

# Atome und Moleküle unter Kontrolle

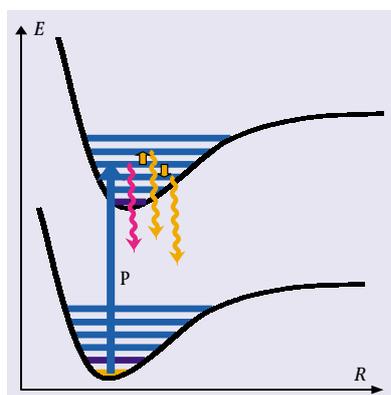
## Stimulierte Raman-Streuung mit adiabatischer Passage (STIRAP)

Klaas Bergmann

**Der Wunsch, Atome und Moleküle durch Laserstrahlung zu manipulieren oder zu kontrollieren, ist fast so alt wie der Laser selbst. Heute lassen sich Atome und Moleküle mit Lasern in nahezu beliebigen Quantenzuständen oder deren Überlagerungen präparieren. Der Weg dahin war spannend. Über die in Kaiserslautern zurückgelegte Strecke wird in diesem Artikel berichtet.**

Die ersten Versuche, Atome in einzelnen Quantenzuständen zu präparieren, wurden lange vor der Erfindung des Lasers unternommen. Mit dem Stern-Gerlach-Versuch gelang es, z. B. Atome mit unterschiedlicher Spin-Ausrichtung räumlich zu trennen [1]. Mit inhomogenen elektrostatischen Multipolfeldern wurden später Moleküle in einzelnen Drehimpuls-niveaus auf eine enge Blendenöffnung nahe der Molekularstrahlachse fokussiert und dadurch von Molekülen in anderen Zuständen separiert [2]. Bereits Ende der 60er-Jahre, also bald nach Erfindung des Lasers, gelang es erstmals mit Laserstrahlung, einzelne Niveaus elektronisch angeregter Moleküle zu besetzen (Abb. 1). Aus der Fluoreszenz lassen sich mit zuvor ungeahnter Genauigkeit Aussagen über die Molekülpotentiale gewinnen. Durch Stoßprozesse wurden andere Niveaus besetzt. Dadurch tauchten weitere Spektrallinien im Spektrum der Fluoreszenz auf, aus deren Frequenz, Polarisation und Intensität Neues über die Stoßprozesse zu erfahren war [3]. Die Präparation der elektronisch angeregten Niveaus und der Nachweis der stoßinduzierten Umbesetzung war, aus heutiger Sicht, sehr einfach.

Die Auswahl einzelner Quantenzustände aus der Vielfalt thermisch besetzter Niveaus im elektronischen Grundzustand war eine größere Herausforderung. Die Markierung einzelner Zustände gelang über selektive Entvölkerung durch optisches Pumpen [4], einem Verfahren, das für Streuprozesse aus thermisch besetzten Niveaus eingesetzt werden kann. Es erlaubt jedoch keinen Zugang zu Stoßprozessen aus hoch schwingungsangeregten Niveaus, die für die Atmosphären- und die Plasma-Chemie von großer Bedeutung sind. Daher drängte sich als nächstes Ziel die Entwicklung eines Laserverfahrens auf, durch welches sich ein vorgegebenes höher liegendes unbesetztes Niveau im elektronischen Grundzustand effizient und selektiv bevölkern lässt. Keine der um 1980 bekannten Methoden erfüllte



**Abb. 1:** Laserzustandsselektion um 1970: Mit einem schmalbandigen Laser wird ein einzelnes Schwingungs-Rotations-Niveau in einem elektronisch angeregten Zustand besetzt. Durch Stöße werden Nachbarniveaus bevölkert. Aus den stoßinduzierten Spektrallinien lässt sich viel über den Stoßprozess lernen.

die Anforderungen. Die Suche führte nach interessanten Umwegen im Jahr 1987 zu einem ersten wichtigen Etappenziel und 1990 zur Vorstellung der Grundzüge des STIRAP-Verfahrens (Stimulierte Raman-Streuung mit Adiabatischer Passage) in Theorie und Experiment [5], das inzwischen in vielfältiger Weise weiterentwickelt worden ist.<sup>1)</sup>

### Der Weg zu STIRAP über den Düsenstrahl-Laser

Die direkte Anregung eines zweiatomigen Moleküls aus dem Vibrationsgrundzustand  $v''=0$  nach  $v'' \gg 1$  ist entweder durch Auswahlregeln verboten oder wegen zu geringer Übergangswahrscheinlichkeit nicht realisierbar. Der Einsatz eines Raman-Prozesses, bei dem Start- und Zielzustand über ein elektronisch angeregtes Niveau durch Laser gekoppelt werden, erschien vielversprechend. Ein solcher Raman-Prozess war Grundlage des damals gerade entwickelten optisch gepumpten Dimeren-Lasers mit Alkali-Molekülen in einer Heatpipe als Verstärkungsmedium [6]. Auf den ersten Blick erschien die Frage, ob ein solcher Laser auch mit einem Molekularstrahl als Verstärkungsmedium betrieben werden kann, verwegen. Die geometrische Länge und die Teilchendichte in einer Heatpipe sind sehr viel größer als in einem Düsenstrahl. Eine Abschätzung zeigte jedoch, dass die starke Abkühlung der inneren Freiheitsgrade bei der Düsenstrahl-Expansion (auf etwa 40 K) eine hohe Konzentration der Besetzung auf nur wenige niedrig liegende Zustände bewirkt. Die Gesamtzahl der Teilchen, die im Molekularstrahl am Laserprozess teilnehmen können, ist daher wesentlich höher als in einer typischen Heatpipe. Die technischen Schwierigkeiten bestanden darin, einen Resonator um

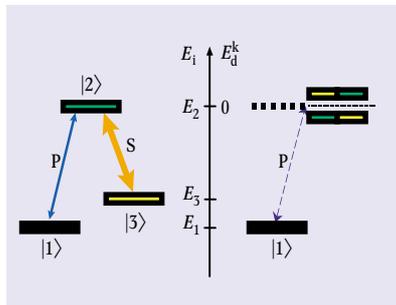
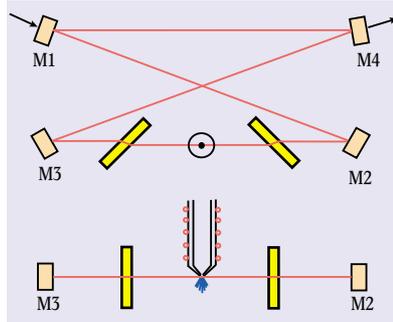
<sup>1)</sup> Eine kommentierte Übersicht über Arbeiten zum STIRAP-Verfahren findet sich [www.physik.uni-kl.de/bergmann](http://www.physik.uni-kl.de/bergmann) (siehe dort unter „Publikationen“, dann „STIRAP-Arbeiten“).

