesse.

$40S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2} \rightarrow 38D_{3/2}$	$40S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2} \rightarrow 39S_{1/2}$
$\delta = 28(2\pi)$ GHz	$\delta = 136(2\pi)$ GHz
$\Omega_p = 7,1325(2\pi)$ GHz	$\Omega_p = 7,1325(2\pi)$ GHz
$\Omega_c = 3,86(2\pi)$ GHz	$\Omega_c = 4(2\pi)$ GHz

Wird das Zwei-Photonen-Detuning für die, nach den Auswahlregeln möglichen Zwei-Photonen-Übergänge unter Verwendung des 1822 nm Lasers berechnet, so folgt das geringste Detuning für die beiden Übergänge

$$40S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2} \rightarrow 38D_{3/2}, \delta = 0,028(2\pi) \text{ THz},$$

$$40S_{1/2} \rightarrow 7P_{3/2} \rightarrow 39S_{1/2}, \delta = 0,136(2\pi) \text{ THz}.$$

Im Vergleich dazu liegt das Detuning für den gezielten Übergang von  $6P_{3/2}$  über den  $6S_{1/2}$  in den  $5P_{3/2}$  Zustand, bei 54 THz. Demnach erscheint ein unerwünschter Zwei-Photonen-Übergang in die Zustände  $38D_{3/2}$  oder  $39S_{1/2}$  nicht unwahrscheinlich. Für eine genauere Betrachtung erfolgt daher eine Simulation der Populationen in den entsprechenden 3-Niveau-Systemen, siehe Abbildung 13.6 Für die nachfolgende Berechnung der Populationen in diesen 3-Niveau-Systemen wird eine Laserleistung von 10 W und ein Strahlradius von  $5 \mu\text{m}$  angenommen. In Abbildung 13.7 ist die simulierte zeitliche Entwicklung der Population aufgezeigt. Die berechneten Rabifrequenzen sind Tabelle 13.2 zu entnehmen. Wie aus Abbildung 13.7 und Tabelle 13.2 ersichtlich wird, wird bei den betrachteten Übergängen nur ein zu vernachlässigender Anteil der Gesamtpopulation in einen der unerwünschten Zustände transferiert. Es bleibt daher zu diskutieren, ob ein Zwei-Photonen-Übergang, ausgehend vom  $6P_{3/2}$  Zustand, in den  $5P_{3/2}$ , unter Verwendung eines 1822 nm Lasers einen hinreichend großen Anteil der Population transferieren kann. Für die Simulation wird zunächst ein  $5 \mu\text{m}$  Strahlradius und 1 W Laserleistung angenommen. Für den Zwei-Photonen-Übergang müssen der  $6S_{1/2}$ , der  $4D_{5/2}$  und der  $4D_{3/2}$  Zustand als potentieller Zwischenzustand betrachtet werden. Alle drei Zustände führen auf ein leicht verschiedenes Zwei-Photonen-Detuning und somit zu unterschiedlichen Rabifrequenzen. Abbildung 13.8 zeigt die simulierte, zeitliche Entwicklung der Population in diesen drei Fällen. Die Simulationsergebnisse für die Rabifrequenzen sind Tabelle 13.3 zu entnehmen. Die effektive Rabifrequenz  $\Omega_{\text{eff}}$  ergibt sich dabei zu

$$\Omega_{\text{eff}} = \frac{\Omega_p \Omega_c}{\Delta_p}. \quad (13.3)$$

Die Simulationen zeigen, dass es durch den Zwei-Photonen-Übergang mittels des 1822 nm Lasers möglich ist, nahezu die gesamte Population in den  $5P_{3/2}$  Zustand zu transfe-

Tabelle 13.3: Berechnetes Zwei-Photonen-Detuning und Rabifrequenzen für die Zwei-Photonen-Übergänge von Interesse.

$6P_{3/2} \rightarrow 6S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$	$6P_{3/2} \rightarrow 4D_{3/2} \rightarrow 5P_{3/2}$	$6P_{3/2} \rightarrow 4D_{5/2} \rightarrow 5P_{3/2}$
$\Delta_p = 54(2\pi)$ THz	$\Delta_p = 31,5(2\pi)$ THz	$\Delta_p = 31,5(2\pi)$ THz
$\Delta_c = -54(2\pi)$ THz	$\Delta_c = -31,5(2\pi)$ THz	$\Delta_c = -31,5(2\pi)$ THz
$\delta = 0(2\pi)$ Hz	$\delta = 0(2\pi)$ Hz	$\delta = (2\pi)$ Hz
$\Omega_p = 187,9(2\pi)$ GHz	$\Omega_p = 55,49(2\pi)$ GHz	$\Omega_p = 132,3(2\pi)$ GHz
$\Omega_c = 155,5(2\pi)$ GHz	$\Omega_c = 95,594(2\pi)$ GHz	$\Omega_c = 148,64(2\pi)$ GHz
$\Omega_{\text{eff}} = 0,533(2\pi)$ GHz	$\Omega_{\text{eff}} = 0,168(2\pi)$ GHz	$\Omega_{\text{eff}} = 0,624(2\pi)$ GHz

rieren. Die Population der Zwischenzustände ist dabei vernachlässigbar klein. Da das Experiment in einem thermischen Gas stattfindet, bewegen sich die Atome mit einer Geschwindigkeit in der Größenordnung  $\bar{v} \approx 300$  m/s. Um dadurch verursachte Effekte vernachlässigen zu können, wird eine gepulste Anregung mit Pulslängen von 1 ns verwendet. Innerhalb einer Nanosekunde bewegen sich die Atome ca. 300 nm, was signifikant kleiner als die verwendeten Wellenlängen ist. Damit muss für jeden Übergang neben einer ausreichend hohen Population auch eine hinreichend große Rabifrequenz erreicht werden. Nur dann kann der Transfer der Population ausreichend schnell erfolgen. Abbildung 13.9 zeigt daher die berechnete, zeitliche Entwicklung der Population für den betrachteten Zwei-Photonen-Übergang, bei verschieden hoher Laserleistung. Die dafür folgenden Rabifrequenzen können Tabelle 13.4 entnommen werden. Für eine Laserlei-

Tabelle 13.4: Berechnete effektive Rabifrequenz für den Zwei-Photonen-Übergang bei unterschiedlicher Laserleistung.

