

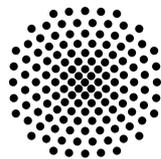
# Electromagnetically Induced Transparency (EIT) in Kupferoxydul

Bachelorarbeit von  
**Julian Zeitler**

6. April 2023

Prüfer: Prof. Dr. Jörg Main

Vorgelegt an der



**Universität Stuttgart**

Institut für Theoretische Physik I  
Pfaffenwaldring 57, 70569 Stuttgart



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>5</b>
1.1	Aufbau der Arbeit . . . . .	5
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>7</b>
2.1	Electromagnetically Induced Transparency (EIT) . . . . .	7
2.2	EIT in Atomen . . . . .	7
2.2.1	Drei-Level-System mit Dunkelzustand . . . . .	8
2.2.2	Zeitentwicklung und Herleitung der Mastergleichung . . . . .	11
2.2.3	Komplexe Suszeptibilität . . . . .	13
2.2.4	Zwei-Level-System . . . . .	14
2.2.5	Drei-Level-System . . . . .	16
2.3	Exzitonen . . . . .	18
2.4	EIT in Kupferoxydul . . . . .	20
<b>3</b>	<b>Parameterabhängigkeit des Absorptionsverlaufs</b>	<b>23</b>
3.1	Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Omega_c$ . . . . .	23
3.2	Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Gamma_3$ . . . . .	25
3.3	Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Gamma_2$ . . . . .	25
3.4	Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Delta_c$ . . . . .	27
<b>4</b>	<b>Geeignete Übergänge zur Realisierung von EIT in <math>\text{Cu}_2\text{O}</math></b>	<b>29</b>
4.1	Interseries-Übergänge . . . . .	29
4.2	Intraseries-Übergänge . . . . .	32
<b>5</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>35</b>
5.1	EIT mit Interseries-Übergängen zwischen Zuständen der gelben und grünen Serie . . . . .	35
5.2	EIT mit Intraseries-Übergängen zwischen Zuständen der gelben Serie . . . . .	38
5.3	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	42
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>43</b>
<b>A</b>	<b>Umrechnung der Dipolmomente</b>	<b>45</b>

<b>Literatur</b>	<b>47</b>
<b>Danksagung</b>	<b>51</b>

# 1 Einleitung

Electromagnetically Induced Transparency (EIT) ist ein quantenmechanisches Phänomen, das die Absorption in einem Material beeinflusst und diese unterdrücken kann. EIT wurde experimentell 1990 erstmals beobachtet [1]. Inzwischen ist EIT in der Atomphysik sehr gut untersucht und kann beispielsweise zur Stabilisierung von Laserfrequenzen genutzt werden [2]. Es gibt einige sehr ausführliche Werke wie [3], die sich mit dem Auftreten von EIT in der Atomphysik beschäftigen. Auch zur Realisierung optischer Quantengatter wurde EIT bereits genutzt [4]. Neben der Unterdrückung der Absorption beeinflusst EIT auch den Brechungsindex einer Probe. Dadurch gelang es 1999, die Lichtgeschwindigkeit in einer Rubidium Dampfzelle auf  $v_g = 8 \text{ m/s}$  zu reduzieren [5]. In Halbleitern wie Kupferoxydul ist EIT allerdings deutlich weniger etabliert als in der Atomphysik.

In Kupferoxydul können durch sichtbares Licht Elektronen aus den Valenzbändern angeregt werden. Es entstehen Exzitonen, die 1937 vorgeschlagen [6] und 1950 experimentell nachgewiesen wurden [7]. Nach der Farbe des anregenden Lichts werden Exzitonen in die gelbe, grüne, blaue und violette Serie unterteilt. 2014 gelang es, ein Spektrum der gelben Exzitonen in Kupferoxydul bis  $n = 25$  aufzunehmen [8]. Darauf folgten theoretische Betrachtungen von Exzitonen z.B. in Ref. [9] und [10]. Es wurden auch Inter-series-Übergänge zwischen Zuständen der gelben und grünen Serie untersucht [11]. Darauf aufbauend soll in dieser Arbeit die Möglichkeit der Realisierung von EIT in Kupferoxydul betrachtet werden. Dabei wird sowohl auf Inter- als auch auf Intra-series-Übergänge eingegangen.

## 1.1 Aufbau der Arbeit

Zunächst wird in Kapitel 1 ein Überblick über das Auftreten von EIT gegeben. Es werden die Voraussetzungen für Systeme, in denen EIT möglich ist, beschrieben und anhand der Atomphysik eine mathematische Beschreibung hergeleitet. Anschließend wird auf Exzitonen und das Auftreten von EIT mit Exzitonenübergängen eingegangen. In Kapitel 3 wird die Parameterabhängigkeit des Absorptionsverlaufs bei EIT beleuchtet. In Kapitel 4 werden geeignete Übergänge für eine mögliche Realisierung von EIT vorgestellt und in Kapitel 5 werden die Ergebnisse präsentiert.



## 2 Grundlagen

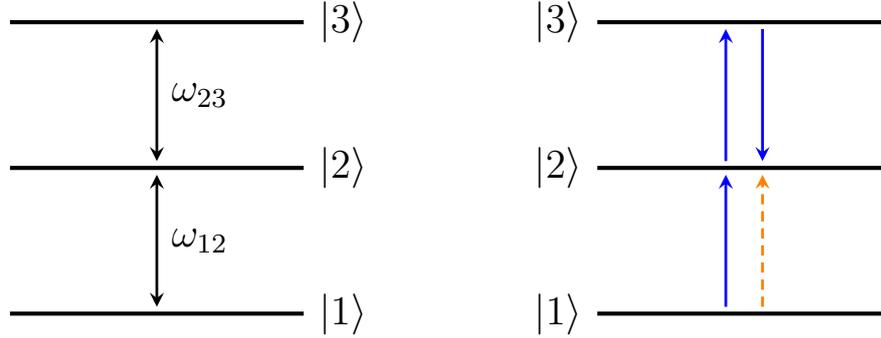
In den folgenden Abschnitten wird die mathematische Theorie hinter dem Phänomen der EIT beleuchtet. In Abschnitt 2.1 wird zunächst ein kurzer Überblick zu EIT gegeben. Anschließend wird in Abschnitt 2.2 das Auftreten von EIT bei Elektronenübergängen in Atomen betrachtet. Dabei wird auf den Einfluss der verwendeten Laser sowie die Zeitentwicklung des Systems und die komplexe Suszeptibilität eingegangen. In Abschnitt 2.3 wird danach die Theorie der Exzitonen in Kupferoxydul beleuchtet. Schließlich wird in Abschnitt 2.4 auf EIT bei Exzitonen eingegangen.

### 2.1 Electromagnetically Induced Transparency (EIT)

Allgemein handelt es sich bei Electromagnetically Induced Transparency (EIT) um ein quantenmechanisches Phänomen, bei dem die Absorption eines Probelasers unter Verwendung eines zweiten, deutlich stärkeren, Kopplungslasers unterdrückt werden kann. EIT kann in Drei-Level-Systemen auftreten, bei denen zwei Dipolübergänge erlaubt sind und der dritte verboten ist. Ein solches Drei-Level-System mit einem Grundzustand  $|1\rangle$  sowie zwei angeregten Zuständen  $|2\rangle$  und  $|3\rangle$  ist in Abbildung 2.1 (links) dargestellt. Der Probelaser regt den Übergang  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  an, der Kopplungslaser koppelt die Zustände  $|2\rangle$  und  $|3\rangle$ . Es gibt nun zwei Möglichkeiten den Zustand  $|2\rangle$  anzuregen. Entweder direkt  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  oder indirekt über  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |3\rangle \rightarrow |2\rangle$  (dargestellt in Abbildung 2.1 rechts). Beide Übergänge haben aufgrund der starken Kopplung von  $|2\rangle$  und  $|3\rangle$  eine ähnliche Amplitude. Der Rabi-Zyklus  $|2\rangle \rightarrow |3\rangle \rightarrow |2\rangle$  führt zu einem Faktor -1 vor der Wellenfunktion, sodass beide Wege destruktiv miteinander interferieren. Unter Verwendung eines starken Kopplungslasers kann so die Absorption eines schwachen Probelasers unterdrückt werden.

### 2.2 EIT in Atomen

Die folgenden Herleitungen orientieren sich an Ref. [12], [13] und [14].



**Abbildung 2.1:** Links: Drei-Level-System in Leiterkonfiguration. Rechts: Verschiedene Anregungswege des Zustands  $|2\rangle$ . Der direkte Weg in orange (gestrichelt) und der indirekte Weg über  $|3\rangle$  in blau (durchgezogen) interferieren destruktiv.

### 2.2.1 Drei-Level-System mit Dunkelzustand

Zur mathematischen Untersuchung wird erneut das in Abbildung 2.1 dargestellte Drei-Level-System betrachtet. Hier sind  $\omega_{12}$  und  $\omega_{23}$  die Frequenzen der Übergänge  $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$  und  $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ . Das Drei-Level-System kann durch den Hamiltonian  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{int}}$  beschrieben werden. Dabei enthält

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_{12} |2\rangle \langle 2| + \hbar(\omega_{12} + \omega_{23}) |3\rangle \langle 3| \quad (2.1)$$

die Energie der Level.  $|1\rangle$  ist der Grundzustand und seine Energie wird auf Null gesetzt. Für die Beschreibung der Wechselwirkungen wird die semiklassische Näherung angewandt. Es wird von klassischen elektrischen Feldern der Laser ausgegangen, die durch ebene Wellen

$$E_p(\vec{r}, t) = \frac{1}{2}E_{p,0} \left( e^{-i(\omega_p t - \vec{k}\vec{r})} + e^{i(\omega_p t - \vec{k}\vec{r})} \right), \quad E_c(\vec{r}, t) = \frac{1}{2}E_{c,0} \left( e^{-i(\omega_c t - \vec{k}\vec{r})} + e^{i(\omega_c t - \vec{k}\vec{r})} \right) \quad (2.2)$$

mit reellen Amplituden  $E_{p,0}$  und  $E_{c,0}$  beschrieben werden. Dabei ist  $\omega_p$  die Frequenz des Probelasers und  $\omega_c$  die des Kopplungslasers (von engl. *coupling*). Da die betrachteten Wellenlängen deutlich größer sind, als die räumliche Ausdehnung der Atome, kann die Ortsabhängigkeit im Folgenden vernachlässigt werden. Mit der Dipolnäherung und dem Dipolmoment  $\mu_{ij} = e \langle i | \hat{x} | j \rangle$  ergibt sich

$$\mathcal{H}_{\text{int}} = E \cdot \hat{\mu} = E_p(\mu_{12} |1\rangle \langle 2| + \mu_{21} |2\rangle \langle 1|) + E_c(\mu_{23} |2\rangle \langle 3| + \mu_{32} |3\rangle \langle 2|). \quad (2.3)$$

Führt man die Definitionen

$$|1\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, |2\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, |3\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (2.4)$$

ein, kann der Hamiltonian als

$$\mathcal{H} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\mu_{12}}{2} E_{p,0} (e^{-i\omega_p t} + e^{i\omega_p t}) & 0 \\ \frac{\mu_{21}}{2} E_{p,0} (e^{-i\omega_p t} + e^{i\omega_p t}) & \hbar\omega_{12} & \frac{\mu_{23}}{2} E_{c,0} (e^{-i\omega_c t} + e^{i\omega_c t}) \\ 0 & \frac{\mu_{32}}{2} E_{c,0} (e^{-i\omega_c t} + e^{i\omega_c t}) & \hbar(\omega_{12} + \omega_{23}) \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

geschrieben werden. Es wird nun in eine Basis gewechselt, die mit den Laserfrequenzen  $\omega_p$  und  $\omega_c$  rotiert. Für diese Transformation gilt

$$\mathcal{H}' = U^\dagger \mathcal{H} U - i\hbar U^\dagger \frac{\partial U}{\partial t}, \quad (2.6)$$

mit den Transformationsmatrizen

$$U = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-i\omega_p t} & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i(\omega_p + \omega_c)t} \end{pmatrix}, U^\dagger = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & e^{i\omega_p t} & 0 \\ 0 & 0 & e^{i(\omega_p + \omega_c)t} \end{pmatrix}. \quad (2.7)$$

Die Rabi-Frequenzen

$$\Omega_p = \frac{\mu_{12} E_{p,0}}{\hbar}, \quad \Omega_c = \frac{\mu_{23} E_{c,0}}{\hbar} \quad (2.8)$$

beschreiben die Kopplung der Zustände  $|1\rangle$ ,  $|2\rangle$  beziehungsweise  $|2\rangle$ ,  $|3\rangle$ . Mit ihnen ergibt sich der Hamiltonian  $\mathcal{H}'$  als

$$\begin{aligned} \mathcal{H}' &= \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p(1 + e^{2i\omega_p t}) & 0 \\ \Omega_p(1 + e^{-2i\omega_p t}) & \omega_{12} & \Omega_c(1 + e^{2i\omega_c t}) \\ 0 & \Omega_c(1 + e^{-2i\omega_c t}) & \omega_{12} + \omega_{23} \end{pmatrix} - \hbar \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \omega_p & 0 \\ 0 & 0 & \omega_p + \omega_c \end{pmatrix} \\ &= \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p(1 + e^{2i\omega_p t}) & 0 \\ \Omega_p(1 + e^{-2i\omega_p t}) & -2\Delta_p & \Omega_c(1 + e^{2i\omega_c t}) \\ 0 & \Omega_c(1 + e^{-2i\omega_c t}) & -2(\Delta_p + \Delta_c) \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Hier wurden die Verstimmungen des Probe- und Kopplungslasers

$$\Delta_p = \omega_p - \omega_{12}, \quad \Delta_c = \omega_c - \omega_{23} \quad (2.10)$$

eingeführt. Sie sind in Abbildung 2.2 links dargestellt. Den transformierten Hamiltonian kann man mit Hilfe der Rotating Wave Approximation (RWA) vereinfachen. Dabei wird

angenommen, dass sich die schnell oszillierenden Terme  $e^{\pm 2i\omega_p t}$  und  $e^{\pm 2i\omega_c t}$  zu Null mitteln. Der Hamiltonian ergibt sich dann als

$$\mathcal{H}' \approx \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p & 0 \\ \Omega_p & -2\Delta_p & \Omega_c \\ 0 & \Omega_c & -2(\Delta_p + \Delta_c) \end{pmatrix}. \quad (2.11)$$

Eine Betrachtung der neuen Eigenzustände zeigt, wie in einem Drei-Level-System Transparenz induziert werden kann. Für den Fall der Zwei-Photonen-Resonanz  $\Delta_p + \Delta_c = 0$  sind diese gegeben durch [14]

$$|D\rangle = \cos \theta |1\rangle - \sin \theta |3\rangle, \quad (2.12a)$$

$$|+\rangle = \sin \theta \sin \phi |1\rangle + \cos \phi |2\rangle + \cos \theta \sin \phi |3\rangle, \quad (2.12b)$$

$$|-\rangle = \sin \theta \cos \phi |1\rangle - \sin \phi |2\rangle + \cos \theta \cos \phi |3\rangle. \quad (2.12c)$$