Prof. Dr. Klaas Bergmann, Fachbereich Physik, Universität Kaiserslautern, 67663 Kaiserslautern – Festvortrag anlässlich der Verleihung des Robert-Wichard-Pohl-Preises auf der 67. Physikertagung in Hannover.

den Düsenstrahl, der im Vakuum aus einem etwa 1000 K heißen Molekularstrahlofen strömt, zu bauen. Nachdem die überwinden waren, gelang die Realisierung eines Düsenstrahl-Lasers (Abb. 2) [7].

Die Moleküle im Teilchenstrahl befinden sich vor Eintritt in den Resonator mit Pump- und Raman-Laserfeld im Schwingungsgrundzustand  $v''=0$ . Im Resonator werden Moleküle durch Absorption eines Photons des Pumpasers in ein elektronisches Niveau angeregt und von dort durch das Raman-Laserfeld zur Rückkehr in einen angeregten Zustand, z. B.  $v'' \gg 1$ , im elektronischen Grundzustand veranlasst. Die Moleküle tragen

**Abb. 2:** Anordnung für einen optisch gepumpten Raman-Laser, dessen aktives Medium Moleküle in einem Molekularstrahl sind. Der obere Teil zeigt den Resonator mit den Spiegeln M1 – M4, der um eine Vakuumkammer positioniert ist. Die Trennung zwischen Vakuum und Außenbereich geschieht durch die schematisch gezeigten Brewster-Fenster. Der Düsenstrahl verläuft senkrecht zur Zeichenebene. Der untere Teil zeigt eine um 90° gedrehte Sicht. Der Düsenstrahl verläuft hier in der Zeichenebene.



**Abb. 3:** Ein Drei-Niveau-System ohne Einwirkung der Laser (*bare states*, linker Teil) sowie Eigenzustände des durch Strahlung gekoppelten Systems (*dressed states*, rechter Teil). In der Darstellung wird die spezielle Situation: starke Kopplung der Niveaus 2 und 3, schwache Kopplung der Niveaus 1 und 2 betont. Da im *dressed state* die Kopplungen nicht direkt erkennbar sind, ist auch im rechten Teil das Niveau 1 gezeigt.

dadurch ein weiteres Photon zum Raman-Laserfeld bei. Spektralfilter im Resonator begrenzen den Laserprozess auf einen schmalen Bereich um die Emissionslinie in den gewählten Zielzustand  $v''$ . Die am Laserprozess beteiligten Moleküle verlassen den Resonator in diesem Zustand. Messungen ergaben, dass die Anregungswahrscheinlichkeit aus  $v''=0$  beim Durchflug durch den Resonator zwar höher war als bei anderen Methoden [8]. Die Hoffnungen auf eine Effizienz von nahe 100 % erfüllte sich jedoch nicht.

Die folgende Überlegung führte schließlich zu dem Vorschlag, den Raman-Prozess nicht mit einem optisch gepumpten Raman-Laser, sondern mit zwei extern eingestrahnten, räumlich versetzten Lasern zu induzieren. Im Düsenstrahl-Laser-Experiment verlaufen der Pumpaser und der Raman-Laser auf der Achse des Resonators. Die Moleküle dringen zunächst in die Flanken der Profile der Laserstrahlen ein. Der Pumpaser regt die Moleküle elektronisch an. Die Intensität des Raman-Lasers ist in diesem Bereich noch gering. Die stimulierte Emission bzw. die Zwei-Photonen-Raman-Kopplung zwischen Start- und Zielniveau kann nicht erfolgreich mit der spontanen Emission konkurrieren. Moleküle gehen daher durch spontane Emission in andere Vibrationszustände verloren. Nur diejenigen Moleküle, welche den Bereich nahe der Achse des Resonators im Zustand  $v''=0$  erreichen, erfahren gleichzeitig ein starkes Pump- und Raman-Laserfeld. Sie werden unter Emission eines Photons in das Zielniveau  $v''$  transferiert und tragen damit zum Erhalt des Raman-Laserfeldes bei.

Beim Verlassen des Resonators durchqueren die Moleküle wiederum die Flanke des Raman-Laserprofils. Die zuvor in das Zielniveau  $v''$  transferierten Teilchen können ein Photon des Raman-Lasers absorbieren, also aus diesem Zustand wieder verloren gehen. Der Raman-Laser (nachfolgend auch Stokes-Laser genannt) wird durch den Pumpaser induziert und ist daher räumlich eng mit diesem verknüpft. Für die Änderung der räumlichen Anordnung der Profile der beiden Laserstrahlen bleibt beim Düsenstrahl-Laser nur geringer Spielraum.

Wenn hingegen die Achse eines extern eingestrahnten zweiten Lasers (des Stokes-Lasers) weg von der Achse des Pumpasers in Richtung auf die anfliegenden Moleküle verschoben wird, befinden sich die Moleküle bereits in einem starken Stokes-Feld, wenn sie in die Flanke des Profils des Pumpasers eindringen. Daher kann der stimulierte Prozess erfolgreich mit der spontanen Emission konkurrieren. Weiterhin ist die Wahrscheinlichkeit für unerwünschte Rückpump-Prozesse aus dem Niveau  $v''$  beim Verlassen des Resonators geringer, da in diesem Bereich die Intensität des Stokes-Lasers klein ist. Diese Überlegungen führten schließlich auf den erfolgreichen experimentellen Ansatz des STIRAP-Verfahrens, auch wenn sie die Physik des Prozesses nicht vollständig beschreiben. Die korrekte physikalische Beschreibung des Prozesses folgte kurz nachdem die ersten experimentellen Ergebnisse über eine Transferwahrscheinlichkeit von nahezu 100 % vorlagen [9]. Später zeigte sich, dass Überlegungen für die theoretische Beschreibung dieses effizienten Transferprozesses bereits in [10] zu finden sind.

### Autler-Townes-Aufspaltung: ein physikalischer Baustein des STIRAP-Prozesses

Ein wesentlicher Baustein des STIRAP-Prozesses ist die Autler-Townes-Aufspaltung, die charakteristisch für die resonante oder nahezu resonante Wechselwirkung eines kohärenten Strahlungsfeldes mit einem Zwei-Niveau-System ist. Diese Aufspaltung wird durch starke Kopplung eines Niveau-Paares über ein kohärentes Strahlungsfeld verursacht (siehe Abb. 3). Sie lässt sich im so genannten *dressed state*-Bild erläutern (siehe Infokasten „Teilchenzustände, dressed states und Überlagerungszustände“). Abbildung 4 zeigt einen experimentellen Nachweis. Die Aufspaltung ist gegeben durch die Rabi-Frequenz  $\Omega_L$ , mit der die Besetzung zwischen den beiden Niveaus  $i$  und  $k$  hin- und her getrieben wird, wobei  $\Omega_L = \mu_{ik} E_L / \hbar$  und  $\mu_{ik}$  das Übergangsdipolmatrixelement sowie  $E_L$  die Feldstärke des Lasers L ist.