Leistung	Rabifrequenz $\Omega_{\text{eff}}$
0,5 W	0,266(2 $\pi$ ) GHz
1 W	0,533(2 $\pi$ ) GHz
10 W	5,333(2 $\pi$ ) GHz

tung von 10 W ergibt sich demnach eine hinreichend große Rabifrequenz. Aus den Berechnungen kann daher gefolgert werden, dass eine Erweiterung des Anregungsschemas, durch einen zusätzlichen 1822 nm Laser möglich ist. Ein Laser mit den entsprechenden Spezifikationen, muss jedoch als Einzelanfertigung konstruiert oder erworben werden. Unter Berücksichtigung der Entwicklungszeit und den Kosten für ein solches Lasersystem, stellt die Erweiterung des Anregungsschemas keine Sofortlösung für das Experiment dar. Um dennoch eine Fortführung des Experiments zu motivieren, sollen im Folgenden einige zusätzliche Überlegungen angeregt werden.

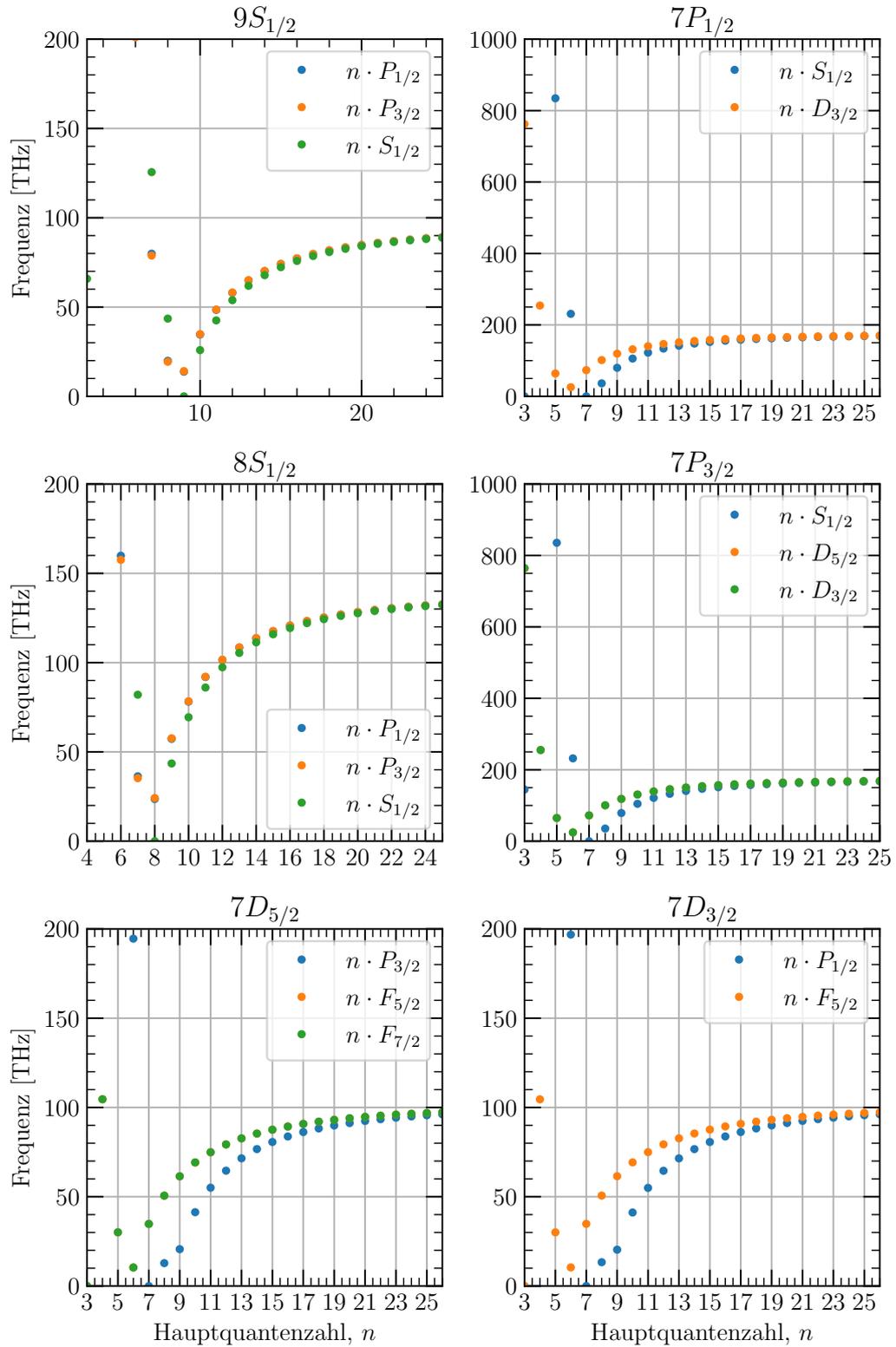


Abbildung 13.4: Berechnete Frequenzen möglicher Übergänge, ausgehend von den Endzuständen aus Tabelle 13.1 als Startzustand, aufgetragen über der Hauptquantenzahl  $n$ .