Die Zusammensetzung dieser Zustände aus den reinen Atomzuständen hängt von den Rabi-Frequenzen  $\Omega_p$ ,  $\Omega_c$  und damit von der Kopplung dieser Zustände ab. Die sogenannten Stückelberg Mischwinkel sind definiert als

$$\theta = \arctan \left( \frac{\Omega_p}{\Omega_c} \right), \quad (2.13a)$$

$$2\phi = \arctan \left( \frac{\sqrt{\Omega_p^2 + \Omega_c^2}}{\Delta_p} \right). \quad (2.13b)$$

Bereits hier ist das Auftreten von EIT begründbar. Der Probelaser koppelt nur an Zustand  $|2\rangle$ . Folglich können auch nur Zustände, die  $|2\rangle$  enthalten, zur Absorption beitragen. Dies ist bei  $|D\rangle$  nicht der Fall. Man spricht daher von einem *Dunkelzustand*. Die Zustände  $|\pm\rangle$  werden als *dressed states* bezeichnet. Ihre Eigenenergien sind um

$$\Delta E^\pm = \frac{\hbar}{2} \left( \Delta_p \pm \sqrt{\Delta_p^2 + \Omega_p^2 + \Omega_c^2} \right) \quad (2.14)$$

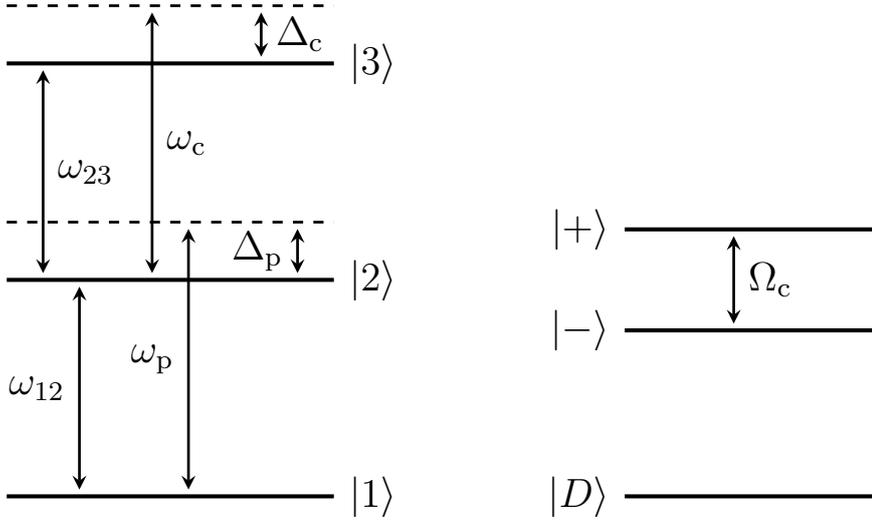
verschoben.

Für einen schwachen Probelaser ( $\Omega_p \ll \Omega_c$ ) ohne Verstimmung ( $\Delta_p = 0$ ) verschwindet der Winkel  $\theta \rightarrow 0$  und es folgt  $\phi \rightarrow \pi/4$ . In diesem Fall vereinfachen sich die neuen Zustände zu

$$|D\rangle = |1\rangle, \quad (2.15a)$$

$$|+\rangle = (|3\rangle + |2\rangle)/\sqrt{2}, \quad (2.15b)$$

$$|-\rangle = (|3\rangle - |2\rangle)/\sqrt{2}. \quad (2.15c)$$



**Abbildung 2.2:** Links: Drei-Level-System in Leiterkonfiguration. Eingezeichnet sind die Energiedifferenzen der Zustände  $\omega_{12}$ ,  $\omega_{23}$ , die Frequenzen des Probe- und Kopplungslasers  $\omega_p$ ,  $\omega_c$  sowie deren Verstimmungen  $\Delta_p$ ,  $\Delta_c$ . Rechts: Eigenzustände des Hamiltonians (2.11) für den Fall eines schwachen Probelasers ( $\Omega_p \ll \Omega_c$ ). Die dressed states  $|\pm\rangle$  sind um  $\Omega_c$  aufgespalten.

Der Zustand  $|D\rangle$  wird damit zum Grundzustand  $|1\rangle$  und die Energie der Zustände  $|\pm\rangle$  ist um  $\Delta E = \hbar\Omega_c$  aufgespalten (Abbildung 2.2 rechts). Man spricht von der sogenannten Autler-Townes Aufspaltung.

Diese Betrachtung zeigt, wie durch das Unterbinden der Übergänge von  $|D\rangle$  Transparenz in das Drei-Level-System induziert werden kann. Das hier angenommene System vernachlässigt jedoch, dass die einzelnen Zustände  $|i\rangle$  eine endliche Lebensdauer  $\tau_i$  besitzen. Der Einfluss des daraus resultierenden Zerfalls mit der Zerfallsrate  $\Gamma_i$  soll im Folgenden betrachtet werden.

### 2.2.2 Zeitentwicklung und Herleitung der Mastergleichung

Die Zeitentwicklung des Drei-Level-Systems kann mit Hilfe des Dichtematrix-Formalismus untersucht werden. Für Wellenfunktionen der Form

$$|\Psi\rangle = c_1 |1\rangle + c_2 |2\rangle + c_3 |3\rangle \quad (2.16)$$

ist die Dichtematrix  $\hat{\rho}$  gegeben durch

$$\hat{\rho} = |\Psi\rangle \langle\Psi| = \begin{pmatrix} |c_1|^2 & c_1 c_2^* & c_1 c_3^* \\ c_2 c_1^* & |c_2|^2 & c_2 c_3^* \\ c_3 c_1^* & c_3 c_2^* & |c_3|^2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} \end{pmatrix}. \quad (2.17)$$

Die Einträge der Hauptdiagonalen beschreiben die Population der einzelnen Zustände, die Nebendiagonalen deren Kohärenzen.

Allgemein wird im Dichtematrix-Formalismus zur Beschreibung der Zeitentwicklung eines Systems die Von-Neumann-Gleichung

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \mathcal{H}] \quad (2.18)$$

genutzt [15]. Sie ist das Analogon zur Schrödingergleichung und berücksichtigt ebenfalls keine Änderung der Zustandsbesetzungen durch Zerfälle. Um diese zu beschreiben, muss die Von-Neumann-Gleichung erweitert werden, um eine Mastergleichung zu erhalten, die das betrachtete Drei-Level-System vollständig beschreibt.

Die Population der einzelnen Zustände  $|i\rangle$  ändert sich zeitabhängig aufgrund von spontanen Zerfällen mit Zerfallsrate  $\Gamma_i = 1/\tau_i$ . Dieser Prozess kann durch den Lindblad-Superoperator

$$\mathcal{L}(\hat{\rho}) = -\frac{1}{2} \sum_m (\hat{C}_m^\dagger \hat{C}_m \hat{\rho} + \hat{\rho} \hat{C}_m^\dagger \hat{C}_m) + \sum_m \hat{C}_m \hat{\rho} \hat{C}_m^\dagger \quad (2.19)$$

beschrieben werden [14]. Die Operatoren  $\hat{C}_m$  beschreiben jeweils einen möglichen Zerfall und es wird mit  $m$  über alle Zerfallsmoden summiert. Im betrachteten Drei-Level-System wird Zustand  $|1\rangle$  als Grundzustand angenommen ( $\Gamma_1 = 0$ ), sodass es insgesamt zwei mögliche Zerfälle gibt. Zustand  $|3\rangle$  zerfällt mit Rate  $\Gamma_3 = 1/\tau_3$  zu Zustand  $|2\rangle$ . Analog zerfällt Zustand  $|2\rangle$  mit Rate  $\Gamma_2 = 1/\tau_2$  zu  $|1\rangle$ . Damit ergeben sich die Operatoren

$$\hat{C}_3 = \sqrt{\Gamma_3} |2\rangle \langle 3| = \sqrt{\Gamma_3} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{C}_3^\dagger = \sqrt{\Gamma_3} |3\rangle \langle 2| = \sqrt{\Gamma_3} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad (2.20a)$$

$$\hat{C}_2 = \sqrt{\Gamma_2} |1\rangle \langle 2| = \sqrt{\Gamma_2} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{C}_2^\dagger = \sqrt{\Gamma_2} |2\rangle \langle 1| = \sqrt{\Gamma_2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.20b)$$

Eingesetzt in Gleichung (2.19) ergibt sich der Lindblad-Superoperator als

$$\begin{aligned}
 \mathcal{L}(\hat{\rho}) &= -\frac{\Gamma_3}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ \rho_{31} & \rho_{23} & \rho_{33} \end{pmatrix} - \frac{\Gamma_3}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & \rho_{13} \\ 0 & 0 & \rho_{23} \\ 0 & 0 & \rho_{33} \end{pmatrix} + \Gamma_3 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & \rho_{33} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
 &\quad - \frac{\Gamma_2}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} - \frac{\Gamma_2}{2} \begin{pmatrix} 0 & \rho_{12} & 0 \\ 0 & \rho_{22} & 0 \\ 0 & \rho_{23} & 0 \end{pmatrix} + \Gamma_2 \begin{pmatrix} \rho_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \\
 &= -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} -2\Gamma_2\rho_{22} & \Gamma_2\rho_{12} & \Gamma_3\rho_{13} \\ \Gamma_2\rho_{21} & 2\Gamma_2\rho_{22} - 2\Gamma_3\rho_{33} & (\Gamma_2 + \Gamma_3)\rho_{23} \\ \Gamma_3\rho_{31} & (\Gamma_2 + \Gamma_3)\rho_{32} & 2\Gamma_3\rho_{33} \end{pmatrix}. \tag{2.21}
 \end{aligned}$$

Die zeitliche Entwicklung des betrachteten Drei-Level-Systems mit beiden Lasern und spontanen Zerfällen der Zustände wird durch die Mastergleichung

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \mathcal{H}] + \mathcal{L}(\hat{\rho}) \tag{2.22}$$

beschrieben. Dabei wird der Hamiltonian aus Gleichung (2.11) genutzt.

### 2.2.3 Komplexe Suszeptibilität

Die komplexe Suszeptibilität  $\chi$  beschreibt die Polarisationsfähigkeit eines Materials. Der Realteil  $\text{Re}[\chi]$  ist dabei mit der Dispersion verknüpft, der Imaginärteil  $\text{Im}[\chi]$  mit der Absorption. EIT beeinflusst die Suszeptibilität bei der Frequenz  $\omega_p$  des Probelasers. Es muss also ein Ausdruck für diese Suszeptibilität gefunden werden. Hierfür wird zunächst die Polarisation  $P$  im Medium betrachtet. Allgemein ist diese mit der Atomdichte  $\eta$  gegeben durch [13]

$$P = \eta \text{Tr}(\hat{\mu}\hat{\rho}), \tag{2.23}$$

mit dem Dipolmoment  $\hat{\mu}$ . Unter der Annahme, dass alle Dipolmomente parallel ausgerichtet sind, ist die Polarisation bei der Frequenz  $\omega_p$  des Probelasers [12]

$$P = -\eta(\mu_{12}\rho_{21}e^{i\omega_p t} + \text{c.c.}). \tag{2.24}$$

In einem linearen Medium ist die Polarisation proportional zu einem anliegenden elektrischen Feld. Dieses ist hier das als klassisch angenommene Feld des Probelasers

$E_p = E_{p,0} \cos(\omega_p t)$ . Die Polarisation kann dann mit der Suszeptibilität  $\chi$  und der elektrischen Feldkonstante  $\varepsilon_0$  als

$$P = \frac{1}{2} \varepsilon_0 E_{p,0} (\chi(\omega_p) e^{-i\omega_p t} + \text{c.c.}) \quad (2.25)$$

geschrieben werden. Mit der Rabi-Frequenz  $\Omega_p = \mu_{12} E_{p,0} / \hbar$  folgt aus den Gleichungen (2.24) und (2.25)

$$\chi(\omega_p) = -\frac{2\eta\mu_{12}\rho_{21}}{\varepsilon_0 E_{p,0}} = -\frac{2\eta\mu_{12}^2}{\varepsilon_0 \Omega_p \hbar} \rho_{21}. \quad (2.26)$$

Damit hängt die Suszeptibilität bei der Frequenz des Probelasers direkt von der Kohärenz der Zustände  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  ab. Diese kann durch Lösen der Mastergleichung (2.22) ermittelt werden.

Die komplexe Suszeptibilität  $\chi$  lässt sich in Real- und Imaginärteil trennen, die über die Kramers-Kronig-Beziehungen

$$\text{Re}\{\chi(\omega)\} = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\text{Im}\{\chi(\omega')\} d\omega'}{\omega' - \omega}, \quad (2.27a)$$

$$\text{Im}\{\chi(\omega)\} = -\frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\text{Re}\{\chi(\omega')\} d\omega'}{\omega' - \omega} \quad (2.27b)$$

miteinander verbunden sind [16]. Diese Abhängigkeit verdeutlicht, dass sich bei EIT immer der Real- und Imaginärteil der Suszeptibilität eines Materials verändern.

## 2.2.4 Zwei-Level-System

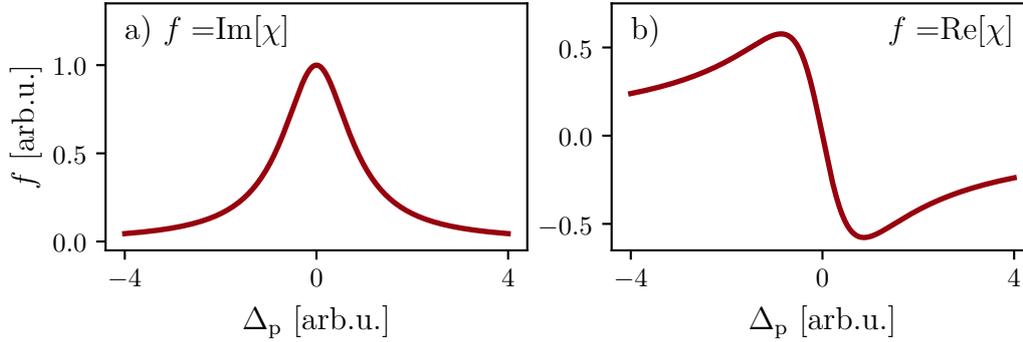
Die Mastergleichung (2.22) ist nur für den Fall ohne Kopplung ( $\Omega_c = 0$ ) analytisch lösbar. Das System vereinfacht sich zu einem Zwei-Level-System, bei dem beide Niveaus mit der Rabi-Frequenz  $\Omega = \sqrt{\Omega_p^2 + \Delta_p^2}$  durch den Probelaser gekoppelt sind. Der Zerfall von Zustand  $|2\rangle$  dämpft diese Oszillationen. Die Mastergleichung vereinfacht sich zu einem zweidimensionalen Problem. Nach  $t \gg \tau_2$  erreicht das System einen Gleichgewichtszustand. Es ergibt sich das Gleichungssystem

$$\dot{\rho}_{11} = -\frac{i}{2}(\Omega_p \rho_{21} - \Omega_p \rho_{12}) + \Gamma_2 \rho_{22}, \quad (2.28a)$$

$$\dot{\rho}_{12} = -\frac{i}{2}(\Omega_p \rho_{22} - \Omega_p \rho_{11}) - \left(\frac{\Gamma_2}{2} + i\Delta_p\right) \rho_{12}, \quad (2.28b)$$

$$\dot{\rho}_{21} = \frac{i}{2}(\Omega_p \rho_{22} - \Omega_p \rho_{11}) - \left(\frac{\Gamma_2}{2} - i\Delta_p\right) \rho_{21}, \quad (2.28c)$$

$$\dot{\rho}_{22} = \frac{i}{2}(\Omega_p \rho_{21} - \Omega_p \rho_{12}) - \Gamma_2 \rho_{22}, \quad (2.28d)$$