Eine interessante und für den STIRAP-Prozess wichtige Besonderheit dieses „Autler-Townes-Doublets“ wird sichtbar, wenn man die Aufspaltung vermisst, indem man aus einem weiteren Niveau 1 anregt (siehe Abb. 3). Ohne Einwirkung des Lasers S wird man bei Verstimmung der Frequenz  $\omega_p$  des Pumpasers P über die Resonanz-Frequenz  $\omega_{12}$  ein durch Sättigung verbreitertes Absorptionsprofil finden. Bei Einwirkung eines intensiven Lasers S könnte man die Überlagerung zweier Profile, deren Zentralfrequenzen den Abstand  $\Omega_S$  haben, erwarten. Dieser erwartete Verlauf ist in Abb. 4 als rote Kurve dargestellt. Die Frequenz  $\omega_S$  des Stokes-Lasers ist hier auf die Resonanz  $\omega_{23}$  abgestimmt. Die Messung (schwarze Kurve) stimmt in den äußeren Flanken des Profils mit dem erwarteten Profil überein. In der Mitte zwischen den Maxima zeigt die Messung jedoch, dass die Absorptionswahrscheinlichkeit ver-

schwindet. Diese Beobachtung ist eng mit dem als elektromagnetisch-induzierte Transparenz (EIT) bekannten Phänomen verbunden [11]. Sie ist wesentlich für das Verständnis des STIRAP-Prozesses. Das Absorptionsprofil ergibt sich nämlich nicht als Überlagerung zweier unabhängiger Profile, da die Autler-Townes-Doublets nicht Eigenzustände des freien Teilchens sind, sondern durch kohärente Wechselwirkung erzeugt werden. Zwischen den Übergangsmatrixelementen vom Niveau 1 in die Komponenten des Doublets besteht daher eine feste Phasenbeziehung. Diese ist dafür verantwortlich, dass die Übergangsamplituden auf der Mittenfrequenz zwischen den Doublets destruktiv interferieren. Die Anregungswahrscheinlichkeit verschwindet.

### Die fünf Phasen des STIRAP-Prozesses

Die Teilchen befinden sich alle im Niveau 1 (Abb. 3), wenn sie in die Laserstrahlen einfliegen. Nach dem Durchflug durch die Laserstrahlen sollen *alle* Teilchen in das Niveau 3 transferiert worden sein. Die zeitlichen Entwicklung der *dressed states*, die wesentlich für das Verständnis des Transferprozesses ist, lässt sich in fünf charakteristische Phasen einteilen (Abb. 5):

► In der **Phase 1** wirkt nur der Stokes-Laser auf die Teilchen ein. Dieser Laser koppelt die Niveaus 2 und 3, die keine Besetzung tragen. Eine Kopplung zum besetzten Niveau 1 besteht noch nicht. Da  $\Omega_p = 0$  ist, wird keine Besetzung aus dem Zustand 1 entfernt. Dennoch ist die frühe Einwirkung des Stokes-Laser wichtig. Sie sorgt für die Induzierung einer Autler-Townes Aufspaltung im Niveau-Paar 2–3.

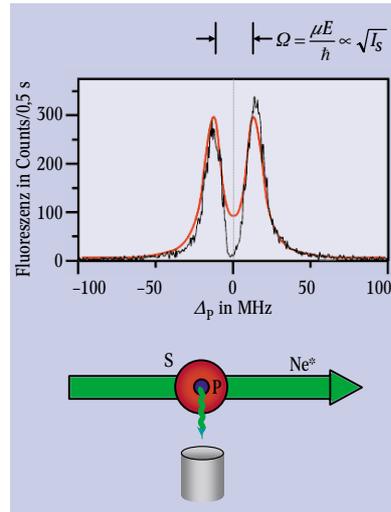
► In der **Phase 2** ist die Intensität des Stokes-Laser schon relativ hoch, die Autler-Townes-Aufspaltung also bereits groß. Die Intensität des Pumplasers ist zwar noch gering, würde aber ohne Anwesenheit des Stokes-Lasers ausreichen, um Übergänge zwischen den Niveaus 1 und 2 zu induzieren.

Die nach 2 angeregten Teilchen würden durch spontane Emission in andere Niveaus übergehen, also aus dem Drei-Niveau-System verloren gehen. Durch die Autler-Townes-Aufspaltung im Niveau-Paar 2–3 ist jedoch, wie oben beschrieben (siehe Abb. 3 und 4), die Absorptionswahrscheinlichkeit für Photonen des Pumplasers auf dem Übergang 1–2 verschwindend klein. Die frühe Einwirkung des Stokes-Laser ist also dafür verantwortlich, dass der kurzlebige Zustand 2 nicht besetzt wird. Der Pumplaser stellt in dieser Phase gemeinsam mit dem Stokes-Laser eine Zwei-Photonen-Kopplung zwischen den Niveaus 1 und 3, vermittelt über das Niveau 2, her. In der Phase 2 beginnt der Besetzungstransfer aus dem Start- in das Zielniveau.

► In der **Phase 3** sind die Intensitäten beider Laser groß. Die Rabi-Frequenz  $\Omega_S$  sinkt von dem maximal erreichten Wert  $\Omega_{0,S}$  ab, die Rabi-Frequenz  $\Omega_P$  steigt auf den maximalen

Wert  $\Omega_{0,P}$  an. Die Kopplung durch die beiden kohärenten Strahlungsfelder führt auf einen Überlagerungszustand (siehe Infokasten)  $|a^0\rangle = \cos\Theta |1\rangle - \sin\Theta |3\rangle$ , der keinen Anteil des zerfallenden Zustandes  $|2\rangle$  enthält. Daher wird  $|a^0\rangle$  als Dunkelzustand bezeichnet. Die zeitliche Entwicklung des Mischungswinkels  $\tan\Theta = \Omega_P/\Omega_S$  wird durch das Verhältnis der beiden Rabi-Frequenzen  $\Omega_P$  und  $\Omega_S$  bestimmt. Er steigt von  $\Theta \approx 0$  zu Beginn auf  $\Theta \approx \pi/2$  am Ende der Phase 3. In dieser Phase findet also der wesentliche Teil des Besetzungstrfers statt.