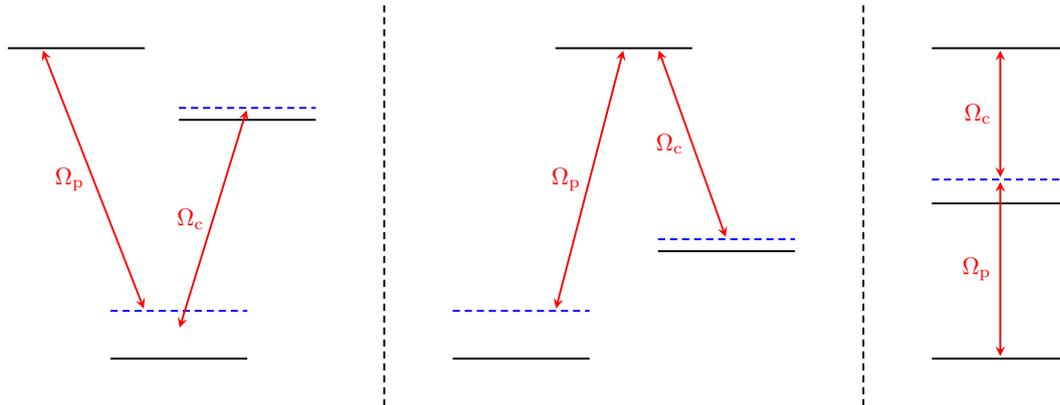


Abbildung 13.5: Schematisch dargestellt sind die drei verschiedenen Charakteristiken, welche für das Anregungsschema auftreten können. Links das so genannte V-Schema, in der Mitte das  $\lambda$ -Schema und rechts das Leiter-Schema.

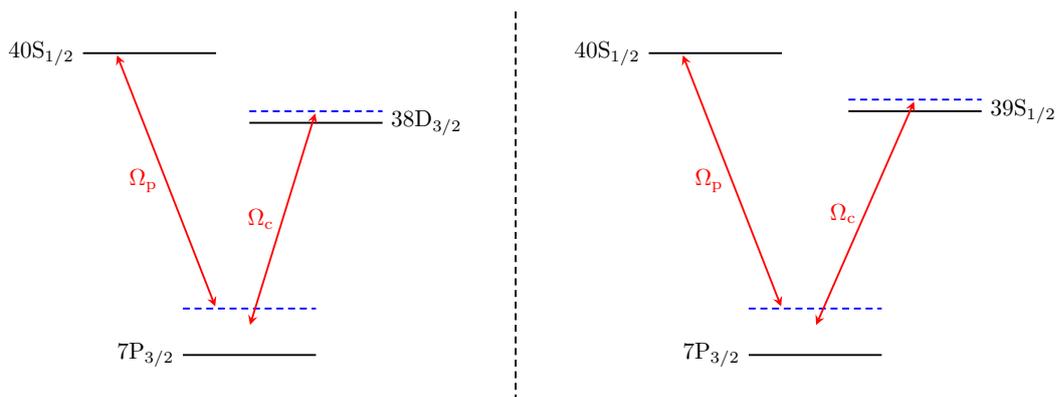


Abbildung 13.6: Schematische Darstellung der 3-Niveau-Systeme, für die Zwei-Photonen-Übergänge von Interesse.

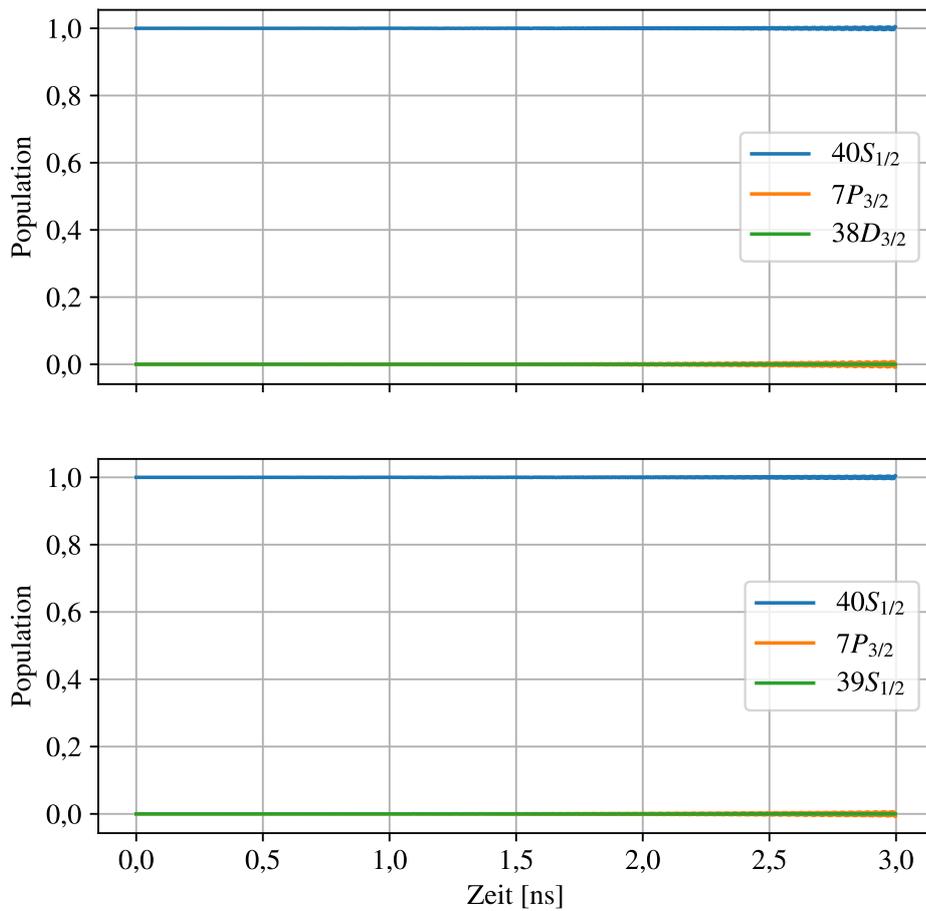


Abbildung 13.7: Berechnete Population, wenn das jeweilige 3-Niveausystem mit einem 10 W starken 1822 nm Laser getrieben wird.