**Abbildung 2.3:** Imaginärteil (links) und Realteil (rechts) der Suszeptibilität  $\chi$  als Funktion der Verstimmung  $\Delta_p$ . Die Parameter sind  $\Omega_p = \Gamma_2 = 1$ .

das man mit  $\frac{d\hat{\rho}}{dt} \stackrel{!}{=} 0$  und  $\text{Tr}(\hat{\rho}) \stackrel{!}{=} 1$  lösen kann. Die Population des angeregten Zustands kann durch Einsetzen der Gleichungen (2.28b) und (2.28c) in Gleichung (2.28d) ermittelt werden. Aus der Wahrscheinlichkeitserhaltung folgt  $\rho_{11} = \rho_{22} - 1$ , woraus sich mit der Definition  $\gamma_2 = \Gamma_2/2$

$$\Gamma_2 \rho_{22} = -(2\rho_{22} - 1) \frac{\Omega_p^2}{2} \frac{\gamma_2}{\gamma_2^2 + \Delta_p^2} \quad (2.29)$$

ergibt. Dies kann dann zur Besetzung des angeregten Zustands

$$\rho_{22} = \frac{1}{4} \frac{\Omega_p^2}{\Omega_p^2/2 + \gamma_2^2 + \Delta_p^2} \quad (2.30)$$

umgeformt werden. Die Besetzung des Grundzustands kann mit  $\rho_{11} = \rho_{22} - 1$  ermittelt werden. Zur Bestimmung der Kohärenzterme wird Gleichung (2.30) in Gleichung (2.28c) eingesetzt. Vereinfacht folgt

$$\rho_{21} = \rho_{12}^* = \frac{\Omega_p}{2} \frac{\Delta_p - i\gamma_2}{\Omega_p^2/2 + \gamma_2^2 + \Delta_p^2}. \quad (2.31)$$

Dieses Ergebnis kann nun in Gleichung (2.38) eingesetzt werden, um die Suszeptibilität

$$\chi = -\frac{\eta\mu_{12}^2}{\varepsilon_0\hbar} \frac{\Delta_p - i\gamma_2}{\Omega_p^2/2 + \gamma_2^2 + \Delta_p^2} \quad (2.32)$$

zu ermitteln. In Abbildung 2.3 sind der Real- und Imaginärteil der Suszeptibilität für ein Zwei-Level-System dargestellt. Der Absorptionsverlauf entspricht einer Lorentzkurve und es ist die anomale Dispersion im Bereich um  $\Delta_p = 0$  erkennbar.

### 2.2.5 Drei-Level-System

Für das vollständige Drei-Level-System mit Kopplungslaser ist das analytische Lösen von Gleichung (2.22) nicht mehr möglich. Für einen schwachen Probelaser ( $\Omega_p \ll \Omega_c, \Gamma_2$ ) kann jedoch eine genäherte Lösung ermittelt werden. Es wird nach einer Lösung in erster Ordnung des Probelaserfelds gesucht. Hierfür sind die Zeitentwicklungen der Zustandsbesetzungen nicht relevant [12]. Aus Gleichung (2.22) ergibt sich mit  $\gamma_i = \Gamma_i/2$  für die Kohärenzen das folgende Gleichungssystem

$$\dot{\rho}_{32} = -(\gamma_3 - i\Delta_c)\rho_{32} + \frac{i\Omega_c}{2}(\rho_{33} - \rho_{22}) + \frac{i\Omega_p}{2}\rho_{31}, \quad (2.33a)$$

$$\dot{\rho}_{21} = -(\gamma_2 - i\Delta_p)\rho_{21} + \frac{i\Omega_p}{2}(\rho_{22} - \rho_{11}) - \frac{i\Omega_c}{2}\rho_{31}, \quad (2.33b)$$

$$\dot{\rho}_{31} = -[\gamma_3 - i(\Delta_p + \Delta_c)]\rho_{31} - \frac{i\Omega_c}{2}\rho_{21} + \frac{i\Omega_p}{2}\rho_{32}. \quad (2.33c)$$

Im Gleichgewichtszustand ( $\frac{d\rho}{dt} \stackrel{!}{=} 0$ ) ergibt sich aus Gleichung (2.33c)

$$\rho_{31} = \left( -\frac{i\Omega_c}{2}\rho_{21} + \frac{i\Omega_p}{2}\rho_{32} \right) \left( \frac{1}{\gamma_3 - i(\Delta_p + \Delta_c)} \right). \quad (2.34)$$

Aus der Annahme  $\Omega_p \ll \Gamma_2$  ergibt sich eine geringe Besetzung der angeregten Zustände. Ihre Kohärenz  $\rho_{32}$  kann ebenfalls als gering angenommen werden. Daraus folgt  $\Omega_c\rho_{21} \gg \Omega_p\rho_{32}$  womit sich Gleichung (2.34) als

$$\rho_{31} \simeq -\frac{i\Omega_c}{2} \frac{\rho_{21}}{\gamma_3 - i(\Delta_p + \Delta_c)} \quad (2.35)$$

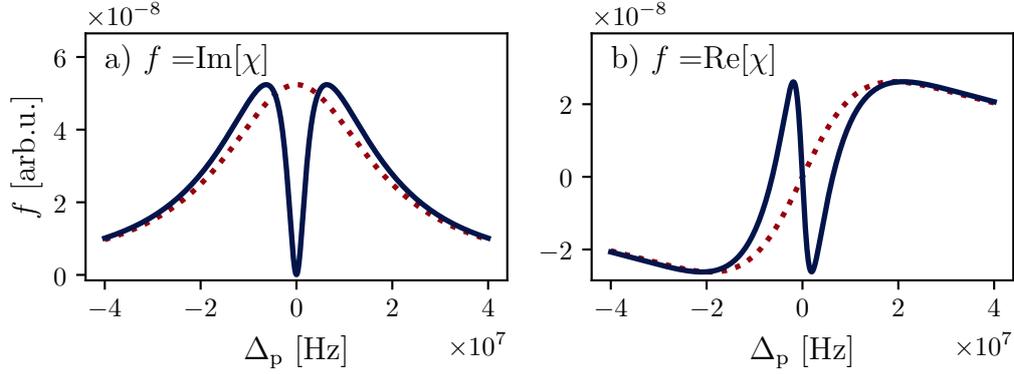
nähern lässt. Dieses Ergebnis kann zur Bestimmung von  $\rho_{21}$  nun in Gleichung (2.33b) eingesetzt werden. Nach Umformungen folgt

$$\rho_{21} = \frac{(\rho_{22} - \rho_{11})\Omega_p/2}{\gamma_2 - i\Delta_p + \frac{\Omega_c^2/4}{\gamma_3 - i(\Delta_p + \Delta_c)}}. \quad (2.36)$$

Erneut wird die Annahme des schwachen Probelasers genutzt, um das Ergebnis zu vereinfachen. Es kann davon ausgegangen werden, dass fast ausschließlich der Grundzustand besetzt ist. Die Population anderer Zustände wird vernachlässigt. Mit der Näherung  $\rho_{11} \simeq 1$ ,  $\rho_{22} \simeq \rho_{33} \simeq 0$  ergibt sich die Kohärenz für den Übergang des Probelasers als

$$\rho_{21} = -\frac{i\Omega_p/2}{\gamma_2 - i\Delta_p + \frac{\Omega_c^2/4}{\gamma_3 - i(\Delta_p + \Delta_c)}}. \quad (2.37)$$

Eingesetzt in Gleichung (2.26) folgt für die komplexe Suszeptibilität für das Drei-Level-System in Leiter-Konfiguration



**Abbildung 2.4:** Imaginärteil (links) und Realteil (rechts) der Suszeptibilität  $\chi$  als Funktion der Verstimmung  $\Delta_p$  in Rubidium 87. Betrachtet wird der Übergang  $5^2S_{1/2} \rightarrow 5^2P_{3/2}$ . Die rote (gestrichelte) Linie zeigt den Absorptionsverlauf ohne Kopplung ( $\Omega_c = 0$ ). Die blaue (durchgezogene) Linie zeigt den Verlauf bei Kopplung der Zustände  $5^2P_{3/2}$  und  $49D_{3/2}$  mit  $\Omega_c = 12,6$  MHz. Die Parameter sind  $\Gamma_2 = 3,81$  MHz und  $\Gamma_3 = 5,52$  kHz.

$$\chi(\Delta_p) = \frac{i\eta\mu_{12}^2}{\varepsilon_0\hbar} \left[ \gamma_2 - i\Delta_p + \frac{\Omega_c^2/4}{\gamma_3 - i(\Delta_p + \Delta_c)} \right]^{-1}. \quad (2.38)$$

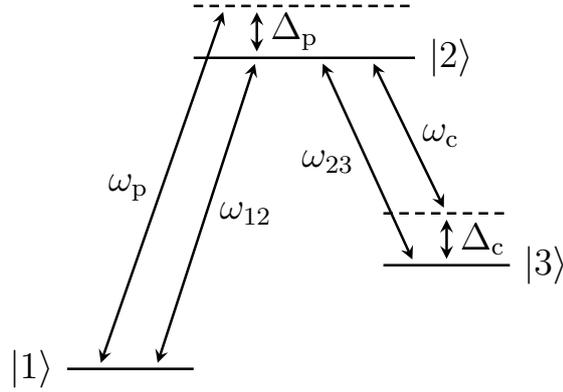
In Abbildung 2.4 ist ein typischer EIT Verlauf von Real- und Imaginärteil der Suszeptibilität  $\chi$  am Beispiel von Rubidium 87 dargestellt. Die Zerfallsraten und Dipolmomente sind Ref. [17] entnommen.

Diese Herleitung befasst sich mit der Suszeptibilität bei  $\omega_p$  in einem Drei-Level-System in Leiter-Konfiguration. Für Systeme in  $\Lambda$ -Konfiguration (dargestellt in Abbildung 2.5) ändert sich die relative Energie der Zustände  $|2\rangle$  und  $|3\rangle$ . Definiert man weiterhin die Übergangsfrequenz  $\omega_{23}$  positiv und die Verstimmung des Kopplungslasers als  $\Delta_c = \omega_c - \omega_{23}$ , ergibt sich die Kohärenz [12]

$$\rho_{21} = -\frac{i\Omega_p/2}{\gamma_2 - i\Delta_p + \frac{\Omega_c^2/4}{\gamma_3 - i(\Delta_p - \Delta_c)}}. \quad (2.39)$$

Entsprechend folgt für die Suszeptibilität eines Systems in  $\Lambda$ -Konfiguration

$$\chi(\Delta_p) = \frac{i\eta\mu_{12}^2}{\varepsilon_0\hbar} \left[ \gamma_2 - i\Delta_p + \frac{\Omega_c^2/4}{\gamma_3 - i(\Delta_p - \Delta_c)} \right]^{-1}. \quad (2.40)$$



**Abbildung 2.5:** Ein Drei-Level-System in  $\Lambda$ -Konfiguration. Eingezeichnet sind die Energiedifferenzen der Zustände  $\omega_{12}$ ,  $\omega_{23}$ , die Frequenzen des Probe- und Kopplungslasers  $\omega_p$ ,  $\omega_c$  sowie deren Verstimmungen  $\Delta_p$ ,  $\Delta_c$ . Im Gegensatz zu einem Drei-Level-System in Leiterkonfiguration liegt Zustand  $|3\rangle$  energetisch niedriger als  $|2\rangle$ .

## 2.3 Exzitonen

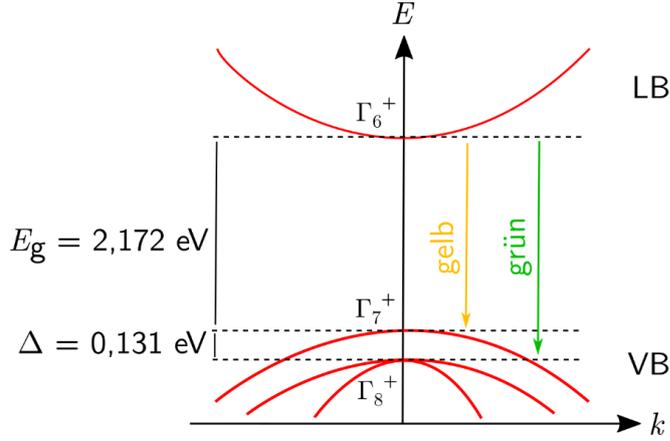
Bei Exzitonen handelt es sich um gebundene Elektronen-Loch-Paare, die in Halbleitern bei Anregung eines Elektrons im Valenzband entstehen können. Das angeregte Elektron bindet sich über die Coulomb-Wechselwirkung an das positiv geladene Loch und es entsteht ein Quasiteilchen. Vereinfacht können Exzitonen in Analogie zu Wasserstoffatomen durch den Hamiltonian

$$\mathcal{H} = E_g + \frac{\mathbf{p}_e^2}{2m_e} + \frac{\mathbf{p}_h^2}{2m_h} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \quad (2.41)$$

beschrieben werden. Die Energie der Exzitonen hängt in diesem vereinfachten Modell von den Impulsen des Elektrons  $\mathbf{p}_e$  und Lochs  $\mathbf{p}_h$  (von engl. *hole*), deren Massen  $m_e$  und  $m_h$  sowie der Coulomb-Wechselwirkung ab. In Kupferoxydul beträgt die Dielektrizitätskonstante  $\epsilon = 7,5$  und die Bandlücke zwischen dem  $\Gamma_7^+$  Valenz- und dem  $\Gamma_6^+$  Leitungsband ist  $E_g = 2,17208 \text{ eV}$  [8].

Für eine genauere Beschreibung muss der Einfluss der Kristallstruktur von Kupferoxydul berücksichtigt werden. Die sphärische Symmetrie des Wasserstoffatoms geht in eine kubische Symmetrie über. Mit einer Transformation in Relativkoordinaten  $\mathbf{r}$  und -impulse  $\mathbf{p}$  ergibt sich der Hamiltonian für Exzitonen in Kupferoxydul als [18]

$$\mathcal{H} = E_g + \mathcal{H}_{\text{kin}}(\mathbf{p}, \hat{\mathbf{I}}, \hat{\mathbf{S}}_h) - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon|\mathbf{r}|} + \mathcal{H}_{\text{SO}}. \quad (2.42)$$



**Abbildung 2.6:** Schematische Darstellung der Bandstruktur in Kupferoxydul. Gekennzeichnet ist die Energie der Bandlücke  $E_g$ , sowie die Energiedifferenz  $\Delta$  zwischen gelber und grüner Serie. Angepasst aus [19].