► In der **Phase 4** vertauschen Stokes- und Pumplaser, im Vergleich zur Phase 2, ihre Rollen. Die Besetzung ist bereits weitgehend in den Zielzustand transferiert. Die Intensität des Stokes-Lasers ist zwar gering, aber



**Abb. 4:** Nachweis der Unterdrückung der Absorption durch elektromagnetisch induzierte Transparenz. Der Stokes-Laser ist auf die Resonanzfrequenz  $\omega_{23}$  abgestimmt und vermittelt eine starke Kopplung der Niveaus 2 und 3 (siehe Abb. 3). Der Pumplaser, hier als Nachweislaser wirkend, verläuft im Zentrum des Stokes-Lasers und vermittelt eine schwache Ankopplung des Niveaus 1. Die Absorptionslinie spaltet in die beiden Autler-Townes-Komponenten im Abstand der Rabi-Frequenz  $\Omega_S$  auf. Man beobachtet in der Mitte der Struktur eine signifikante Abweichung von dem Profil, welches sich als Überlagerung zweier Lorentz-Profile (rote Linie) ergeben würde. Wenn die Frequenz  $\omega_p$  des Pumplasers auf die Resonanzfrequenz  $\omega_{12}$  abgestimmt wird, ist die Absorption null.

### Teilchenzustände, *dressed states* und Überlagerungszustände

Die Wechselwirkung kohärenter Strahlungsfelder mit Mehrniveausystemen wird häufig im Bild der so genannten *dressed states*  $|a^k\rangle$  dargestellt. Die *dressed states* gehen aus den Teilchenzuständen  $|i\rangle$  des Systems ohne Strahlungseinwirkung (*bare states*) durch Einbeziehung der Energie derjenigen Photonen, die absorbiert oder emittiert werden, sowie der Wechselwirkungsenergie  $\hbar\Omega_L = \mu_{ij} E_L$  des Lasers L mit dem Niveaupaar  $|i\rangle$  und  $|j\rangle$  hervor.

Die beiden *dressed states*  $|a^{+-}\rangle$  eines durch kohärente Strahlung gekoppelten Zwei-Niveau-Systems (s. Abb. 2) lassen sich als Linearkombination der Teilchenzustände  $|3\rangle$  und  $|2\rangle$  darstellen. Wenn die Laserfrequenz  $\omega_L$  auf die Resonanz  $\omega_{23}$  des Überganges abgestimmt ist, gilt

$$|a^+\rangle = (1/\sqrt{2})(|3\rangle + |2\rangle)$$

$$|a^-\rangle = (1/\sqrt{2})(|3\rangle - |2\rangle).$$

Die Differenz der Energien dieser Zustände  $|E^+ - E^-| = \hbar\Omega_L$  ist die Autler-Townes-Aufspaltung.

Die *dressed states* eines durch zwei Strahlungsfelder S und P gekoppelten Drei-Niveau-Systems und deren Energien sind bei Abstimmung der Laser auf die jeweilige Resonanzfrequenz ( $\omega_p = \omega_{12}$  und  $\omega_s = \omega_{23}$ )

$$|a^+\rangle = (1/\sqrt{2})(\sin\theta|1\rangle + |2\rangle + \cos\theta|3\rangle),$$

$$E^+ = \hbar\sqrt{\Omega_S^2 + \Omega_P^2}$$

$$|a^0\rangle = \cos\theta|1\rangle - \sin\theta|3\rangle, \quad E^0 = 0$$

$$|a^-\rangle = (1/\sqrt{2})(\sin\theta|3\rangle - |2\rangle + \cos\theta|3\rangle),$$

$$E^- = -\hbar\sqrt{\Omega_S^2 + \Omega_P^2},$$

wobei der Mischungswinkel  $\tan\Theta = \Omega_P/\Omega_S$  durch das Verhältnis der Rabi-Frequenzen gegeben ist. Die zeitliche Entwicklung dieses Mischungswinkels wird durch den räumlichen Versatz der Achsen der beiden Laserstrahlen kontrolliert.

Die *dressed states*  $|a^+\rangle$ ,  $|a^-\rangle$  und  $|a^0\rangle$  sind Lösungen der zeitunabhängigen Schrödinger-Gleichung  $H|a^k\rangle = E_k|a^k\rangle$  mit dem Hamilton-Operator (in der hier sehr gut erfüllten so genannten Drehwellen-Näherung)

$$H = (\hbar/2) \begin{pmatrix} 0 & \Omega_P & 0 \\ \Omega_P & 0 & \Omega_S \\ 0 & \Omega_S & 0 \end{pmatrix}.$$

Die Besetzungsverteilung im Drei-Niveau-System  $|i\rangle$  wird bestimmt durch den Zustandsvektor  $|\psi\rangle = \alpha_1|1\rangle + \alpha_2|2\rangle + \alpha_3|3\rangle$  mit den komplexen Amplituden  $\alpha_i$ . Dieser Zustandsvektor ergibt sich als Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung  $i\hbar|\dot{\psi}\rangle = H|\psi\rangle$ . Der Transfer ist effizient, falls der Prozess adiabatisch über  $|a^0(t)\rangle$  abläuft, d. h. wenn durchgängig  $|\psi(t)\rangle \approx |a^0(t)\rangle$  gilt.

Im Dreibein-Kopplungsschema (siehe Abb. 8) geschieht der Transfer nicht in einen einzelnen Zielzustand  $|3\rangle$ , sondern in zwei entartete Zustände  $|3^+\rangle$  und  $|3^-\rangle$ . In dieser Kopplung findet man zwei orthogonale Dunkelzustände

$$|a_1^0\rangle = \cos\theta |1\rangle - \sin\theta [\sin\Phi |3^-\rangle + \cos(\Phi)|3^+\rangle]$$

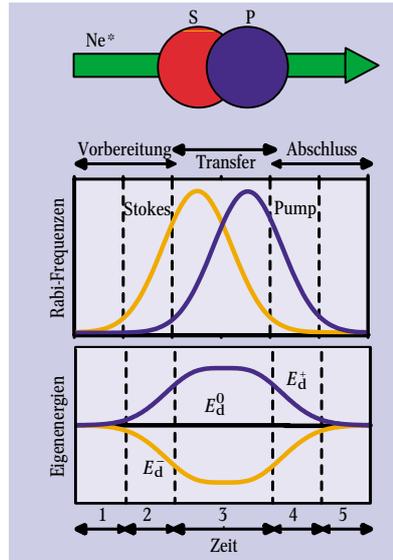
$$|a_2^0\rangle = \cos\Phi |3^-\rangle - \sin\Phi |3^+\rangle$$

mit den Mischungswinkeln

$$\Theta = \Omega_P/\sqrt{\Omega_{S+}^2 + \Omega_{S-}^2} \quad \text{und} \quad \tan\Phi = \Omega_{S+}/\Omega_{S-}.$$

noch nicht null. Ohne den weiterhin einwirkenden Pumplaser würde der Stokes-Laser die Teilchen aus Niveau 3 nach Niveau 2 anregen. Von dort würden sie durch spontane Emission aus dem Drei-Niveau-System verloren gehen. Die vom Pumplaser verursachte Autler-Townes-Aufspaltung im Niveaupaar 1-2 drückt jedoch die durch den Stokes-Laser induzierte Anre-