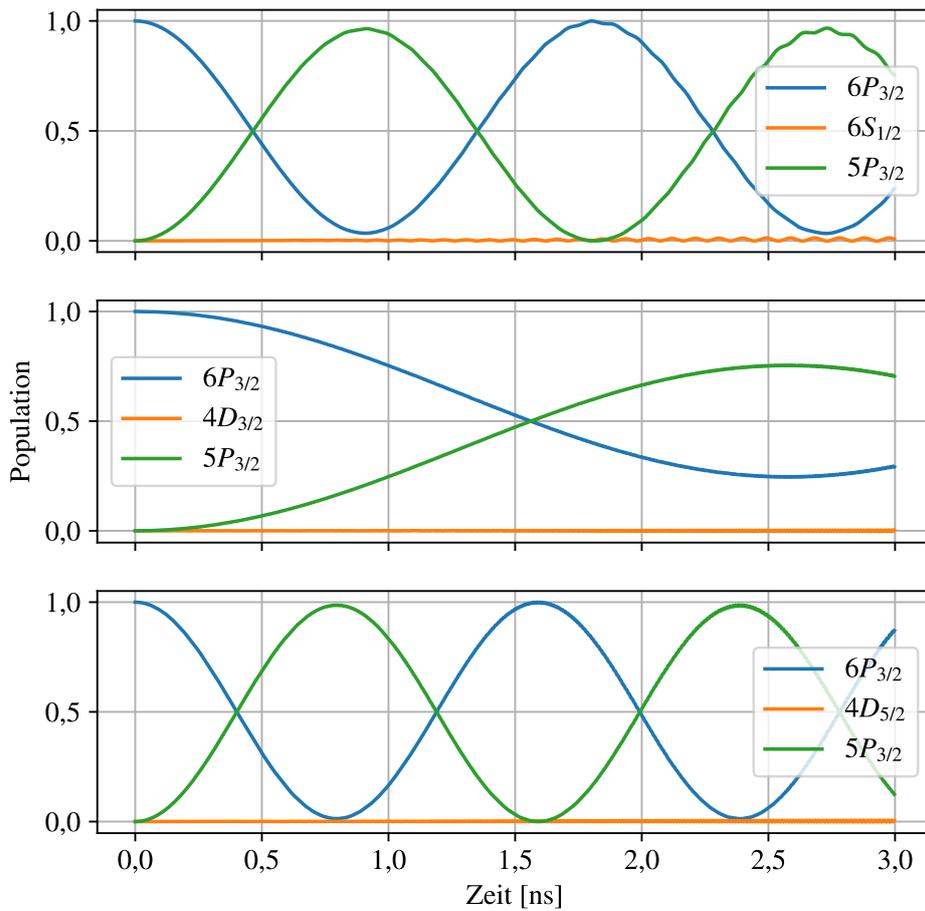


Abbildung 13.8: Berechnete Population, wenn das jeweilige 3-Niveausystem mit einem 1 W starken 1822 nm Laser getrieben wird.

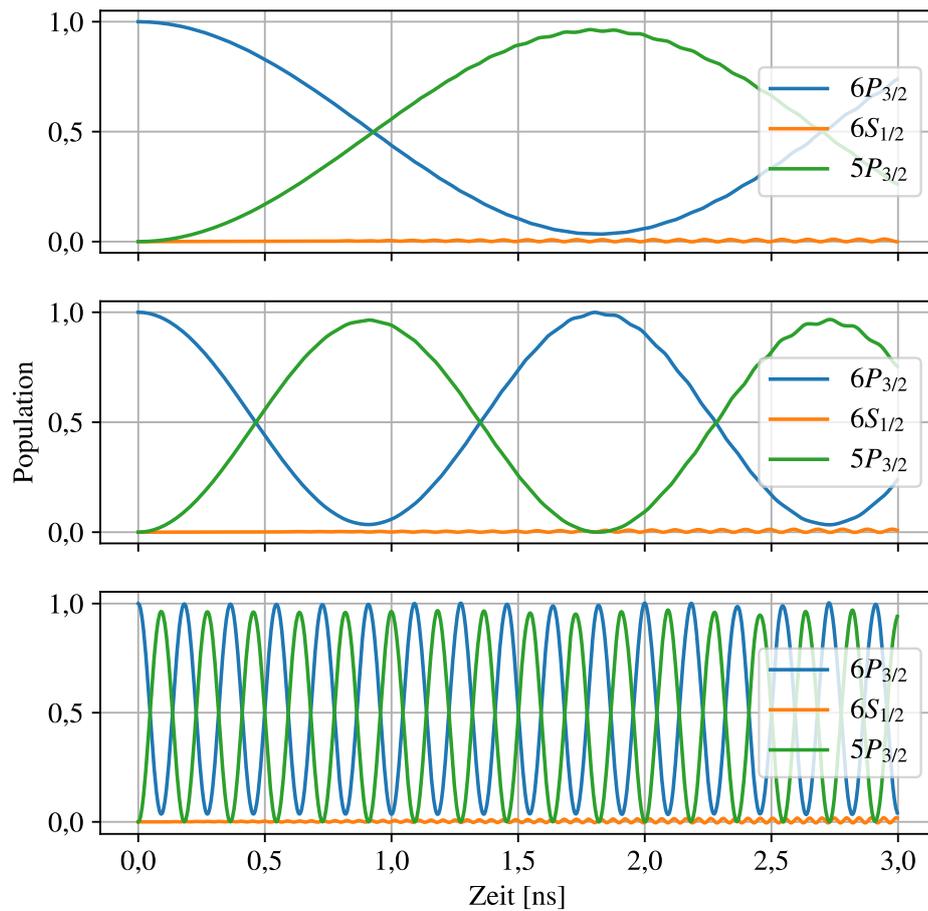


Abbildung 13.9: Berechnete Population des  $6P_{3/2}$ ,  $6S_{1/2}$  und des  $5P_{3/2}$  Zustands aufgetragen über der Zeit, für 0,5 W, 1 W und 10 W respektive von oben nach unten.