Der Schwerpunktimпульs wurde dabei vernachlässigt. Die kinetische Energie von Elektron und Loch wird durch

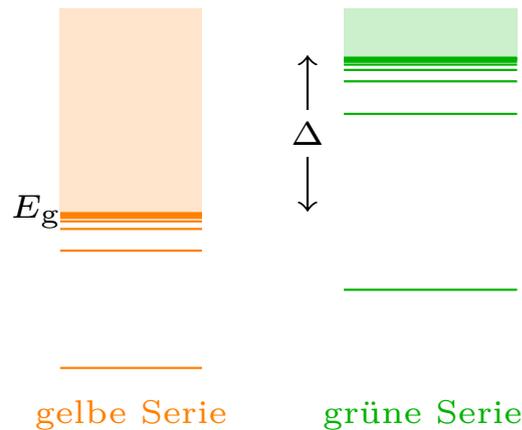
$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_{\text{kin}}(\mathbf{p}, \hat{\mathbf{I}}, \hat{\mathbf{S}}_h) = & \frac{\gamma'_1}{2m_e} \mathbf{p}^2 + \frac{1}{2\hbar^2 m_e} [4\gamma_2 \hbar^2 \mathbf{p}^2 \\
 & - 6\gamma_2 (p_1^2 \hat{I}_1^2 + \text{c.p.}) - 12\gamma_3 (\{p_1, p_2\} \{\hat{I}_1, \hat{I}_2\} + \text{c.p.}) \\
 & - 12\eta_2 (p_1^2 \hat{I}_1 \hat{S}_{h1} + \text{c.p.}) + 2(\eta_1 + 2\eta_2) \mathbf{p}^2 (\hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{S}}_h) \\
 & - 12\eta_3 (\{p_1, p_2\} (\hat{I}_1 \hat{S}_{h2} + \hat{I}_2 \hat{S}_{h1}) + \text{c.p.})], \quad (2.43)
 \end{aligned}$$

beschrieben. Mit dem Quasispin  $I = 1$ , dem Lochspin  $S_h = 1/2$  und dem Impuls  $p_i$  wird die kubische Struktur der Bandstruktur berücksichtigt.  $\gamma_i$  und  $\eta_i$  sind die Luttinger Parameter,  $\gamma'_1 = 2,77$ , c.p. steht für zyklische Permutationen und es gilt  $\{a, b\} = (ab + ba)/2$ . Der dritte Term beschreibt das Coulomb-Potential mit  $\varepsilon = 7,5$ . Der Spin-Bahn-Kopplungsterm  $H_{\text{SO}}$  (von engl. *spin orbit*) ist für die Energieaufspaltung zwischen dem  $\Gamma_7^+$  und  $\Gamma_8^+$  Band verantwortlich und lautet

$$H_{\text{SO}} = \frac{2}{3} \Delta \left( 1 + \frac{1}{\hbar^2} \hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{S}}_h \right), \quad (2.44)$$

mit  $\Delta = 131 \text{ meV}$ . Für Zustände mit geringer Ausdehnung, wie den gelben  $1S$ -Zustand, gibt es zudem die *central-cell corrections*. Für Genaueres zu dieser Korrektur sei hier auf Ref. [10] verwiesen.

Abhängig vom Licht das sie anregt, werden Exzitonen in die gelbe, grüne, blaue und violette Serie eingeteilt. In dieser Arbeit werden Zustände aus der gelben und grünen



**Abbildung 2.7:** Schematische Darstellung der Energieniveaus der gelben (links) und grünen (rechts) Exzitonenserie in Kupferoxydul. Gekennzeichnet ist die Energie der Bandlücke  $E_g$ , sowie die Energiedifferenz  $\Delta$  zwischen dem Kontinuum der gelben und grünen Serie. Angepasst aus [10].

Serie betrachtet. In Abbildung 2.6 sind die Anregungen dieser Serien dargestellt. Abbildung 2.7 zeigt die Lage der Energieniveaus. Über den diskreten Zuständen der gelben und grünen Serie befindet sich das jeweilige Kontinuum. Da fast alle grünen Zustände im Energiebereich des gelben Kontinuums liegen, haben die grünen Zustände eine geringere Lebensdauer als die der gelben Serie.

Die Zustände der Exzitonenserie können analog zur Beschreibung der Elektronenzustände im Wasserstoffatom mit der Hauptquantenzahl  $n$  und der Drehimpulsquantenzahl  $l$  bezeichnet werden. Dabei ist  $n$  eine natürliche Zahl und es gilt  $l = 0, 1, \dots, n - 1$ .  $l$  gibt die Orbitale  $S, P, \dots$  an. So ergeben sich die bekannten Zustände  $1S, 2S, 2P, \dots$ .

In Kupferoxydul geht die sphärische Symmetrie im vereinfachten Modell des Wasserstoffatoms in eine kubische Symmetrie über. Dadurch werden Entartungen teilweise aufgehoben und es kommt zu einer energetischen Aufspaltung. Für diese neuen Zustände wird nach Ref. [20] die Bezeichnung mit den irreduziblen Darstellungen  $\Gamma_i^\pm$  eingeführt. Es besteht kein Zusammenhang zu den in Abschnitt 2.2 eingeführten Zerfallsraten  $\Gamma_i = 1/\tau_i$ . Das hochgestellte  $\pm$  gibt Auskunft über die Parität der Exzitonenzustände.

## 2.4 EIT in Kupferoxydul

Die Betrachtung des Drei-Level-Systems in Abschnitt 2.2 bezieht sich auf ein System in Atomen mit Elektronenübergängen. Für ein Drei-Level-System aus Exzitonenzuständen

in Kupferoxydul ergibt sich ein geänderter Hamiltonian  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_{\text{int}}$  [21]. Die Energie der Zustände ist durch

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_{12} |2\rangle \langle 2| + \hbar(\omega_{12} - \omega_{23}) |3\rangle \langle 3| \quad (2.45)$$

gegeben. Das negative Vorzeichen im Vergleich zu Gleichung (2.1) ergibt sich aufgrund der  $\Lambda$ -Konfiguration der in Kupferoxydul betrachteten Drei-Level-Systeme. Die Wechselwirkung lässt sich analog zu Gleichung (2.3) beschreiben. Erneut wird in eine rotierende Basis gewechselt und die Mastergleichung

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \frac{i}{\hbar} [\hat{\rho}, \mathcal{H}] - \{T, \hat{\rho}\} \quad (2.46)$$

mit den Näherungen  $\rho_{11} \simeq 1$  und  $\rho_{22} \simeq \rho_{33} \simeq 0$  (vgl. Abschnitt 2.2.5) gelöst. Durch die Modifikation der Von-Neumann-Gleichung mit dem phänomenologischen Operator  $T$  werden auch Zerfälle der Exzitonen durch beispielsweise Phononen oder Defekte berücksichtigt. Bei der Frequenz des Probelasers ergibt sich die Suszeptibilität zu

$$\chi(\Delta_p) = A \left[ \gamma_2 - i\Delta_p + \frac{\Omega_c^2/4}{\gamma_3 - i(\Delta_p - \Delta_c)} \right]^{-1}. \quad (2.47)$$

Der Koeffizient  $A$  hängt von Materialparametern ab und es wurden erneut die Definitionen  $\gamma_2 = \Gamma_2/2$ ,  $\gamma_3/2 = \Gamma_3$ ,  $\Delta_p = \omega_p - \omega_{12}$  und  $\Delta_c = \omega_c - \omega_{23}$  eingeführt. Dieser Ausdruck verhält sich analog zu Gleichung (2.40) und wird im Folgenden genutzt, um mögliche Übergänge zur Realisierung von EIT zu untersuchen.

Um geeignete Übergänge zu finden, müssen die Auswahlregeln beachtet werden. Beim Übergang zwischen zwei Exzitonzuständen ändert sich die Parität. Der Grundzustand des Kristalls und die  $S$ -Zustände haben positive Parität (+), die  $P$ -Zustände negative Parität (-). Aus dem Grundzustand sind also nur die  $P$ -Zustände anregbar. Es soll  $|1\rangle$  der Grundzustand sein. Aus der Bedingung, dass die Übergänge  $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$  und  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  erlaubt sind,  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  aber verboten ist, ergibt sich die Zuteilung der anderen Zustände.  $|2\rangle$  ist ein  $P$ - und  $|3\rangle$  ein  $S$ -Zustand.



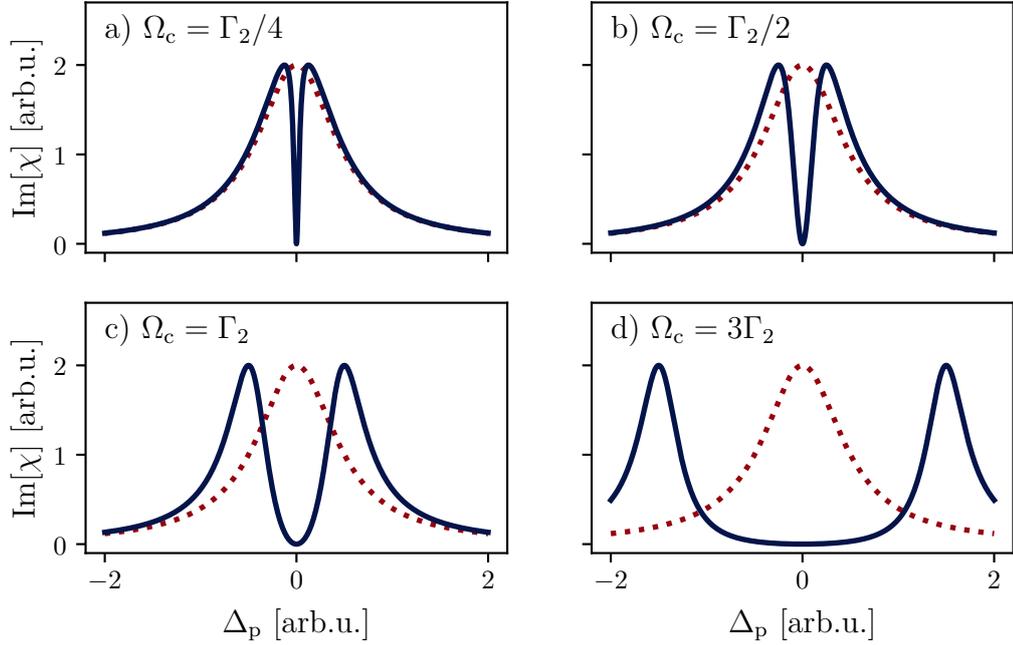
# 3 Parameterabhängigkeit des Absorptionsverlaufs

EIT beeinflusst den Verlauf der Absorption bei unterschiedlichen Verstimmungen  $\Delta_p$ . Die Form des dabei entstehenden EIT-Dips hängt von verschiedenen Parametern ab, die Einfluss auf Tiefe und Breite des Transparenzfensters nehmen. Allgemein ist das Verhältnis der unterschiedlichen Parameter ausschlaggebend für die Form des EIT-Verlaufs. In diesem Kapitel wird auf den Einfluss der einzelnen Parameter auf den Verlauf der Absorptionskurve eingegangen. Dabei wird zunächst die Verstimmung des Kopplungslasers  $\Delta_c = 0$  gesetzt und der Einfluss der Rabi-Frequenz  $\Omega_c$  sowie der Zerfallsraten  $\Gamma_2$  und  $\Gamma_3$  untersucht. Anschließend wird auf den Einfluss der Verstimmung  $\Delta_c$  eingegangen. Diese Betrachtungen sind sowohl für das Auftreten von EIT in Atomen als auch in Kupferoxydul gültig.

## 3.1 Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Omega_c$

Die Rabi-Frequenz  $\Omega_c$  beschreibt die Kopplungsstärke der Zustände  $|2\rangle$  und  $|3\rangle$ . Wie in Gleichung (2.14) beschrieben, trägt sie außerdem zur Energieaufspaltung der dressed states bei. Abbildung 3.1 verdeutlicht den Einfluss der Rabi-Frequenz auf die Breite des Transparenzfensters. Es ist der Imaginärteil der Suszeptibilität über die Verstimmung des Probelasers  $\Delta_p$  aufgetragen. Bei stabilem Zustand  $|3\rangle$  ( $\Gamma_3 = 0$ ) ist für einen perfekt justierten Laser ( $\Delta_p = 0$ ) die Absorption vollständig unterdrückt. Mit steigender Verstimmung steigt die Absorption symmetrisch an, erreicht bei  $\Delta_p \simeq \pm\Omega_c/2$  ihr Maximum und sinkt danach wieder. Je größer die Rabi-Frequenz, desto breiter ist das erzeugte Transparenzfenster.

Bei großen Rabi-Frequenzen kommt es zur sogenannten Autler-Townes Aufspaltung (auch als AC Stark-Effekt bezeichnet). Der Übergang zwischen EIT und AC Stark-Effekt ist fließend [22]. Das entstehende Transparenzfenster beruht dann auf der Aufspaltung der Energieniveaus und nicht mehr auf den quantenmechanischen Effekten.



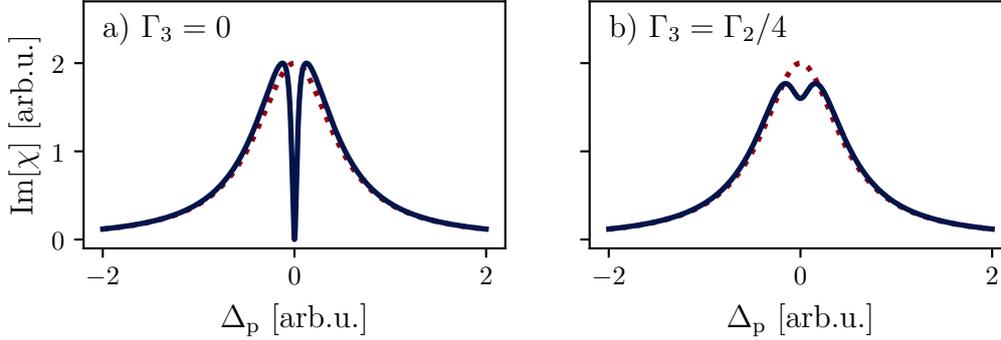
**Abbildung 3.1:** Imaginärteil der Suszeptibilität  $\text{Im}[\chi]$  als Funktion der Verstimmung  $\Delta_p$ . Die blaue (durchgezogene) Linie zeigt den EIT Verlauf für verschiedene Rabi-Frequenzen  $\Omega_c$ . Die rote (gestrichelte) Linie zeigt den Absorptionsverlauf ohne Kopplung ( $\Omega_c = 0$ ). Größere Rabi-Frequenzen  $\Omega_c$  führen zu breiteren Transparenzfenstern. In d) ist die Autler-Townes Aufspaltung erkennbar. Die Zerfallsraten sind auf  $\Gamma_2 = 1$  und  $\Gamma_3 = 0$  gesetzt.

Das erzeugte Transparenzfenster für geringe Rabi-Frequenzen (Abbildung 3.1 a) ist nur für sehr stabile Zustände  $|3\rangle$  erkennbar. Wie in Abbildung 3.2 dargestellt, können bereits kleine Zerfallsraten  $\Gamma_3$  die erzeugte Transparenz deutlich reduzieren, mehr dazu in Abschnitt 3.2.

Die Rabi-Frequenz hängt über

$$\Omega_c = \frac{\mu_{23} \cdot E_c}{\hbar} \quad (3.1)$$

mit dem Dipolmoment  $\mu_{23}$  und der Feldstärke des Kopplungslasers  $E_c$  zusammen. Durch Änderung der Laserfeldstärke kann so die Rabi-Frequenz angepasst werden.