**Abb. 5:** Laserzustandsselektion um 1990. Die Atome eines Teilchenstrahles durchqueren zunächst eine Flanke des Stokes-Laser-Profiles (Kopplungsschema siehe Abb. 3), anschließend das Überlappgebiet beider Laser und schließlich eine Flanke des Pumplaser-Profiles. Der mittlere und untere Teil zeigt die Variation der Pump- und Stokes-Laser Rabi-Frequenz ( $\Omega_p$  und  $\Omega_s$ ) sowie die Variation der Energien der *dressed states*. Die horizontale Achse kann als Ortskoordinate (Vergleich mit oberem Teil des Bildes) aufgefasst werden oder aus der Sicht eines einzelnen Atoms, welches die Laserstrahlen mit der Geschwindigkeit  $u$  durchquert, als Zeit-Achse. Zur Einteilung in die Zonen 1 bis 5 siehe Text.



gungswahrscheinlichkeit auf einen verschwindend kleinen Wert. Die Einwirkung des Pumplasers schützt also die im Zielniveau etablierte Besetzung.

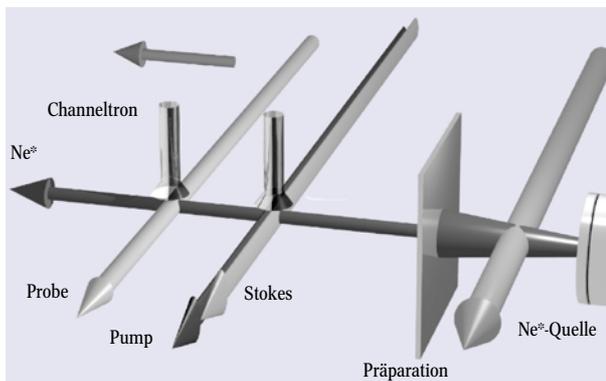
► In der **Phase 5** ist die Intensität des Stokes-Laser null. Eine Gefahr, Besetzung aus dem Zielzustand durch Anregung in das Niveau 2 zu verlieren, besteht nicht mehr. Die durch den Pumplaser noch bewirkte Aufspaltung im Niveaupaar 1-2 ist nicht mehr erforderlich. Die Intensität des Pumplasers kann auf null reduziert werden.

### Bedingung für adiabatische Entwicklung

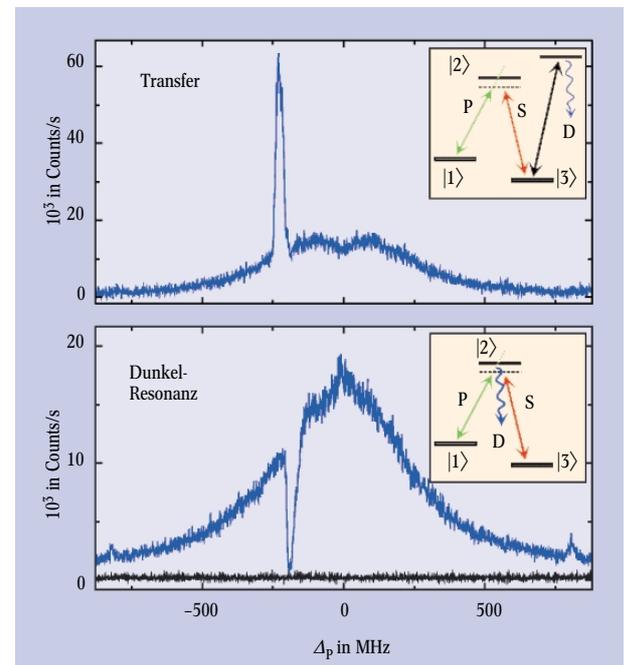
Der Transferprozess lässt sich auch im Bild von Zustandsvektoren im drei-dimensionalen Hilbert-Raum des Systems darstellen. Der Dunkelzustand dreht sich während des Transferprozesses aus der anfänglichen Richtung parallel zum Zustand  $|1\rangle$  (da  $\Theta = 0$ ) in die Richtung parallel zum Zustand  $|3\rangle$  (da  $\Theta = \pi/2$ ). Aus allgemeinen Überlegungen über die dynamische Entwicklung eines Systems mit zeitabhängiger Wechselwirkung lässt sich die Bedingung für adiabatische Entwicklung ermitteln. Sobald ein Hamilton-Operator zeitabhängig ist, kommt es grundsätzlich zu diabatischen Kopplungen zwischen den Eigenzuständen dieses Operators. Die hier unerwünschten diabatischen Kopplungen sind gering, wenn der energetische Abstand der Eigenwerte der benachbarten Eigenzustände – gegeben durch die Rabi-Frequenz  $\Omega_{\text{eff}} = (\Omega_S^2 + \Omega_P^2)^{1/2}$  groß ist (siehe Abb. 5) und wenn die zeitliche Änderung des Hamilton-Operators (bestimmt durch die Änderung des Mischungswinkels  $\Theta$ ) hinreichend langsam ist. Die mittlere Änderungsrate des Mischungswinkels ist  $\langle d\Theta/dt \rangle = \pi/2\Delta\tau$ , wobei  $\Delta\tau$  die Zeit für den Durchflug durch den Überlappbereich der Laserstrahlen ist. In dieser Zeit steigt der Winkel von  $\Theta = 0$  auf  $\Theta = \pi/2$  an. Die Entwicklung ist adiabatisch, wenn  $|\langle d\Theta/dt \rangle| \ll \Omega_{0,\text{eff}}$  gilt. Dies lässt sich mit den zuvor gemachten Angaben umformulieren zur Bedingung  $\Omega_{0,\text{eff}} \Delta\tau \gg 1$ .