## 13.5 Fluoreszenzmessung

Im vorangegangenen Abschnitt wurde aufgezeigt, dass unter den gegebenen Umständen, nur eine sehr geringe Photonenausbeute erreicht werden kann. Eine sinnvolle Messung der Photonenstatistik ist somit nicht möglich. Im Fokus dieser Diskussion steht unter anderem das Branchingratio des  $6P_{3/2}$  Zustands. Das in Abbildung 12.2 aufgezeigte Anregungsschema zeigt, dass mit 76,4%, die Emission eines Photons bei einer Wellenlänge von 780 oder 795 nm, deutlich wahrscheinlicher ist, als die eines blauen Photons. Aufgrund des Branchingratios des  $6P_{3/2}$  Zustands kann aber auch für diese Photonen keine kollektive Emission erreicht werden. Dennoch kann für die 780/795 nm Photonen durch Ausnutzung der Rydbergblockade Antibunching auftreten. Ausgehend von dieser Überlegung, können die in Tabelle 12.1 aufgezeigten Effizienzen erneut betrachtet werden. Eine aktualisierte Auflistung der Effizienz, für die Messung von Photonen bei 780/795 nm, ist in Tabelle 13.5 gegeben. Die Auflistung zeigt, dass sich für die Messung der 780/795 nm Photonen ein ca. 500 mal höhere Effizienz ergibt. Ausgenommen die Kategorie der optischen Komponenten, erhöht sich die Effizienz in jedem Bereich maßgeblich. Die Filterung der 780/795 nm Photonen erfordert kein Etalon mehr. Auch der Anspruch an die sonstigen Filter ist deutlich geringer. Hier kann ein normaler Bandpassfilter verwendet werden. Darüber hinaus ist die Detektionseffizienz für den roten Wellenlängenbereich deutlich verbessert. Die 780/795 nm Photonen werden unter Berücksichtigung des Branchingratios nicht nur effizienter erzeugt, sondern auch effizienter detektiert. Trotz dieser Verbesserung, besteht für die Detektion der 780/795 nm Photonen eine Problematik. Um den Effekt der Rydbergblockade nutzen zu können, muss der 422 nm Anregungslaser stark fokussiert werden. Das symmetrische Linsenpaar in der Versuchsanordnung, ist für die Kollimation von blauen Photonen optimiert. Unklar ist daher, wie gut Photonen mit einer Wellenlänge von 780/795 nm, innerhalb dieser Anordnung kollimiert werden können. Eine gute Kollimation ist essentiell, um die emittierten Photonen über eine Faser, in das Hanbury-Brown Twiss Interferometer einzukoppeln. Die Einkopplung ist sowohl für die Detektion und Messung der Photonenstatistik wichtig, als auch als Feedback für die Justage der hinteren Linse, während des Experiments. Als ein erster Test dient daher die folgende Messung. Zur Erzeugung von 780/795 nm Photonen, wird ein 420 nm Laser auf einen dicken Bereich der Zelle geschickt. Trifft der Laser die Resonanz des  $6P_{3/2}$  Zustands, so wird dieser angeregt. Durch spontane Emission emittieren dann Photonen bei einer Wellenlänge von 420,3 nm, 780 nm und 795 nm, siehe Abbildung 13.10 Anhand dieser Fluoreszenzmessung kann gezeigt werden, wie gut die emittierten Photonen kollimiert werden können. Abbildung 13.11 zeigt eine solche Messung für verschiedene Reservoirtemperaturen. Dabei wurden die 780/795 nm Photonen mittels zweier Bandpassfilter vom 420 nm Hintergrund getrennt und über eine Photodiode mit hoher Bandbreite detektiert. In einem nächsten Schritt muss dann der 780/795 nm Strahl vermessen werden, um die Kollimation zu quantifizieren. Zu diesem Zeitpunkt der Arbeit war keine intakte Zelle mehr verfügbar, sodass keine weiteren Messungen mehr möglich waren. Demnach konnte nicht gezeigt werden, inwiefern die

Tabelle 13.5: Die Tabelle zeigt eine Übersicht der zur Effizienz des Experiments beitragenden Faktoren. Dabei wird das Anregungsschema ohne Erweiterung durch den zusätzlichen Zwei-Photonen-Übergang betrachtet. Es werden die Effizienz für die Detektion von Photonen bei 420 nm und bei 780/795 nm gegenübergestellt.

Faktor	420 nm	780/795 nm	Verbesserung
Optische Komponenten	44%	44%	1,0
Filterkomponenten	18%	> 90%	5,0
Detektionsrate	2,32%	70%	30,2
Effizienz den Zielzustand anzuregen	< 10%	< 10%	1,0
Photonen emittieren ungerichtet in $4\pi$ , können nur mit $NA = 0,62$ kollimiert werden	10%	10%	1,0
Branchingratio	23,5%	76,5%	3,3
Ausbreitung schlechter Mode	?	?	
<b>Gesamteffizienz</b>	0,0000043	0,0021	488

emittierten 780/795 nm Photonen in eine Faser eingekoppelt werden können. Die in Abbildung 13.11 gezeigte Messung lässt jedoch den Schluss zu, dass zumindest ein Teil der Photonen eingekoppelt werden kann. Durch das Fehlen einer funktionstüchtigen Zelle war auch keine weitere Messung der Photonenstatistik mehr möglich. Um die Zeit effektiv zu nutzen, wurden einige Umbauten am Experiment vorgenommen. Unter anderem wurde mit den neuen APDs von Hamamatsu ein zweites Hanbury-Brown-Twiss Interferometer aufgebaut. Der Versuchsaufbau beinhaltet somit je ein Interferometer für die Detektion von 420 nm Photonen und ein weiteres für 780/795 nm Photonen. Für eine erfolgreiche Einkopplung der 780/795 nm Photonen, können zukünftig alle Kanäle des Anregungsschema siehe Abbildung 12.2, gleichzeitig gemessen werden.