**Abbildung 3.2:** Wie Abbildung 3.1 aber mit verschiedenen Zerfallsraten  $\Gamma_3$ . Für geringe Rabi-Frequenzen ( $\Omega_c = 1/2$ ) wird die Transparenz bereits bei geringen  $\Gamma_3$  stark gedämpft. Die Zerfallsrate  $\Gamma_2$  ist auf  $\Gamma_2 = 1$  gesetzt.

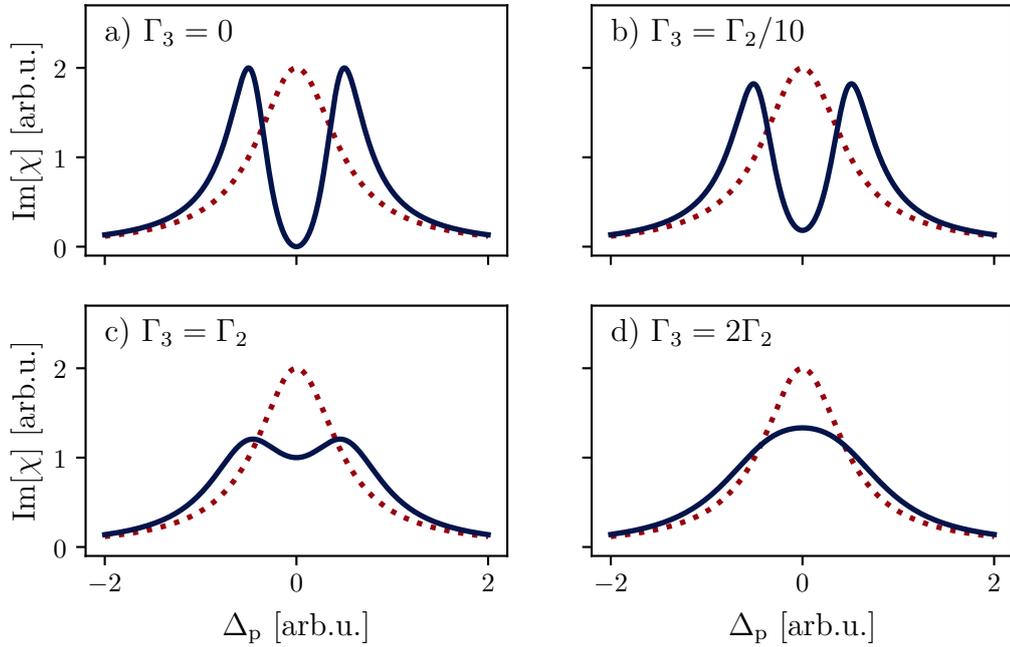
## 3.2 Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Gamma_3$

Die Lebensdauer  $\tau_3$  des Zustands  $|3\rangle$  hängt, wie in Abschnitt 2.2 eingeführt, invers mit der Zerfallsrate  $\Gamma_3 = 1/\tau_3$  zusammen. Sie beschreibt den Zerfall von  $|3\rangle$  und beeinflusst die maximal erreichbare Transparenz bei EIT. Der Einfluss verschiedener Zerfallsraten  $\Gamma_3$  auf die Suszeptibilität ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Perfekte Transparenz ist nur erreichbar, wenn der Zustand  $|3\rangle$  nicht zerfällt ( $\Gamma_3 = 0$ ). Bei einem Verhältnis von  $\Gamma_2/\Gamma_3 \simeq 10$  ist die Transparenz kaum reduziert. Mit steigender Zerfallsrate nimmt die Tiefe des EIT-Dips ab und die maximal erreichbare Transparenz sinkt. Die Breite des EIT-Fensters ändert sich dabei nicht. Erreichen die Zerfallsraten der Zustände  $|3\rangle$  und  $|2\rangle$  dieselbe Größenordnung ( $\Gamma_3 \simeq \Gamma_2$ ), ist der EIT-Dip stark reduziert und verschwindet ab einem Verhältnis von  $\Gamma_3/\Gamma_2 \simeq 3/2$  vollständig. Die Absorption bleibt weiterhin reduziert.

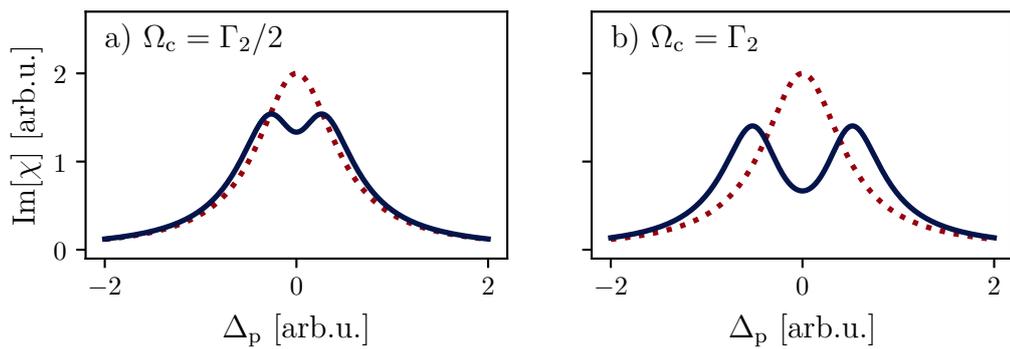
Bei endlicher Zerfallsrate ( $\Gamma_3 \neq 0$ ) führt eine Vergrößerung der Rabi-Frequenz neben der Verbreiterung des Transparenzfensters auch zu einer Erhöhung der maximalen Transparenz, dargestellt in Abbildung 3.4.

## 3.3 Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Gamma_2$

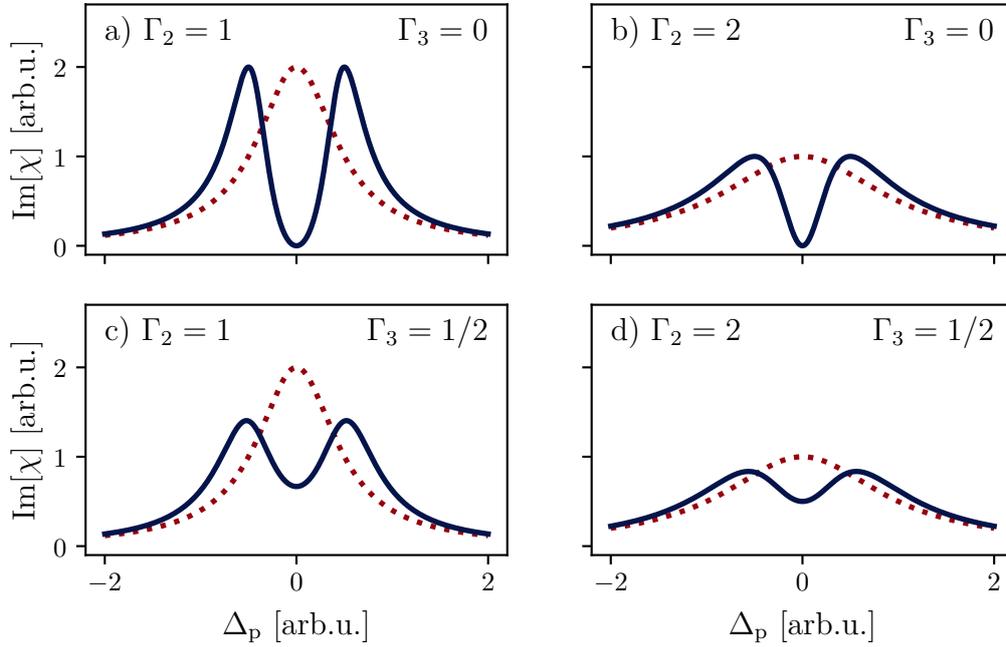
Die Zerfallsrate  $\Gamma_2 = 1/\tau_2$  ergibt sich aus der Lebensdauer  $\tau_2$  des Zustands  $|2\rangle$ . Sie verändert im Zwei-Level-System ( $\Omega_c = 0$ ) die Breite der Absorptionskurve. Auch im Drei-Level-System mit EIT wird die Absorptionskurve durch einen schnelleren Zerfall des Zustands  $|2\rangle$  verbreitert. Der Einfluss der Zerfallsrate  $\Gamma_2$  auf den Absorptionsverlauf ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Bei konstanter Zerfallsrate  $\Gamma_3$  und Rabi-Frequenz  $\Omega_c$  reduziert



**Abbildung 3.3:** Wie Abbildung 3.1 aber mit verschiedenen Zerfallsraten  $\Gamma_3$ . Höhere Zerfallsraten von Zustand  $|3\rangle$  reduzieren die maximal erreichbare Transparenz, die Breite des Transparenzfensters ändert sich nicht. Die Rabi-Frequenz ist  $\Omega_c = 1$  und die Zerfallsrate  $\Gamma_2 = 1$ .



**Abbildung 3.4:** Wie Abbildung 3.1 aber mit Zerfallsraten  $\Gamma_3 = \Gamma_2 = 1$ . Bei einer Erhöhung der Rabi-Frequenz wird der EIT-Dip breiter und die maximale Transparenz erhöht sich.

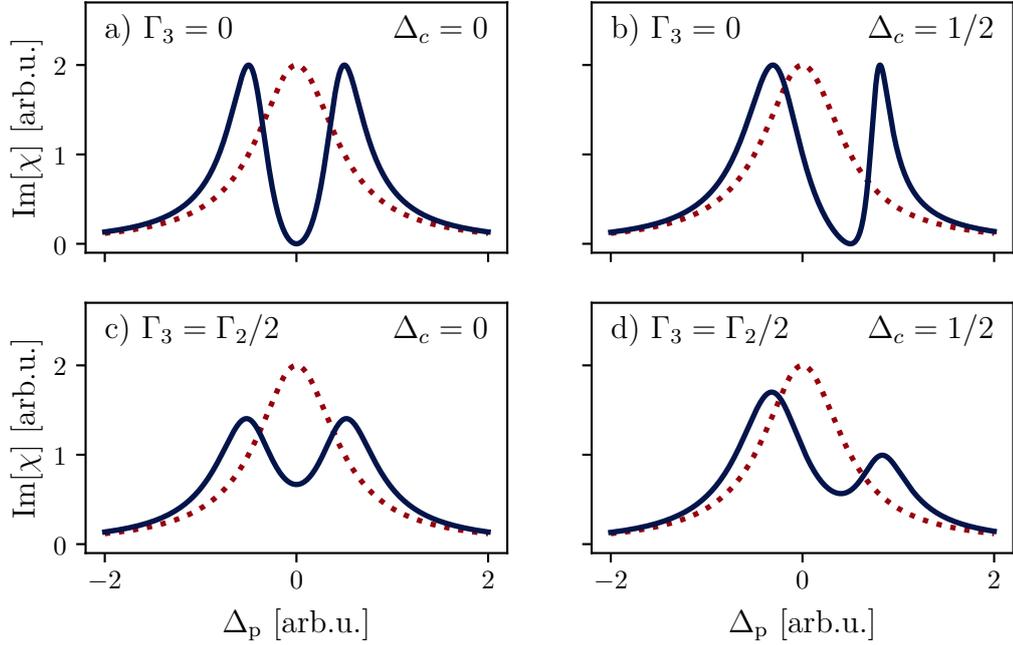


**Abbildung 3.5:** Wie Abbildung 3.1 aber mit verschiedenen Zerfallsraten  $\Gamma_2$  und  $\Gamma_3$ . Bei höheren Zerfallsraten von Zustand  $|2\rangle$  wird die Absorptionskurve flacher und die relative Reduktion der Transparenz verringert sich für  $\Gamma_3 \neq 0$ . Die Breite des Transparenzfensters ändert sich nicht und die Rabi-Frequenz ist  $\Omega_c = 1$ .

sich die relative Tiefe des EIT-Dips mit steigender Zerfallsrate  $\Gamma_2$  (Abbildung 3.5 c und d). Diese Reduktion ist auf das reduzierte Verhältnis  $\Omega_c/\Gamma_2$  zurückzuführen und kann dementsprechend durch Erhöhung der Laserfeldstärke ausgeglichen werden. Um ein möglichst gut sichtbares EIT-Fenster zu erzeugen, sollte die Zerfallsrate des Zustands  $|2\rangle$  im Bereich von  $\Gamma_3$  und  $\Omega_c$  liegen. Ist  $\Gamma_2$  kleiner, verringert sich die Transparenz aufgrund eines geringen Verhältnisses  $\Gamma_2/\Gamma_3$ , für große  $\Gamma_2$  entsprechend durch ein geringes Verhältnis  $\Omega_c/\Gamma_2$ .

### 3.4 Abhängigkeit der Suszeptibilität von $\Delta_c$

Bei Verstimmung des Kopplungslasers  $\Delta_c$  ändert sich die Symmetrie der Absorptionskurve. Bislang wurde von einem perfekt justierten Kopplungslaser ( $\Delta_c = 0$ ) ausgegangen. In



**Abbildung 3.6:** Wie Abbildung 3.1 aber mit verschiedenen Verstimmungen  $\Delta_c$ . Bei Verstimmung des Kopplungslasers verschwindet die Achsensymmetrie der Absorptionskurve. Die Rabi-Frequenz ist  $\Omega_c = 1$  und die Zerfallsrate  $\Gamma_2 = 1$ .

diesem Fall wird die Absorption bei  $\Delta_p = 0$  minimiert und der Verlauf ist achsensymmetrisch. Für einen verstimmtten Kopplungslaser ( $\Delta_c \neq 0$ ) verschiebt sich das Minimum der Absorption. Maximale Transparenz wird stets bei Erfüllung der Zwei-Photonen-Resonanz erreicht. In einem System in Leiterkonfiguration gilt  $\Delta_p + \Delta_c = 0$ , in  $\Lambda$ -Konfiguration  $\Delta_p - \Delta_c = 0$ . Maximale Transparenz wird entsprechend bei  $\Delta_p = -\Delta_c$  bzw.  $\Delta_p = \Delta_c$  erreicht. In Abbildung 3.6 ist der Einfluss verschiedener Verstimmungen auf den Verlauf der Absorption für ein System in  $\Lambda$ -Konfiguration dargestellt. Die Verstimmung sorgt für einen steileren Anstieg der Absorption auf der einen und einen flacheren Anstieg auf der anderen Seite des Minimums.

# 4 Geeignete Übergänge zur Realisierung von EIT in $\text{Cu}_2\text{O}$

In diesem Kapitel werden Zustände gesucht, die zur Realisierung von EIT in Kupferoxydul geeignet sind. Anschließend werden die benötigten Parameter der jeweiligen Zustände aufgelistet. Die hierzu notwendigen Rechnungen werden ebenfalls erläutert. Zunächst wird dabei auf Systeme mit Zuständen aus der gelben und grünen Serie eingegangen. Danach werden Szenarien betrachtet, bei denen alle Zustände Teil der gelben Serie sind.