### Die optimale Verzögerung

Die optimale Verzögerung  $\Delta t_{\text{opt}}$  ergibt sich aus der Forderung, dass einerseits in der Phase 1 des Transferprozesses (siehe Abb. 5) der Dunkelzustand  $|a^0\rangle$  identisch sein soll mit dem anfangs besetzten Zustand  $|1\rangle$  und andererseits in der Phase 3 die adiabatische Entwicklung gewährleistet ist. Die Entwicklung ist adiabatisch, wenn die Änderung des Mischungswinkels hinreichend langsam,  $|\langle d\Theta/dt \rangle| \ll \Omega_{0,\text{eff}}$  ist. Diese Bedingung ist trivial erfüllt, wenn die Achsen der Laserstrahlen *nicht* gegeneinander verschoben sind. Dann ist bei gleicher Profilform  $\tan\Theta = \Omega_P/\Omega_S \neq 0$  konstant, d. h.  $d\Theta/dt \equiv 0$ . In diesem Fall ist jedoch  $\Theta \neq 0$  und nur der Teil  $\cos^2\Theta$  der Besetzung aus dem Niveau 1



**Abb. 6:** Besetzungstransfer vom  $m=0$ -Zustand des metastabilen Niveaus 1 ( $^3P_0$ ) in den  $m=0$ -Zustand des metastabilen Niveaus 3 ( $^3P_2$ ) über das Niveau 2 ( $^3P_1$ ) des Ne-Atoms mit Dunkelresonanz (rechts). Pump- und Stokes-Laser werden durch Zylinderlinsen auf die Achse des Atomstrahls fokussiert (oben). Weitere Erläuterungen im Text.



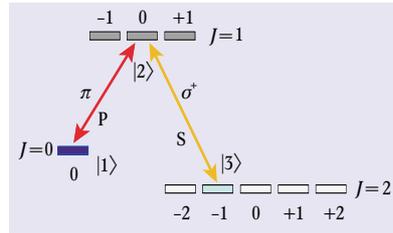
kann über den Dunkelzustand – und damit verlustfrei – transferiert werden. Die Bedingung, dass in Phase 1 der Mischungswinkel  $\Theta=0$  ist, wird umso besser erfüllt, je größer die Verschiebung der Laserstrahlen ist. Eine zu große Verschiebung hat jedoch einen kleinen Wert  $\Omega_{\text{eff}}$  im Zentrum der Zone 3 (Abb. 5) zur Folge, gefährdet also die adiabatische Entwicklung gerade in dem Bereich, in dem die Änderung von  $\Omega_P/\Omega_S$  maximal ist. Es lässt sich zeigen [5], dass eine Verschiebung der beiden Laser um die Breite ihrer Profile optimal ist. Es ist eine besonders attraktive Eigenschaft des STIRAP-Prozesses, dass weder kleine Variationen der Verschiebung noch der Laserintensitäten (bzw.  $\Omega_{0,\text{eff}}$ ) die Effizienz des Transferprozesses beeinträchtigen.

### Experimentelle Ergebnisse

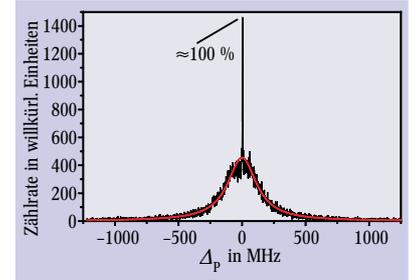
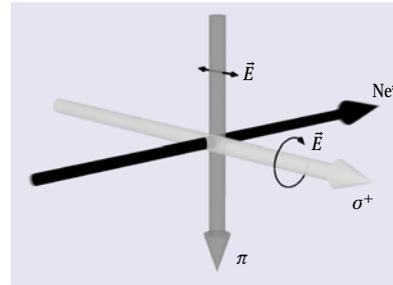
Aus dem vielfältigen Material (siehe [12]) können hier nur wenige Beispiele präsentiert werden. Abbildung 6 zeigt eine experimentelle Anordnung, mit welcher gleichzeitig der Transfer und die Dunkelresonanz beobachtet werden können. Ein Atomstrahl mit metastabilen Neon-Atomen wird in einer Gasentladung Quelle erzeugt. Beide metastabilen Niveaus  $^3P_0$  und  $^3P_2$  sind besetzt. Die Besetzung des Niveaus  $^3P_2$  wird durch optisches Pumpen dicht hinter der Düse entfernt. In der STIRAP-Zone wird die Besetzung des Niveaus 1 ( $^3P_0$ ) in das Niveau 3 ( $^3P_2$ ) transferiert. In dieser Zone wird die Emission aus dem zerfallenden Niveau 2 ( $^3P_1$ ) beobachtet. Eine kurze Wegstrecke weiter strahlwärts wird die Besetzung im Zielniveau 3 durch laserinduzierte Fluoreszenz nachgewiesen. Pump- und Stokes-Laser sind in der gleichen Richtung linear polarisiert. Daher sind am Transfer in allen drei Niveaus nur die Zustände mit der magnetischen Quantenzahl  $m=0$  beteiligt. Die Frequenz  $\omega_S$  des Stokes-Lasers war bei Aufnahme der in Abb. 6 gezeigten Daten nicht exakt auf die Übergangsfrequenz  $\omega_{23}$  abgestimmt. Die Frequenz  $\omega_P$  des Pumplasers wird über die Resonanz  $\omega_{12}$  verstimmt. Dabei wird das Niveau 2 besetzt. Durch spontanen Zerfall dieses Niveaus wird auch das Niveau 3 bevölkert. Diese Besetzung bzw. Emission ist im mittleren bzw. unteren Teil von Abb. 6 als durch Sättigung stark verbreiterte Absorptionslinie erkennbar. Auf der Zwei-Photonen-Resonanz ( $E_3 - E_1 = h\omega_{12} - h\omega_{23}$ ) sind die Voraussetzungen für den vollständigen Transfer gegeben. Die Emission aus dem Bereich der STIRAP-Zone zeigt eine Dunkelresonanz. Die Emission aus dem Niveau 2 wird unterbunden. Gleichzeitig steigt die Besetzung im Niveau 3 stark an.

Abbildung 7 zeigt ein weiteres Beispiel. Der Transfer wird mit einem linear polarisierten Pumplaser und einem zirkular polarisierten Stokes-Laser aus dem Niveau  $m=0$  im Niveau 1 ( $^3P_0$ ) in das Niveau  $m=-1$  des Niveaus 3 ( $^3P_2$ ) induziert (Abb. 7, oben). Die Ausbreitungsrichtungen und die Polarisation der Laser sind so gewählt (Abb. 7, Mitte), dass die Quantisierungsachse der  $m$ -Zustände für den Pump- und den Stokes-Übergang übereinstimmen. Die Frequenz  $\omega_S$  des Stokes-Lasers ist auf die Resonanz-Frequenz  $\omega_{23}$  für Übergänge zwischen dem Niveaupaar 2–3 abgestimmt. Die Frequenz  $\omega_P$  des Pumplasers wird über die Resonanz  $\omega_P = \omega_{12}$  für Übergänge zwischen dem Niveaupaar 1–2 verstimmt. Die Besetzung im Zielzustand wird durch einen weiteren Laser hinter der Transferzone<sup>2)</sup> nachgewiesen. Die breite Struktur im unteren Teil von Abb. 7 zeigt das stark sättigungsverbreiterte Anregungsspektrum. Durch Fluoreszenz aus diesem Niveau wird auch

das Zielniveau besetzt. Auf der Zwei-Photonen-Resonanz zwischen dem Niveaupaar 1–3 sind die Bedingungen für effizienten Transfer erfüllt. Man erkennt dies an der hohen schmalen Struktur bei  $\Delta_P = 0$ .