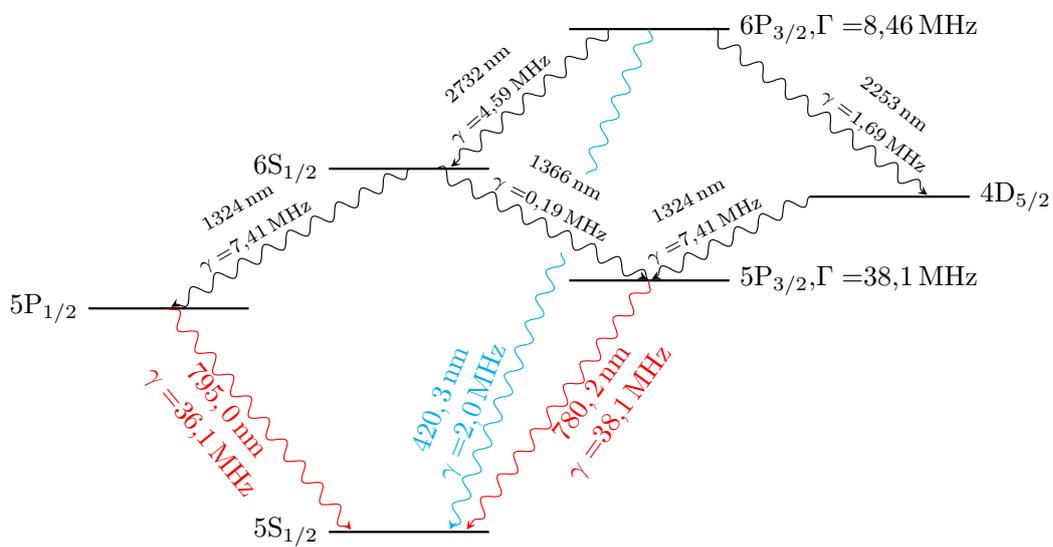


Abbildung 13.10: Anregungsschema für die Fluoreszenzmessung. Über einen 420 nm Laser werden Atome in den  $6p_{3/2}$  Zustand angeregt. Spontane Emission liefert Photonen bei 420,3 nm, 780 nm und 795 nm

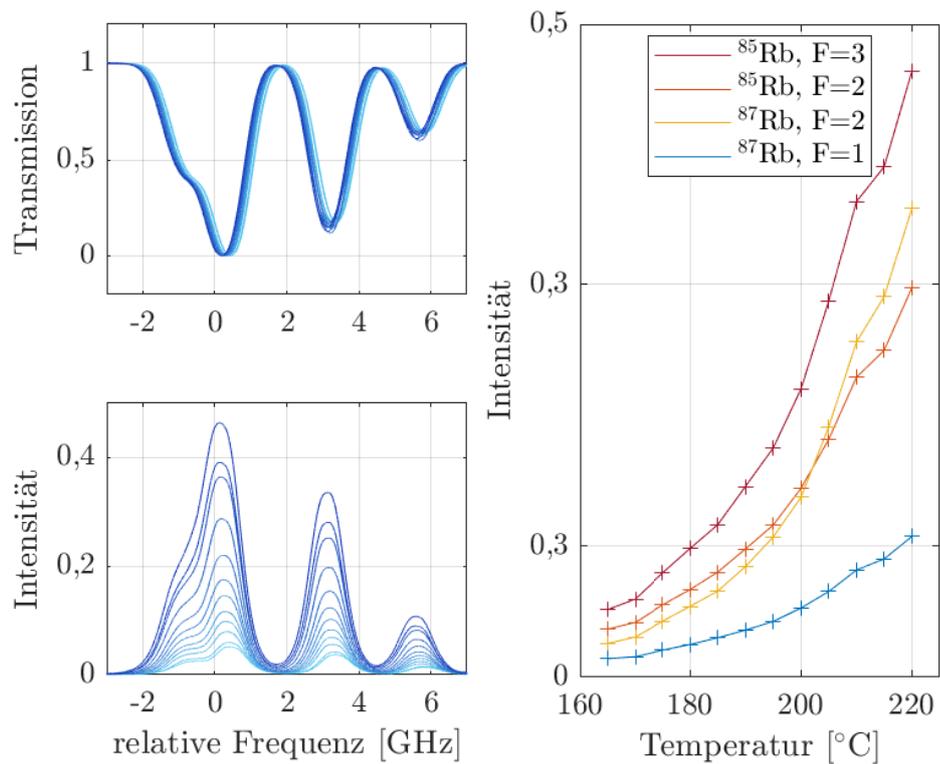


Abbildung 13.11: Sättigungsspektroskopie als Referenz und gemessenen Fluoreszenz für verschiedenen Reservoirtemperaturen, links. Die Fluoreszenz (780/795 nm) wurde durch zwei Bandpassfilter vom 420 nm Hintergrund getrennt. Rechts sind die Maxima der Fluoreszenzmessung über der Reservoirtemperatur aufgetragen.

# 14 Fazit und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit sollte der FWM-Prozess, unter Verwendung der 6P-Zustände in Rubidium, für eine maximale Photonenausbeute optimiert werden. Der FWM-Prozess findet dabei innerhalb einer keilförmigen Glaszelle statt. Somit kann in Zelldicken zwischen Null und ca 200  $\mu\text{m}$  experimentiert werden. Um die Photonenausbeute des FWM-Prozesses zu optimieren, wurde zu Beginn dieser Arbeit in einem Zellbereich, größer als die Rydbergblockade ( $> 5 \mu\text{m}$ ), gemessen. Für höhere Reservoirtemperaturen konnte die Photonenausbeute in einem gewissen Umfang erhöht werden. Bei Erhöhung der Reservoirtemperatur auf über 300 °C treten jedoch irreversible Beschädigungen an der Zelle auf. Die Hitzebeständigkeit des Experiments limitieren daher das Optimierungspotential durch Temperaturerhöhung. Im weiteren Verlauf wurde eine optimierte Pulsabfolge für die Anregungslaser implementiert. Die effektive Messdauer konnte verringert werden, indem der Grundzustandslaser mit 200 kHz und die Rydbergglaser mit 100 kHz gepulst werden. Somit kann für jede Messung der Hintergrund mit aufgenommen werden. Eine noch höhere Pulsfrequenz würde die Messdauer weiter reduzieren. Die zur Erzeugung der Pulse des Grundzustandslaser genutzte Pockelszelle ist hier jedoch auf 200 kHz limitiert. Für einen Zellbereich kleiner als die Rydbergblockade wurde der Versuch unternommen, die Photonenstatistik, der durch den FWM-Prozess erzeugten 420,3 nm Photonen zu messen. Die Photonen wurden dafür in ein Hanbury-Brown-Twiss Interferometer eingekoppelt, mit welchem die  $g^{(2)}$ -Korrelation gemessen werden kann. Über die  $g^{(2)}$ -Korrelation kann der nicht-klassische Charakter eines Photonenemitters quantifiziert werden. Innerhalb dieser Arbeit war es jedoch nicht möglich eine Korrelationsmessung aufzunehmen, welche einen solchen nicht-klassischen Charakter belegt. Grund dafür ist die weiterhin zu geringe Photonenausbeute und die zunehmende Degradierung der verwendeten Zellen. Eine Abschätzung zeigt, dass lediglich jeder 25000ste Puls zu einem detektierten Photon führt, was einer Effizienz von  $\eta = 0,00004$  entspricht. Zur Ursachenfindung wurde eine Gesamtbilanz aller im Experiment auftretenden Effizienzen aufgestellt. Dabei fiel auf, dass das bislang als überlegen angenommene Anregungsschema, eine zusätzliche Minderung der Photonenausbeute hervorruft. Innerhalb des verwendeten Anregungsschema fungiert der  $6P_{3/2}$  Zustand als Zielzustand, von welchem aus die Photonenemission stattfindet. Nicht berücksichtigt wurde dabei das Branchingratio dieses Zustands. Dieses führt zu einem deutlich wahrscheinlicheren Zerfall über die 5P-Zustände. Im Rahmen der realisierbaren Temperaturen, kann für den  $6P_{3/2}$  Zustand keine ausreichend hohe optische Dichte erzeugt werden, um eine kollektive Photonenemission zu begünstigen. Neben der ohnehin niedrigen Effizienz aufgrund geringer Detektionsraten im blauen Wellenlängenbereich, führt das Branchingratio des  $6P_{3/2}$  Zustands in doppelter Hinsicht zu