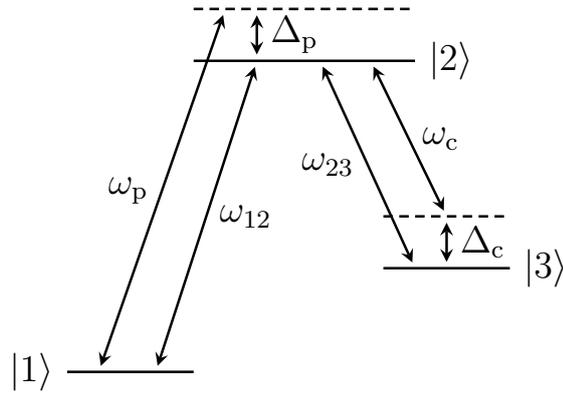
## 4.1 Interseries-Übergänge

Allgemein haben die Exzitonen der grünen Serie eine wesentlich geringere Lebensdauer als die Exzitonen der gelben Serie. Wie in Kapitel 3 beschrieben, sollte das Verhältnis der Zerfallsraten  $\Gamma_2/\Gamma_3$  möglichst groß sein. Die besten Voraussetzungen für die Realisierung von EIT in Kupferoxydul mit Interseries-Übergängen bietet daher ein System mit einem Zustand  $|2\rangle$  aus der grünen Serie und  $|3\rangle$  aus der gelben Serie. Wegen der relativen Lage der Eigenenergien der grünen und gelben Serie handelt es sich um Systeme in  $\Lambda$ -Konfiguration (dargestellt in Abbildung 4.1).

In einem  $\Lambda$ -System darf der Übergang zwischen dem Grundzustand  $|1\rangle$  und  $|3\rangle$  nicht direkt erlaubt sein. Einen geeigneten Zustand  $|3\rangle$  liefert der gelbe  $1S$ -Zustand, der nur über 2-Photonen-Resonanz erreichbar ist. Es sei hier angemerkt, dass stets vom gelben  $1S$ -*ortho*-Zustand gesprochen wird. Der gelbe  $1S$ -*para*-Zustand ist Spin-Flip verboten und deshalb nicht mit elektrischen Dipolübergängen erreichbar.

Der Zustand  $|2\rangle$  muss aus  $|1\rangle$  und  $|3\rangle$  erreichbar sein. Hierfür eignen sich die grünen  $P$ -Zustände. Sie sind sowohl aus dem Grundzustand als auch dem gelben  $1S$ -Zustand anregbar.

Die Möglichkeit, EIT in Kupferoxydul zu untersuchen, wird neben den in Kapitel 3 aufgeführten Parametern auch vom Übergang zwischen  $|1\rangle$  und  $|2\rangle$  beeinflusst. Da EIT die Absorption reduziert, sind nur solche Zustände von Interesse, die experimentell

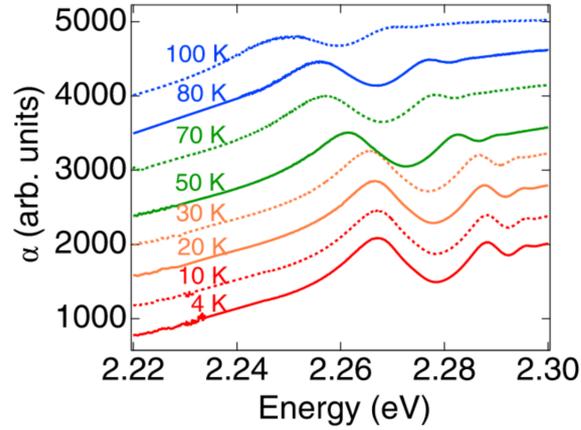


**Abbildung 4.1:** Das Drei-Level-System in  $\Lambda$ -Konfiguration zur Untersuchung von EIT in Kupferoxydul. Zustand  $|1\rangle$  ist der Grundzustand des Kristalls,  $|3\rangle$  der  $1S$ -Zustand aus der gelben Serie.  $|2\rangle$  ist entweder ein  $P$ -Zustand aus der grünen Serie (Abschnitte 4.1 und 5.1) oder der gelben Serie (Abschnitte 4.2 und 5.2).

gut sichtbar sind. In Abbildung 4.2 ist ein Spektrum der grünen Exzitonenserie in Kupferoxydul bei verschiedenen Temperaturen abgebildet. Es sind fast ausschließlich die Übergänge in die  $2P$ - und  $3P$ -Zustände sichtbar. Daher werden nur diese beiden Zustände für die Realisierung von EIT betrachtet.

In den Szenarien, die wir untersuchen konnten, gibt es jeweils drei verschiedene  $2P$ - und  $3P$ -Zustände, die sich in ihrer Symmetrie und Entartung unterscheiden. Die  $\Gamma_6^-$ - und  $\Gamma_7^-$ -Zustände sind vierfach entartet, die  $\Gamma_8^-$ -Zustände achtfach [10]. Es gibt zudem Unterschiede in den relativen Oszillatorstärken. Sie geben an, wie gut die jeweiligen Zustände aus dem Grundzustand des Kupferoxydulkristalls anregbar sind. Am besten anregbar und damit im Spektrum auch am besten sichtbar sind die grünen  $\Gamma_6^-$ -Zustände. Diese Zustände haben für die in Ref. [11] betrachteten Übergänge allerdings geringe Dipolmomente in die gelben  $S$ -Zustände. Die Zustände mit höheren Dipolmomenten der Übergänge in die gelben  $S$ -Zustände haben geringe relative Oszillatorstärken und sind im Spektrum entsprechend schlecht sichtbar. Im Folgenden werden die gut sichtbaren grünen  $\Gamma_6^-$ -Zustände betrachtet, da hier eine Reduktion der Absorption besser beobachtbar sein sollte. Aufgrund der geringen Dipolmomente beim Übergang zwischen  $|2\rangle$  und  $|3\rangle$  werden hohe benötigte Feldstärken des Kopplungslasers erwartet.

Die Zerfallsrate des gelben  $1S$ -Zustands wird als  $\Gamma_3 = 50 \text{ GHz}$  angenommen. Diese Zerfallsrate ergibt sich aus der in Ref. [24] ermittelten minimalen Lebensdauer  $\tau \simeq 2 \cdot 10^{-11} \text{ s}$ . Im Falle einer höheren tatsächlichen Lebensdauer würde sich die Zerfallsrate verringern und damit, wie in Abschnitt 3.2 beschrieben, die erreichbare Transparenz erhöhen.



**Abbildung 4.2:** Experimentelle Spektren der grünen Exzitonen bei verschiedenen Temperaturen. Es sind primär die Übergänge vom Grundzustand zu den grünen  $2P$ - und  $3P$ -Zuständen erkennbar. Angepasst aus [23].

Die Breite des grünen  $2P$ -Zustands beträgt nach Ref. [25]  $\Delta\nu_{1/2} = 73,5 \text{ cm}^{-1}$ . Für die Zerfallsrate ergibt sich damit  $\Gamma_2 = 2,14 \text{ THz}$ . Die Lebensdauer der Exzitonenzustände in Kupferoxydul skaliert approximativ mit  $n^3$ . Für die Zerfallsrate des grünen  $3P$ -Zustands folgt damit

$$\Gamma_{3P} \simeq \Gamma_{2P} \left(\frac{2}{3}\right)^3 = 632 \text{ GHz.} \quad (4.1)$$

Die verwendeten Zerfallsraten sind ebenfalls in Tabelle 4.1 aufgelistet.

Die Dipolmomente der betrachteten Übergänge wurden wie in Ref. [11] beschrieben berechnet. Es wird angenommen, dass der Kopplungslaser in  $z$ -Richtung polarisiert ist, der Probelaser senkrecht dazu. Die so ermittelten Matrixelemente  $M_{ij}$  sind zusammen mit den daraus errechneten Dipolmomenten  $\mu_{ij}$  in Tabelle 4.1 aufgelistet.  $M_{ij}$  und  $\mu_{ij}$  hängen mit den Eigenenergien  $E_i$  und  $E_j$  über

$$\mu_{ij} = \frac{\hbar e M_{ij}}{m_0 (E_i - E_j)} \quad (4.2)$$

zusammen. Eine Herleitung dieses Zusammenhangs findet sich in Anhang A. Die Energien der betrachteten grünen  $P\text{-}\Gamma_6^-$ -Zustände sind [26]

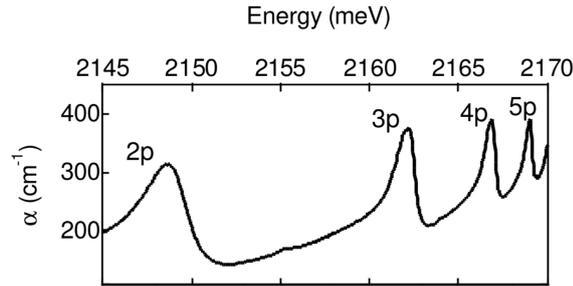
$$\begin{aligned} E_{2P} &= 2,268\,87 \text{ eV,} \\ E_{3P} &= 2,287\,65 \text{ eV,} \end{aligned}$$

die des gelben  $1S\text{-}\Gamma_5^+$ -Zustands ist [27]

$$E_{1S} = 2,0330 \text{ eV.}$$

**Tabelle 4.1:** Zerfallsraten  $\Gamma_{nP}$  der grünen Exzitonenzustände nach [25] sowie Matrixelemente  $M_{ij}$  und Übergangsdipolmomente  $\mu_{ij}$  der Übergänge zwischen gelber und grüner Serie.

Zustand	$\Gamma_{iP}$ [THz]	Übergang	$M_{1S,nP}$ [ $10^{-3} \text{ h/a}_g$ ]	$\mu_{1S,nP}$ [ $10^{-2} \text{ ea}_B$ ]
$2P$	2,14	$1S \rightarrow 2P$	0,4776	6,209
$3P$	0,634	$1S \rightarrow 3P$	0,3929	5,216



**Abbildung 4.3:** Experimentelles Spektrum der gelben Exzitonen. Die Zustände  $2P$  bis  $5P$  sind gut erkennbar. Angepasst aus [28].

## 4.2 Intraserie-Übergänge

Wie bereits bei der Betrachtung von Systemen mit Interseries-Übergängen, werden Systeme in  $\Lambda$ -Konfiguration betrachtet (dargestellt in Abbildung 4.1). Es wird erneut der gelbe  $1S$ -ortho-Zustand als  $|3\rangle$  gewählt,  $|2\rangle$  ist ein gelber  $P$ -Zustand. Wie in der grünen Serie haben die gelben  $P$ -Zustände negative Parität und erlauben daher Dipolübergänge in den Grundzustand und den gelben  $1S$ - $\Gamma_5^+$ -Zustand mit positiver Parität. Die ersten gelben  $nP$ - $\Gamma_8^-$ -Zustände ( $n = 2, 3, 4, 5$ ) sind im Spektrum (dargestellt in Abbildung 4.3) alle gut sichtbar.

Die Zerfallsrate des gelben  $1S$ -Zustands wird erneut als  $\Gamma_3 = 50 \text{ GHz}$  angenommen. Auch hier würde eine höhere tatsächliche Lebensdauer die Transparenz verbessern beziehungsweise die benötigte Feldstärke  $E_c$  reduzieren.

Die Zerfallsraten der gelben  $P$ -Zustände sind ebenfalls experimentell bestimmt und Ref. [29] entnommen. Sie sind zusammen mit den Dipolmomenten der Übergänge aus Ref. [30] in Tabelle 4.2 aufgelistet. Die Dipolmomente sind deutlich größer, sodass geringere benötigte Feldstärken  $E_c$  des Kopplungslasers zu erwarten sind.

Um zu überprüfen, ob sich Trends der ersten  $P$ -Zustände auch für höhere  $P$ -Zustände fortsetzen, wird das Auftreten von EIT beim Übergang vom Grund- zum  $\Gamma_8^-$ - $8P$ -Zustand

**Tabelle 4.2:** Zerfallsraten  $\Gamma_{nP}$  der Zustände  $nP$  sowie Dipolmomente  $\mu_{ij}$  der Übergänge von  $1S$  zu  $nP$ .

Zustand	$\Gamma_{nP}$ [meV]	$\Gamma_{iP}$ [THz]	Übergang	$\mu_{1S,nP}$ [ea <sub>B</sub> ]
$2P$	1,518	2,402	$1S \rightarrow 2P$	1,29
$3P$	0,511	0,776	$1S \rightarrow 3P$	0,52
$4P$	0,237	0,360	$1S \rightarrow 4P$	0,30
$5P$	0,142	0,216	$1S \rightarrow 5P$	0,21
$8P$		0,141	$1S \rightarrow 5P$	0,10

untersucht. Das Dipolmoment des Übergangs stammt aus Ref. [30], die Zerfallsrate aus Ref. [31].



# 5 Ergebnisse und Diskussion

Im Folgenden soll betrachtet werden, wie sich durch EIT in Kupferoxydul die Absorption ändert. Um zu verdeutlichen, wie stark sich die Absorption verringert, wird der Imaginärteil der Suszeptibilität  $\text{Im}[\chi]$  jeweils als Anteil der maximalen Absorption bei  $\Delta_p = 0$  des Systems ohne Kopplung ( $\Omega_c = 0$ ) dargestellt. Zudem wird die Reduktion der Absorption beim Auftreten von EIT als

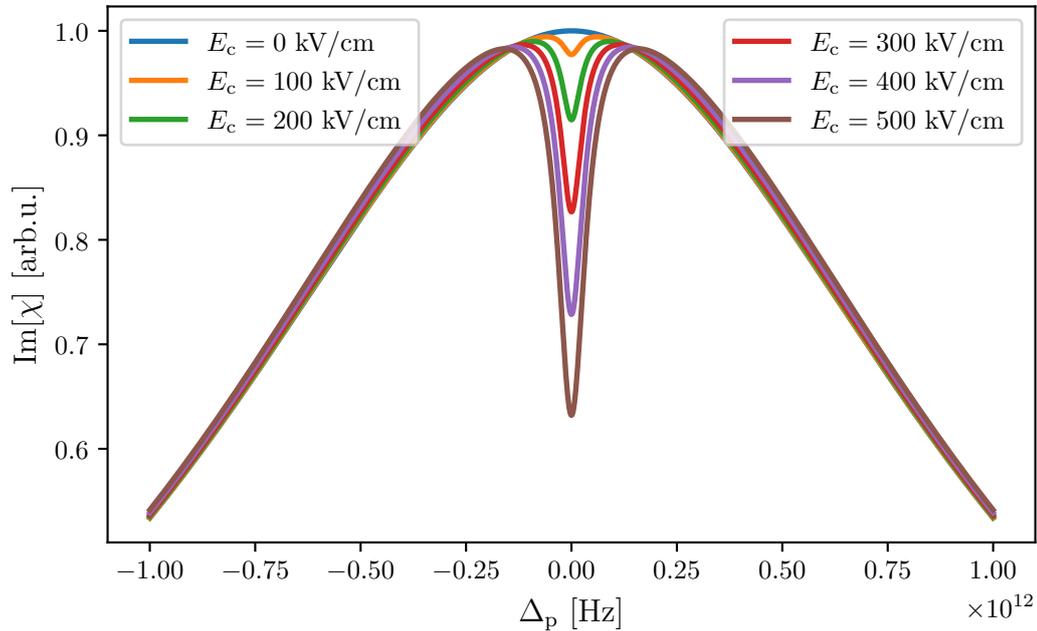
$$\beta = 1 - \frac{\text{Im}[\chi(\Omega_c \neq 0, \Delta_p = 0)]}{\text{Im}[\chi(\Omega_c = 0, \Delta_p = 0)]} \quad (5.1)$$

eingeführt.