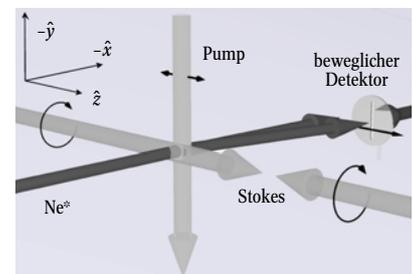
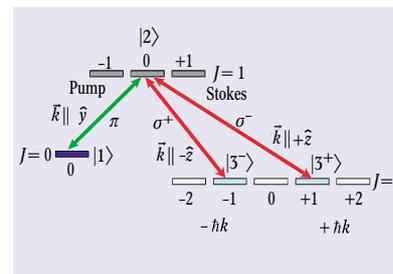
**Abb. 7:** Besetzungstransfer vom  $m=0$ -Zustand des metastabilen Niveaus 1 ( $^3P_0$ ) in den  $m=-1$ -Zustand des metastabilen Niveaus 3 ( $^3P_2$ ) über das Niveau 2 ( $^3P_1$ ) des Neon-Atoms (links). Der Pumplaser ist linear polarisiert und der Stokes-Laser ist zirkular polarisiert. Weitere Erläuterungen im Text.



### Dreibein-STIRAP

Eine interessante und vielseitige Erweiterung der STIRAP-Methode ist das so genannte Dreibein-Schema (Abb. 8). Das Niveau 2 ist nicht nur an einen einzelnen Quantenzustand, sondern an zwei Zustände gekoppelt, die entartet sein können. Dieses Kopplungsschema umfasst vier Niveaus (die drei metastabilen Niveaus 1,  $3^+$  und  $3^-$  des Neon-Atoms sowie das zerfallende Niveau 2) und drei Laserfelder, deren Wechselwirkung mit dem Quantensystem zeitlich gegeneinander verzögert erfolgt. Durch die Kopplungen entstehen zwei orthogonale Dunkelzustände, die im vierdimensionalen Hilbert-Raum dieses Systems einen zweidimensionalen Dunkel-Unterraum definieren. Zustandsvektoren in diesem Dunkel-Unterraum haben keine Beimischung des Zustandes  $|2\rangle$ , sind also immun gegen Verlust durch spontane Emission. Da hier drei Laser im Einsatz sind, lassen sich durch die Wahl der Verzögerung zwei Verhältnisse von Rabi-Frequenzen und daher zwei Mischungswinkel, z. B.  $\tan\Theta = \Omega_P / (\Omega_{S^+}^2 + \Omega_{S^-}^2)^{1/2}$  und  $\tan\Phi = \Omega_{S^+} / \Omega_{S^-}$ , kontrollieren. Durch den zeitlichen Verlauf des Winkels  $\Theta$  wird der Transfer aus Niveau 1 in die beiden Zielniveaus kontrolliert. Durch den Winkel  $\Phi$  wird die Aufteilung der Besetzung zwischen den

2) In Abb. 7, links unten, ist der weitere Laser nicht gezeigt.



**Abb. 8:** Dreibein-Kopplung zwischen dem  $m=0$ -Zustand des metastabilen Niveaus 1 ( $^3P_0$ ) in eine Überlagerung der  $m=-1$ - und  $m=+1$ -Zustände des metastabilen Niveaus 3 ( $^3P_2$ ) über das Niveau 2 ( $^3P_1$ ) des Neon-Atoms (links). Die  $\sigma^+$ - und  $\sigma^-$ -Strahlung treffen aus gegenläufigen Rich-

tungen ein (rechts). Daher kommt es durch den Transfer jeweils eines Photonenimpulses  $\hbar k$  in entgegengesetzter Richtung zu einer Aufspaltung der Komponenten des Überlagerungszustandes, die mit einem beweglichen Detektor nachgewiesen werden kann.

beiden Zielniveaus bestimmt. Wenn die beiden Stokes-Laser, wie in Abb. 8 gezeigt, aus entgegengesetzten Richtungen einlaufen, werden auf die Teilchen in den Zielniveaus Photonenimpulse in entgegengesetzter Richtung übertragen. Es kommt zu einer Aufspaltung, die mit einem beweglichen Detektor (siehe Abb. 8) nachgewiesen werden kann (Abb. 9) [13]. Der Beweis, dass es sich tatsächlich um eine kohärente Überlagerung der beiden Zielzustände handelt, ist in weiteren Experimenten ebenfalls gelungen. Im allgemeinen Fall, wenn nicht nur die Reihenfolge, in der die Teilchen die Laserstrahlen durchqueren, sondern auch die Breite der Laserstrahlprofile variiert wird, lassen sich beliebige kohärente Überlagerungszustände  $|\psi\rangle = \beta_1|1\rangle + \beta_{3+}|3+\rangle + \beta_{3-}|3-\rangle$  mit kontrollierten komplexen Amplituden  $\beta_i$  erzeugen. Die Wahl der zeitlichen Variation der Lasereinwirkung legt die Beträge von  $\beta_i$  fest. Die Phase von  $\beta_i$  wird durch die Wahl der relativen Phase der Laser bestimmt. Diese vielfältigen Möglichkeiten der Kontrolle sind für die Quanteninformationsverarbeitung von besonderem Interesse.

### Weitere STIRAP-Arbeiten

Der STIRAP-Prozess wurde bereits vielfach eingesetzt. Neben den hier diskutierten Lambda-Systemen wurden auch Leiter-Systeme und andere Mehrniveau-Systeme untersucht [12]. Das Verfahren wurde nicht nur mit kontinuierlichen, sondern auch mit gepulsten Lasern implementiert [14]. Die Verwendung gepulster Laser erlaubte den Einsatz von Zwei-Photonen-Übergängen zwischen den Niveaus 1 und 2. Der Transferprozess wurde für Atome (z. B.  $\text{Ne}^*$ ,  $\text{He}^*$ ), für zwei-atomige Moleküle (z. B.  $\text{Na}_2$ ,  $\text{NO}$ ) und für ein drei-atomiges Molekül ( $\text{SO}_2$ ) gezeigt. Auf der Basis des STIRAP-Verfahrens wurde neben dem diskutierten Konzept für Strahlteiler auch ein Kohärenz-erhaltender Spiegel für Materiewellen realisiert sowie neue Konzepte zur Etablierung von Verschränkung in Mehrteilchen-Systemen [15] oder für die Erzeugung von Fock-Zuständen in optischen Resonatoren hoher Güte entwickelt [12]. Schließlich wurde das ursprüngliche Ziel, die effiziente Besetzung hochliegender Schwingungsniveaus, erreicht und das Verfahren für die Untersuchung des Einflusses der Schwingungsanregung auf die Stoßdynamik einfacher chemischer

Reaktionen und des Elektronentransfers zwischen Atomen und Molekülen eingesetzt.