einer Reduktion der Photonenausbeute. Einen Lösungsansatz bietet die Anpassung des Anregungsschemas. Durch die Erweiterung des bestehenden Schemas um einen nicht-resonanten Zwei-Photonen-Übergang mittels eines 1822 nm Lasers, vom  $6P_{3/2}$  in den  $5P_{3/2}$  Zustand, wird das Branchingratio umgangen. Für den Übergang vom  $5P_{3/2}$  in den Grundzustand, kann eine ausreichend hohe optische Dichte für eine kollektive Photonenemission erreicht werden. Darüber hinaus verbessert sich für die dann emittierten 780/795 nm Photonen sowohl die Effizienz der Filterung, als auch die Detektionsrate. Um zu verifizieren, ob eine solche Anpassung des Anregungsschemas möglich ist, wurden anhand von Zwei- und Drei-Niveau Simulationen die entsprechenden erlaubten Übergänge untersucht. Für den 1822 nm Laser bestehen, ausgehend von den vier Zuständen des FWM-Prozess, keine relevanten Ein- oder Zwei-Photonen-Resonanzen. Zusätzlich zeigen die Simulationen, dass mittels des erzielten Zwei-Photonen-Übergangs ein hinreichend großer Anteil der Population in den  $5P_{3/2}$  transferiert werden kann. Für eine Laserintensität von 10 W wird zudem eine ausreichend große Rabi-Frequenz erreicht, sodass der Transfer hinreichend schnell abläuft. Eine Erweiterung des Anregungsschemas durch einen solchen Zwei-Photonen-Übergang erscheint daher als vielversprechender Ansatz für eine Optimierung der Photonenausbeute. Ein dementsprechend angepasstes Lasersystem ist allerdings nicht sofort verfügbar. Aufgrund des Branchingratios des  $6P_{3/2}$  Zustands ist die spontane Emission von Photonen über die Zerfallskanäle der 5P-Zustände bei 780/795 nm deutlich wahrscheinlicher. Im letzten Teil dieser Arbeit wurden daher vorbereitende Messungen und Umbauten am Experiment vorgenommen, um zukünftig sowohl Photonen bei 420 nm als auch bei 780/795 nm zeitgleich zu detektieren. Durch die somit deutlich höhere Photonenausbeute, sollte der nicht-klassische Charakter des Emitters messbar werden. Da zu diesem Zeitpunkt der Arbeit keine intakte Zelle mehr verfügbar war, konnte keine weitere Messung der Photonenstatistik aufgenommen werden. Eine Abschätzung aller im Experiment auftretenden Effizienzen zeigt jedoch, dass für die 780/795 nm Photonen eine ca. 500 mal höhere Photonenausbeute erwartet werden kann.

# **Teil IV**

## **Anhang**

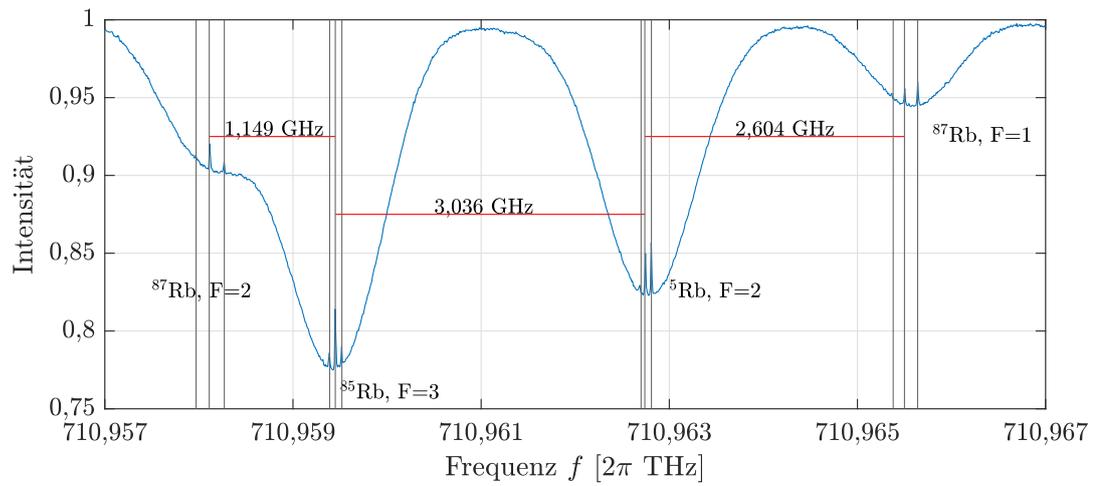


Abbildung 14.1: Sättigungsspektroskopie für den  $5S_{1/2} \rightarrow 6P_{1/2}$  Übergang.