## 5.1 EIT mit Interseries-Übergängen zwischen Zuständen der gelben und grünen Serie

Zunächst wird ein Schema mit gelbem  $1S$ - und grünem  $2P$ -Zustand betrachtet, dargestellt in Abbildung 4.1. Um in diesem System EIT zu erzeugen, werden sehr große Laserfeldstärken des Kopplungslasers benötigt. Erst ab einer Feldstärke von  $E_c \simeq 100 \text{ kV/cm}$  wird ein leichter EIT-Dip erkennbar. Dieser erhöht sich mit steigender Feldstärke des Lasers. In Abbildung 5.1 ist der Absorptionsverlauf für verschiedene Feldstärken  $E_c$  dargestellt. Es wird von einem Kopplungslaser ohne Verstimmung ausgegangen. Die maximale Reduktion tritt daher bei  $\Delta_p = 0$  auf. Sie ist zusammen für einige Feldstärken in Tabelle 5.1 aufgelistet.

Für ein System mit gelbem  $1S$ - und grünem  $3P$ -Zustand ist der Absorptionsverlauf für verschiedene Feldstärken  $E_c$  des Kopplungslasers in Abbildung 5.2 dargestellt. Allgemein ist in diesem System eine höhere Transparenz bei geringeren Feldstärken realisierbar. Die maximale Reduktion bei  $\Delta_p = 0$  ist in Tabelle 5.1 aufgelistet. Ein Vergleich zeigt, dass gleiche Feldstärken  $E_c$  in einer größeren Reduktion der Absorption resultieren. Dies ist darauf zurückzuführen, dass der grüne  $3P$ -Zustand stabiler als der  $2P$ -Zustand ist. Damit ist die Zerfallsrate  $\Gamma_{3P}$  geringer, was wie in Abschnitt 3.3 beschrieben zu einer

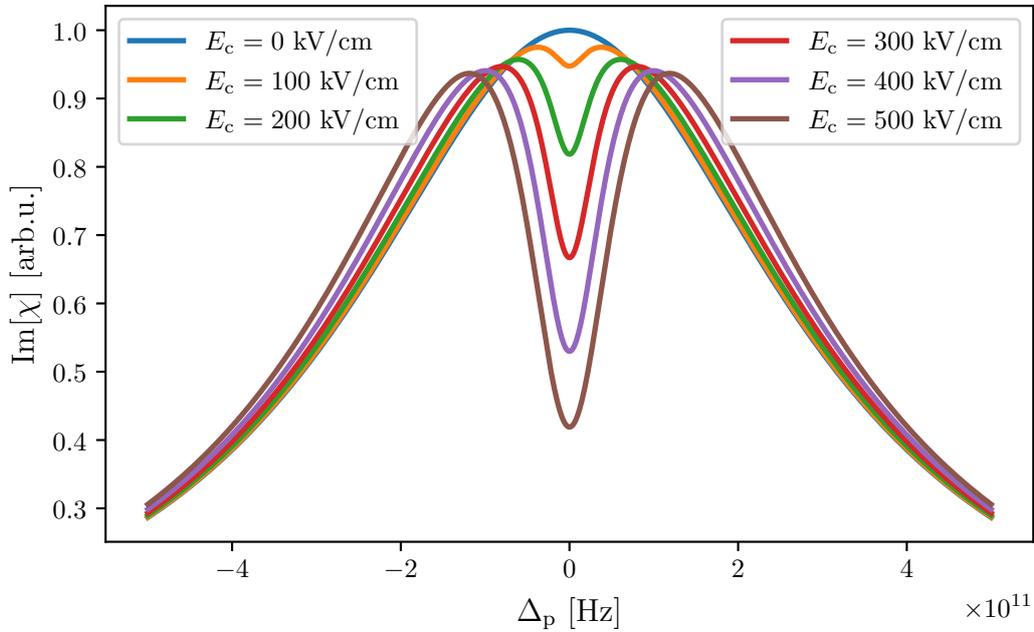


**Abbildung 5.1:** Imaginärteil der Suszeptibilität  $\text{Im}[\chi]$  als Funktion der Verstimmung  $\Delta_p$  für ausgewählte Feldstärken  $E_c$  des Kopplungslasers beim Übergang vom Grund- zum grünen  $2P$ -Zustand. Die Zerfallsraten sind  $\Gamma_2 = 2,14$  THz und  $\Gamma_3 = 50$  GHz und die maximale Reduktion (bei  $\Delta_p = 0$ ) der Absorption ist in Tabelle 5.1 aufgelistet.

höheren relativen Absorption führt. Das verringerte Dipolmoment wirkt dem nur leicht entgegen.

Dieser Trend könnte sich bei einem System aus gelbem  $1S$ - und grünem  $4P$ -Zustand fortsetzen. Wie in Abbildung 4.2 sichtbar, ist dieser Zustand im Spektrum jedoch kaum erkennbar. Die experimentelle Untersuchung eines Systems aus gelbem  $1S$ - und grünem  $4P$ -Zustand ist daher stark erschwert und eine theoretische Betrachtung nicht zielführend.

Es wäre auch ein System mit gelbem  $2S$ -Zustand denkbar. Dieser hat jedoch eine geringere Lebensdauer als der gelbe  $1S$ -Zustand. Wie in Kapitel 3 beschrieben, sollte das die Realisierbarkeit von EIT erschweren. Damit scheint ein System mit gelbem  $1S$ - und grünem  $3P$ -Zustand am besten geeignet, um EIT mit Interseries-Übergängen zu realisieren.



**Abbildung 5.2:** Wie Abbildung 5.1 aber mit Übergängen vom Grund- zum grünen  $3P$ -Zustand. Die Zerfallsraten sind  $\Gamma_2 = 634$  GHz und  $\Gamma_3 = 50$  GHz.

**Tabelle 5.1:** Reduktion der Absorption  $\beta_i$  in Prozent beim Übergang zum Zustand  $i$  der grünen Serie bei Resonanz  $\Delta_p = 0$  für unterschiedliche Feldstärken  $E_c$  des Kopplungslasers.

$E_c$ [kV/cm]	80	100	150	200	250	300	400	500
$\beta_{2P}$ [%]	1,47	2,28	4,98	8,52	12,70	17,33	27,14	36,79
$\beta_{3P}$ [%]	3,42	5,26	11,10	18,16	25,74	33,30	47,02	58,10

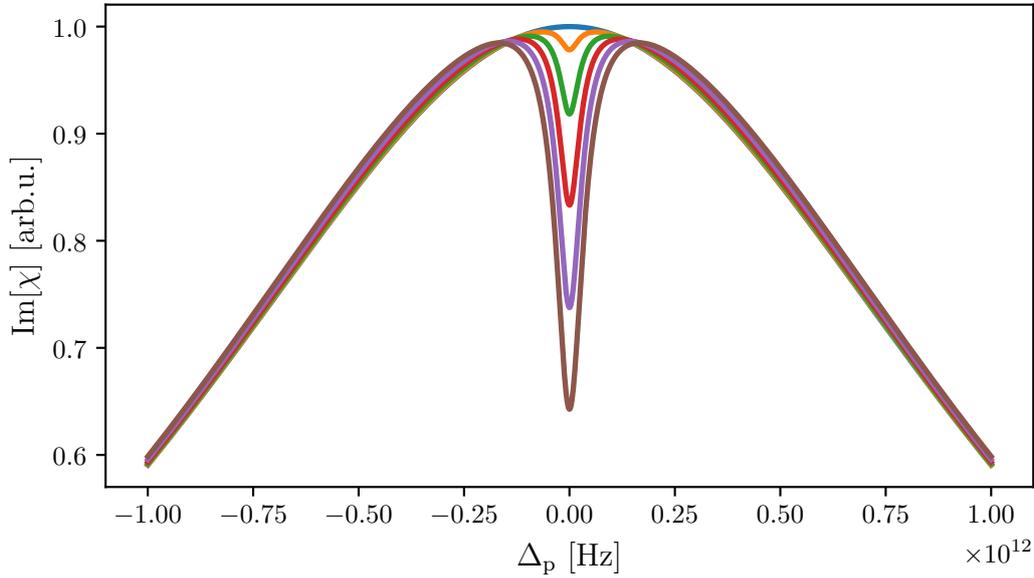
**Tabelle 5.2:** Reduktion der Absorption  $\beta_i$  in Prozent beim Übergang zum Zustand  $i$  der gelben Serie bei Resonanz  $\Delta_p = 0$  für unterschiedliche Feldstärken  $E_c$  des Kopplungslasers.

$E_c$ [kV/cm]	5	10	15	20	25	30	35	40	45	50
$\beta_{2P}$ [%]	2,18	8,17	16,68	26,24	35,73	44,46	52,15	58,73	64,30	68,98
$\beta_{3P}$ [%]	1,11	4,29	9,17	15,22	21,90	28,76	35,47	41,79	47,60	52,87
$\beta_{4P}$ [%]	0,77	3,03	6,56	11,10	16,33	21,94	27,67	33,31	38,73	43,84
$\beta_{5P}$ [%]	0,67	2,63	5,72	9,74	14,43	19,54	24,84	30,15	35,33	40,28
$\beta_{8P}$ [%]	0,23	0,91	2,02	3,54	5,42	7,63	10,10	12,80	15,66	18,65

## 5.2 EIT mit Intraserie-Übergängen zwischen Zuständen der gelben Serie

Für das System aus gelbem  $1S$ - und  $2P$ -Zustand sind die Absorptionsverläufe bei verschiedenen Feldstärken  $E_c$  in Abbildung 5.3 dargestellt. Es wird eine Feldstärke von  $E_c \simeq 5$  kV/cm benötigt, um einen leicht sichtbaren EIT-Dip zu erzeugen. Die Absorption bei  $\Delta_p = 0$  wird dann um  $\beta = 2,18\%$  reduziert. Die maximal erreichbare Transparenz  $\beta$  ist für einige Feldstärken  $E_c$  in Tabelle 5.2 aufgelistet.

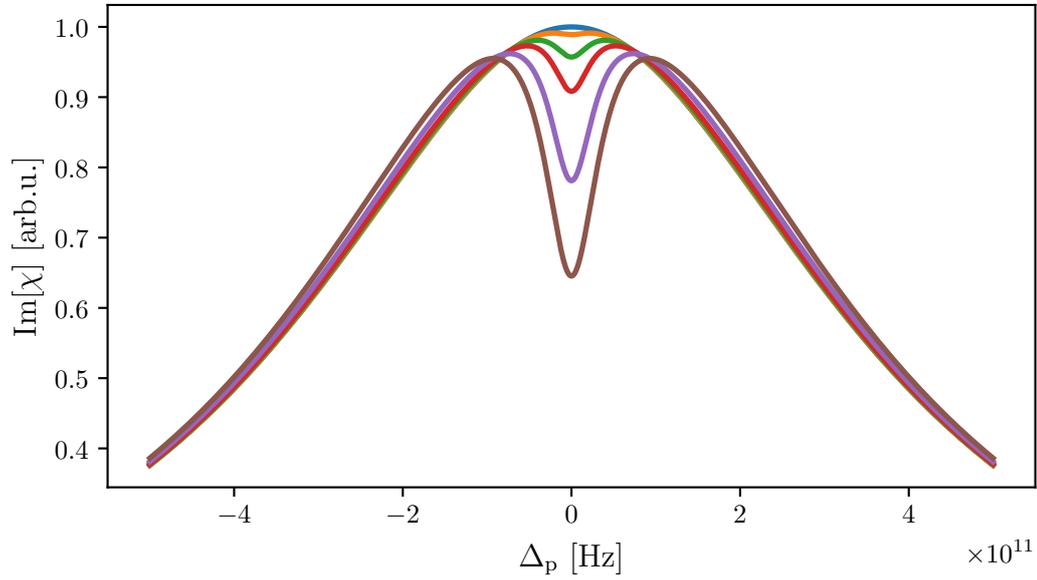
Wie auch in Abschnitt 5.1 werden die Absorptionskurven beim Übergang vom Grundzustand auf Zustände mit höherem  $n$  schmaler. Da die Dipolmomente jedoch stärker sinken, werden für diese Übergänge höhere Feldstärken  $E_c$  benötigt. Die Absorptionsverläufe bei unterschiedlichen  $E_c$  sind für die Übergänge vom Grund- zum gelben  $3P$ -,  $4P$  und  $5P$ -Zustand in den Abbildungen 5.4 bis 5.6 dargestellt. Es ist gut erkennbar, wie Feldstärken die anfangs einen gut erkennbaren Dip in der Absorptionskurve erzeugen bei höheren  $n$  nur ein Abflachen verursachen. Auch die erreichte Transparenz sinkt. So reduziert sich die Absorption bei einer Feldstärke von  $E_c = 10$  kV/cm beim Übergang zum  $2P$ -Zustand um bis zu  $\beta_{2P} = 8,17\%$  und ein klarer Dip ist erkennbar. Dieser ist beim Übergang zum  $3P$ -Zustand bereits deutlich geringer und verschwindet beim  $4P$ -Zustand fast vollständig. Die Absorptionskurve verläuft in einem schmalen Bereich um  $\Delta_p = 0$  fast flach. Die Absorption verringert sich um  $\beta_{3P} = 4,29\%$  und  $\beta_{4P} = 3,03\%$ . Beim Übergang zum  $5P$ -Zustand ist der Absorptionsdip schließlich vollständig verschwunden. Die Absorption wird weiter reduziert, allerdings um maximal  $\beta_{5P} = 2,63\%$ . Zur besseren Vergleichbarkeit sind die maximalen Reduktionen bei  $\Delta_p = 0$  alle gemeinsam in Tabelle 5.2 aufgelistet. Es ist ersichtlich, dass der Übergang zu höheren Zuständen bei gleichen Feldstärken zu geringeren Reduktionen führt beziehungsweise höhere Feldstärken benötigt werden, um dieselbe Reduktion der Absorption zu induzieren.



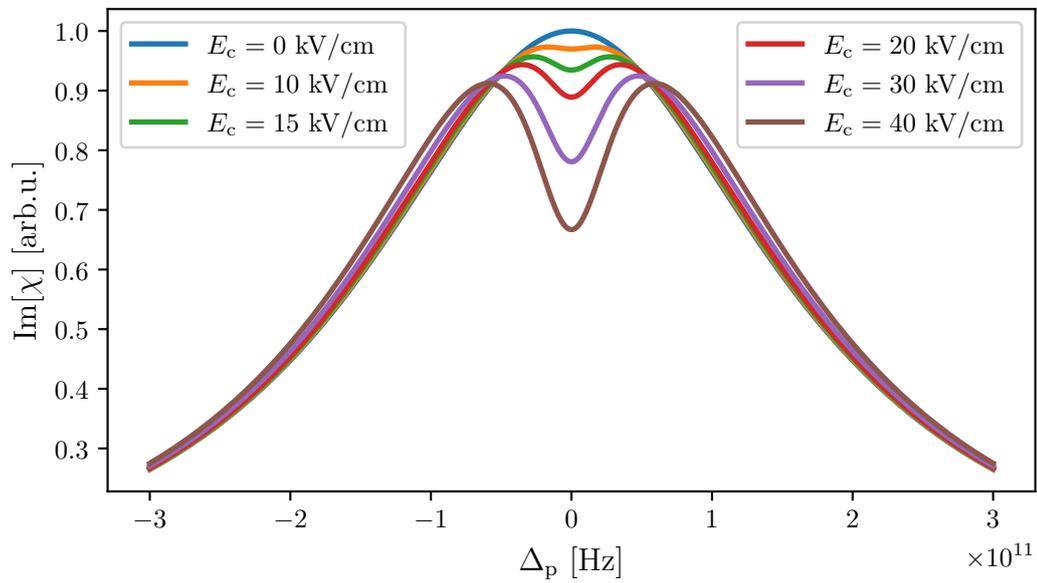
**Abbildung 5.3:** Imaginärteil der Suszeptibilität  $\text{Im}[\chi]$  als Funktion der Verstimmung  $\Delta_p$  für ausgewählte Feldstärken  $E_c$  des Kopplungslasers beim Übergang vom Grund- zum gelben  $2P$ -Zustand. Die Zerfallsraten sind  $\Gamma_2 = 2,402$  THz und  $\Gamma_3 = 50$  GHz und die maximale Reduktion (bei  $\Delta_p = 0$ ) der Absorption ist in Tabelle 5.2 aufgelistet.