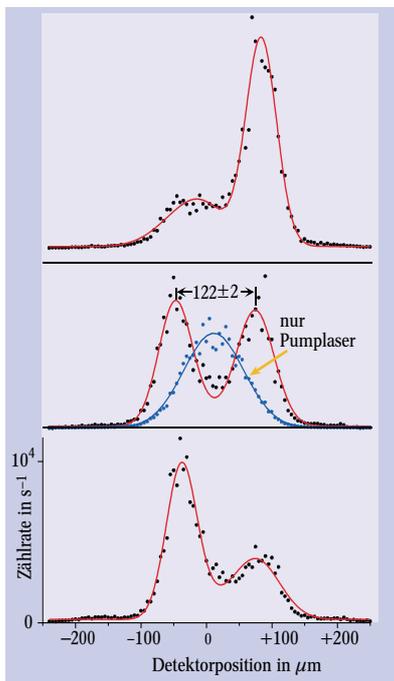
Durch Laserkühlverfahren lassen sich die kinetischen Freiheitsgrade von Atomen sehr gut kontrollieren. Mit dem STIRAP-Verfahren ist die weitgehende Kontrolle der inneren Freiheitsgrade von Atomen und kleinen Molekülen möglich. Durch Kombination dieser Verfahren eröffnen sich viele interessante Möglichkeiten der Lasermanipulation von Teilchen.

### Danksagung

Allen Mitarbeitern, die an der Entwicklung des STIRAP-Verfahrens mitgewirkt haben, sei an dieser Stelle herzlich gedankt. Dies gilt insbesondere für die früheren oder derzeitigen Doktoranden Michael Becker, Ulrich Gaubatz, Michael Külz, Stefan Schiemann, Axel Kuhn, Jürgen Martin, Thomas Halfmann, Heiko Theuer, Knut Böhmer, Frank Vewinger, Manfred Heinz und Ruth Garcia Fernandez sowie den beteiligten Postdoktoranden Rafael Kuklinski, Horst-Günter Rubahn, George Coulston, Stéphane Guérin und den Gastwissenschaftlern Piotr Rudecki, Foek T. Hioe, Bruce W. Shore, Yossi Oreg, Ruzmik Unanyan, Leonid P. Yatsenko, Nikolay V. Vitanov und Shangqing Gong. Die Arbeiten wurden unterstützt von der Deutschen Forschungsgemeinschaft, der Europäischen Union und der German-Israeli Foundation.

### Literatur

- [1] W. Gerlach und O. Stern, *Ann. Phys.* **74**, 673 (1924)
- [2] J. Reuss, *State Selection by Nonoptical Methods*, in: *Atomic and Molecular Beam Methods*, G. Scoles (Hrsg.), Oxford University Press, S. 276 (1988)
- [3] K. Bergmann und W. Dentröder, *Z. Phys.* **243**, 1 (1971)
- [4] K. Bergmann, *State Selection by Optical Methods*, in: *Atomic and Molecular Beam Methods*, G. Scoles (Hrsg.), Oxford University Press, S. 293 (1988)
- [5] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann und K. Bergmann, *J. Chem. Phys.* **92**, 5363 (1990)
- [6] B. Wellegehausen, *IEEE J. Quantum Electronics*, **QE-15**, 1108 (1979)
- [7] I. C. M. Littler, S. Balle und K. Bergmann, *Opt. Commun.* **77**, 390 (1990)
- [8] M. Becker, U. Gaubatz, P.L. Jones und K. Bergmann, *J. Chem. Phys.* **87**, 5064 (1987)
- [9] U. Gaubatz, P. Rudecki, M. Becker, S. Schiemann, M. Külz und K. Bergmann, *Chem. Phys. Lett.* **149**, 463 (1988)
- [10] J. Oreg, F. T. Hioe und J. H. Eberly, *Phys. Rev. A* **29**, 690 (1984)
- [11] S. E. Harris, J. E. Field und A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1107 (1990).
- [12] N. V. Vitanov, M. Fleischhauer, B. W. Shore und K. Bergmann, in: B. Bederson und H. Walther, *Advances of Atomic, Molecular, and Optical Physics* **46**, 55 (2001), Academic Press
- [13] H. Theuer, R. G. Unanyan, C. Habscheid, K. Klein und K. Bergmann, *Optics Express* **4**, 77 (1999)
- [14] S. Schiemann, A. Kuhn, S. Steuerwald und K. Bergmann, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3637 (1993)
- [15] R. G. Unanyan, N. V. Vitanov und K. Bergmann, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 137902 (2001)



**Abb. 9:** Strahlteiler für Materiewellen. Die Atome im Niveau 1 (Abb. 8) werden durch die Dreibein-STIRAP-Kopplung in eine Überlagerung der Zustände  $|3+\rangle$  und  $|3-\rangle$  transferiert, wobei gleichzeitig ein Photonenimpuls  $\hbar k$  bzw.  $-\hbar k$  übertragen wird. Die relative Amplitude der beiden Komponenten des Überlagerungszustandes wird durch die zeitliche Reihenfolge der Einwirkung der beiden Stokes-Laser  $S^+$  und  $S^-$  bestimmt, deren Zentren vor dem des Pumplasers liegen. In der Abb. oben und unten liegt das Zentrum von  $S^-$  vor bzw. nach demjenigen von  $S^+$ , in der Mitte liegen beide Profile genau übereinander.

### Der Autor

Klaas Bergmann hat in Freiburg Physik studiert und 1972 auch promoviert. Nach einem Postdoc-Aufenthalt in Berkeley ging er anschließend als Assistenzprofessor an die Uni Kaiserslautern, an der er sich 1980 habilitierte und der er trotz mehrerer Rufe an amerikanische Universitäten bis heute als Professor treu geblieben ist. 1981 erhielt Bergmann den Physik-Preis der DPG für seine Experimente zur Zustandsselektion von Molekülen mit Lasern. Die von Bergmann vor rund zehn Jahren entwickelte STIRAP-Methode wird heute weltweit mit seinem Namen verbunden.