# Literatur

- [1] F. Arute et.al. *Quantum supremacy using a programmable superconducting processor*. Nature 574(7779), 505–510, 2019.
- [2] Laflamme Knill E. *A scheme for efficient quantum computation with linear optics*. Nature 409, 46–52, 2001.
- [3] T. Michler et.al. *A quantum dot single-photon turnstile device*. Science, vol. 290, no. 5500, pp. 2282–2285, 2000.
- [4] C. Kurtsiefer et.al. *table solid-state source of single photons*. Phys. Rev. Lett., vol. 85, pp. 290–293, 2000.
- [5] M. D. Lukin et.al. *Dipole blockade and quantum information processing in mesoscopic atomic ensembles*. Physical review letters, 87(3):037901, 2001.
- [6] F. Ripka. *A Single-Photon Source Based on Strongly Interacting Thermal Rydberg Atoms*. Dissertation, Universität Stuttgart, 2013.
- [7] F. Christaller et.al. *Transient Density-Induced Dipolar Interactions in a Thin Vapor Cell*. Phys. Rev. Lett. 128, 173401, 2022.
- [8] J. Weiner et.al. *Light-Matter Interaction*. Oxford University Press, 2017.
- [9] D. A. Steck. *Rubidium 85 D Line Data*. 2008. URL: <http://www.steck.us/alkalidata>. (accessed: 10.11.2023).
- [10] C. Foot et.al. *Atomic Physics*. Oxford Master Series in Physics, OUP Oxford, 2005.
- [11] D. A. Steck. *Rubidium 87 D Line Data*. 2008. URL: <http://www.steck.us/alkalidata>. (accessed: 10.11.2023).
- [12] M. Seltenreich. *Eigenschaften eines digitalen, vielseitigen und erweiterbaren Systems zur Laserfrequenzstabilisierung*. Bachelorarbeit, Universität Stuttgart, 2021.
- [13] E. D. Black et.al. *An introduction to pound–drever–hall laser frequency stabilization*. American Journal of Physics, vol. 69, no. 1, pp. 79–87, 2001.
- [14] A. Belz. *Towards a high repetition single-photon source using a Rydberg blockade in a vapor cell*. Masterarbeit, Universität Stuttgart, 2021.
- [15] F. Moumtilis. *Enhancing optical densities in vapour cells by light induced atomic desorption with nanosecond pulses*. Masterarbeit, Universität Stuttgart, 2021.
- [16] T. Rieger et.al. *Doppler-Free Saturation Spectroscopy*. Max-Planck-Institut für Quantenoptik, Garching.

- [17] S.Koppenhöfer. *Charakterisierung eines Lasersystems bei 420 nm zur Durchführung eines Experiments mit einzelnen Photonen*. Bachelorarbeit, Universität Stuttgart, 2020.
- [18] J. A. Dobrowolski et.al. *Optical thin film synthesis program based on the use of Fourier transforms*. Optica Publishing Group, 1978.
- [19] J. Reuter et.al. *Analyzing the collective emission of a single-photon source based on an ensemble of thermal Rydberg atoms*. arxiv, 2023.
- [20] E. A. Guggenheim. *The theoretical basis of Raoult's law*. Bd. 33. The Royal Society of Chemistry, 1937, S. 151–156. DOI: 10.1039/TF9373300151. URL: <http://dx.doi.org/10.1039/TF9373300151>.
- [21] R. Beuc. *Absorption spectroscopy of the rubidium dimer in an overheated vapor: An accurate check of molecular structure and dynamics*. Phys. Rev. A 75, 032512, 2007.
- [22] *ARC documentation*. URL: <https://arc-alkali-rydberg-calculator.readthedocs.io/en/latest/>. (accessed: 16.11.2023).

# Danksagung

Zuerst möchte ich mich an dieser Stelle bei Prof. Dr. Tilman Pfau bedanken, mir die Durchführung meiner Masterarbeit am 5. Physikalischen Institut ermöglicht zu haben.

Zusätzlich gilt mein Dank Prof. Dr. Harald Gießen für seine Rolle als Mitberichter und die hilfreiche Zusammenarbeit mit dem 4. Physikalischen Institut.

Weiter bedanke ich mich bei Robert Löw, welcher das Experiment und damit auch diese Arbeit, mit zahlreichen Hilfestellungen und Anregungen vorangebracht hat.

Ein besonderer Dank gilt Max Mäusezahl, für seine unermüdliche Hilfsbereitschaft und die Betreuung bei dieser Arbeit. Ein solcher Einsatz ist keines Falls selbstverständlich.

Zudem gilt mein Dank Felix Mounsilis für die Betreuung und die gemeinsamen Stunden im Labor, mit so manchen erfrischenden Gesprächen.

Ein weiteres Dankeschön gilt Annika Belz für den moralischen Beistand und die vielen Unterhaltungen am frühen Morgen, durch die so mancher Tag erträglicher wurde.

Darüber hinaus bedanke ich mich bei allen Mitgliedern der Dartliga des 5. Physikalischen Institut, namentlich Annika Belz, Matthias Schmidt, Max Mäusezahl, Felix Mounsilis, Robin Klöpfer, Lara Metzger und Kai, für die unterhaltsamen Mittagspausen, die grandiosen Turniere und für das neue Hobby.

Darüber hinaus bedanke ich mich bei Fabian Munkes und den restlichen Mitgliedern des 5. Physikalischen Instituts für die stets angenehme Arbeitsatmosphäre und die Hilfsbereitschaft in allen Belangen.

Und nicht zuletzt gilt mein Dank meinen Freunden Niklas Fuchs, Max Steindl, Jonah Heiler, Tobias Vičánek Martínez, Kim Kappl, meiner Freundin sowie meinen Eltern und meinem Bruder, ohne deren Unterstützung in allen Belangen mein Studium und diese Arbeit so nicht möglich gewesen wäre.