Um zu prüfen, ob sich dieser Trend auch bei höheren Zuständen fortsetzt, wird der Übergang vom Grund- zum gelben  $8P$ -Zustand betrachtet. Die Zerfallsrate und das Dipolmoment des Übergangs sind in Tabelle 4.2 aufgelistet. Der Absorptionsverlauf ist in Abbildung 5.7 dargestellt. Die Transparenz ist bei gleichen Feldstärken im Vergleich zum System mit dem gelben  $5P$ -Zustand weiter reduziert. Bei einer Feldstärke von  $E_c = 10$  kV/cm ist die maximale Reduktion mit  $\beta_{8P} = 0,91$  % deutlich geringer als  $\beta_{5P} = 2,63$  %. Entsprechend werden zum Erreichen eines Dips im Absorptionsverlauf höhere Feldstärken benötigt.

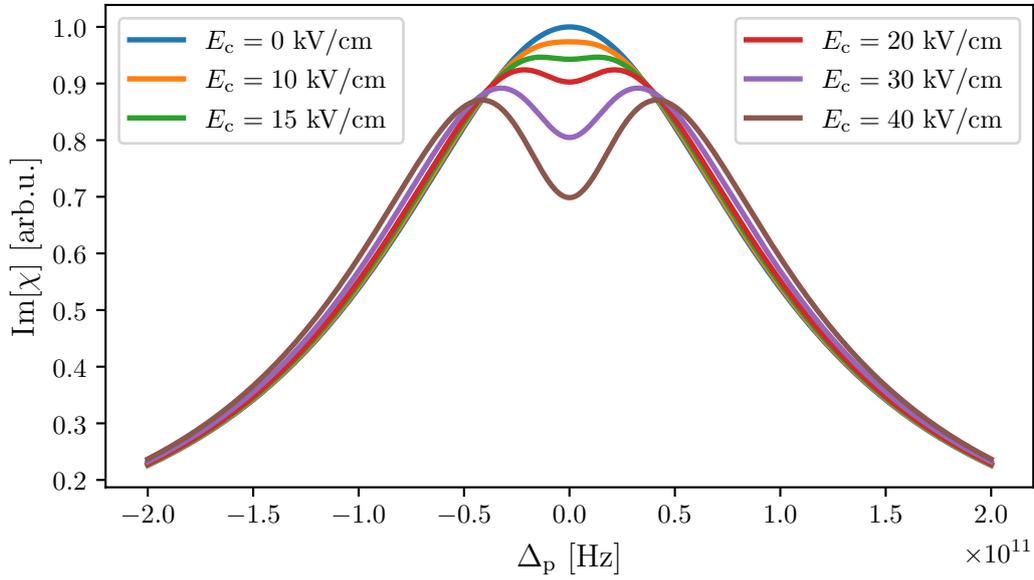
Auch wenn weitere Zustände experimentell zugänglich sind, wird auf diese nicht weiter eingegangen. Da eine experimentelle Untersuchung von EIT in Kupferoxydul durch die höheren benötigten Feldstärken zunehmend erschwert würde, scheint eine solche Betrachtung nicht zielführend. Das Schema, in dem EIT mit Intraserie-Übergängen am besten erreichbar sein sollte, ist das System mit Grund- sowie gelbem  $2P$ - und  $1S$ -Zustand.



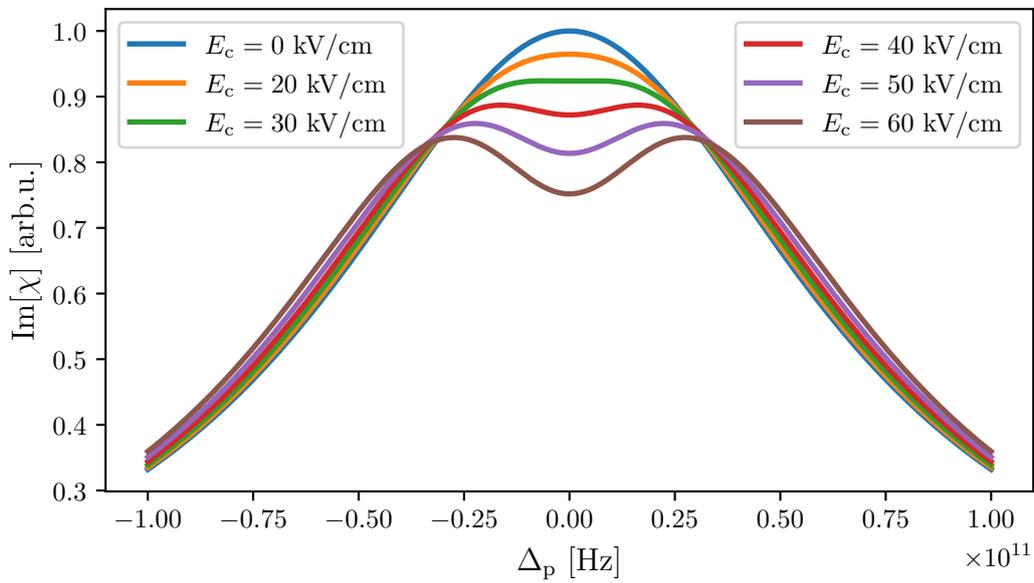
**Abbildung 5.4:** Wie Abbildung 5.3 aber mit Übergang vom Grund- zum gelben  $3P$ -Zustand. Die Zerfallsraten sind  $\Gamma_2 = 776$  GHz und  $\Gamma_3 = 50$  GHz.



**Abbildung 5.5:** Wie Abbildung 5.3 aber mit Übergang vom Grund- zum gelben  $4P$ -Zustand. Die Zerfallsraten sind  $\Gamma_2 = 360$  GHz und  $\Gamma_3 = 50$  GHz.



**Abbildung 5.6:** Wie Abbildung 5.3 aber mit Übergang vom Grund- zum gelben  $5P$ -Zustand. Die Zerfallsraten sind  $\Gamma_2 = 216$  GHz und  $\Gamma_3 = 50$  GHz.



**Abbildung 5.7:** Wie Abbildung 5.3 aber mit Übergang vom Grund- zum gelben  $8P$ -Zustand. Die Zerfallsraten sind  $\Gamma_2 = 141$  GHz und  $\Gamma_3 = 50$  GHz.

### 5.3 Diskussion der Ergebnisse

Bei der Untersuchung von EIT in Atomen können Feldstärken  $E_c \sim 10 \text{ V/cm}$  genutzt werden (siehe Abbildung 2.4). Um in Kupferoxydul EIT zu realisieren werden deutlich höhere Feldstärken benötigt. Bei Intraserie-Übergängen beträgt die Größenordnung  $E_c \sim 10 \text{ kV/cm}$ , bei Interserie-Übergängen  $E_c \sim 100 \text{ kV/cm}$ . Die Verwendung hoher Laserfeldstärken kann zu Problemen führen. Die aus hohen Feldstärken resultierenden hohen Laserintensitäten führen zu einem hohen Energietransport, was den Kristall aufheizen kann. Außerdem kann bei der Anregung von Exzitonen Plasma entstehen. Dabei wird durch die Energie des Lasers die Bindung zwischen Elektron und Loch aufgehoben und sie können sich als freie Ladungsträger durch den Kristall bewegen. Allgemein sollten sich daher die Übergänge, die möglichst geringe Feldstärken voraussetzen, experimentell am besten untersuchen lassen. Für Intraserie-Übergänge wäre dies das System aus den gelben  $1S$ - und  $2P$ -Zuständen sowie dem Grundzustand des Kristalls. Bei der Betrachtung von Interserie-Übergängen scheint das System mit gelbem  $1S$ -, grünem  $3P$ -Zustand und dem Grundzustand am besten geeignet. Dieses System setzt jedoch immer noch deutlich größere Feldstärken voraus als die betrachteten Systeme für Intraserie-Übergänge, sodass letztere experimentell leichter untersuchbar sein sollten.

Experimentell wurden bereits sehr hohe Feldstärken in Kupferoxydul genutzt. Bei Untersuchungen des optischen Stark Effekts in Kupferoxydul kamen Feldstärken  $E \simeq 5 \text{ kV/cm}$  zum Einsatz [32], bei der Betrachtung von Paraexzitonen auch Felder bis zu  $E \simeq 500 \text{ kV/cm}$  [33]. Die für die Untersuchung von EIT in Kupferoxydul benötigten Feldstärken wurden also experimentell bereits verwendet. Eine experimentelle Realisierung von EIT in den hier vorgestellten Intraserie-Schemen scheint daher prinzipiell machbar und auch in den Interserie-Schemen denkbar.

Es sei hier zudem angemerkt, dass die hohen benötigten Feldstärken der Kopplungslaser die in Kapitel 2 getroffene Annahme  $\Omega_p \ll \Omega_c$  leicht erfüllbar machen, indem für den Probelaser eine entsprechend geringe Feldstärke verwendet wird.

## 6 Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war es, einen Überblick über Drei-Level-Systeme in Kupferoxydul zu gewinnen, die es ermöglichen EIT experimentell zu untersuchen. Dabei wurde nach Übergängen gesucht, die sowohl im experimentellen Spektrum gut sichtbar sind als auch möglichst geringe Feldstärken zur Erzeugung von EIT voraussetzen. Aufgrund der Paritätsänderung bei Exzitonübergängen wurden Systeme in  $\Lambda$ -Konfiguration gewählt. Diese bestehen aus dem Grundzustand des Kristalls sowie grünen oder gelben  $P$ -Zuständen und dem gelben  $1S$ -Zustand.

Die Schemen mit den grünen  $2P$ - oder  $3P$ -Zuständen setzen für die Realisierung von EIT sehr hohe Feldstärken ( $E_c \sim 100 \text{ kV/cm}$ ) voraus. Grund dafür sind insbesondere die geringen Dipolmomente zwischen dem gelben  $1S$ -Zustand und den experimentell gut sichtbaren  $2P$ - oder  $3P$ -Zuständen. Obwohl diese Feldstärken bereits zur Untersuchung von Exzitonen in Kupferoxydul genutzt wurden [33], ist fraglich, ob sich EIT in diesen Systemen experimentell zeigen lässt. Das System mit dem gelben  $1S$ - und grünen  $3P$ -Zustand bietet hierfür die besten Chancen, da die Transparenz im Vergleich zum System mit gelbem  $1S$ - und grünem  $2P$ -Zustand erhöht ist. Ein Überblick über die maximal erzielte Reduktion der Absorption ist in Tabelle 5.1 gegeben.

Die Schemen mit gelben  $P$ -Zuständen weisen allgemein höhere Dipolmomente der Übergänge auf. Entsprechend werden geringere Feldstärken der Größenordnung  $E_c \sim 10 \text{ kV/cm}$  benötigt. Das sollte die experimentelle Realisierung von EIT mit Intraserie-Übergängen gegenüber Interserie-Übergängen erleichtern. Insbesondere das System mit gelbem  $1S$ - und  $2P$ -Zustand sollte die besten Möglichkeiten bieten, EIT in Kupferoxydul zu untersuchen. Die maximal erreichbaren Reduktionen der Absorptionen sind abhängig von der Feldstärke  $E_c$  in Tabelle 5.2 aufgelistet. Die benötigten Feldstärken sind zwar nach wie vor hoch, experimentell aber vermutlich realisierbarer.

Probleme, die dem Experiment im Weg stehen könnten, wären zum Beispiel die Entstehung von Plasma beim Anregen der Elektronen. Ein solcher Einfluss müsste experimentell untersucht werden, um die Frage nach der Möglichkeit der Realisierung von EIT in Kupferoxydul zu beantworten.



# A Umrechnung der Dipolmomente

In Ref. [11] wird für die betrachteten Übergänge von  $|i\rangle$  zu  $|j\rangle$  das Matrixelement

$$M'_{ij} = \langle i | \hat{\pi} | j \rangle \quad (\text{A.1})$$

mit dem Operator

$$\hat{\pi} = \frac{im_0}{\hbar} [\mathcal{H}, \hat{x}] \quad (\text{A.2})$$

berechnet. Für die Ermittlung der Rabi-Frequenzen müssen diese in das Übergangsdipolmoment

$$d_{ij} = e \langle i | \hat{x} | j \rangle \quad (\text{A.3})$$

umgerechnet werden. In [11] sind jeweils Real- und Imaginärteil der Quadrate  $M_{ij}^{\prime 2} \equiv M'_{ij} M'_{ji}$  aufgelistet. Mit Gleichung (A.1) ergibt sich

$$\begin{aligned} M_{ij}^{\prime 2} &= -\frac{m_0^2}{\hbar^2} \langle i | [\mathcal{H}, \hat{x}] | j \rangle \langle j | [\mathcal{H}, \hat{x}] | i \rangle \\ &= -\frac{m_0^2}{\hbar^2} \langle i | (\mathcal{H}\hat{x} - \hat{x}\mathcal{H}) | j \rangle \langle j | (\mathcal{H}\hat{x} - \hat{x}\mathcal{H}) | i \rangle \\ &= -\frac{m_0^2}{\hbar^2} (\langle i | \mathcal{H}\hat{x} | j \rangle - \langle i | \hat{x}\mathcal{H} | j \rangle) (\langle j | \mathcal{H}\hat{x} | i \rangle - \langle j | \hat{x}\mathcal{H} | i \rangle) \\ &= -\frac{m_0^2}{\hbar^2} (E_i - E_j) \langle i | \hat{x} | j \rangle (E_j - E_i) \langle j | \hat{x} | i \rangle \\ &= \frac{m_0^2}{\hbar^2 e^2} (E_i - E_j)^2 d_{ij}^2, \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

wobei  $d_{ij}^2 \equiv d_{ij} d_{ji}$  eingeführt wurde. Diese Gleichung lässt sich in Real- und Imaginärteil trennen. Für den Realteil des Dipolmoments  $\mu_{ij} = \text{Re}[d_{ij}]$  ergibt sich

$$\mu_{ij} = \frac{\hbar e M_{ij}}{m_0 (E_i - E_j)}. \quad (\text{A.5})$$

Dabei ist  $M_{ij} \equiv \sqrt{\text{Re}[M_{ij}^{\prime 2}]}$  mit  $\text{Re}[M_{ij}^{\prime 2}]$  dem Realteil von  $M_{ij}^{\prime 2}$ . Für die Umrechnung werden folglich auch die Energieeigenwerte der Zustände benötigt.



# Literatur

- [1] K.-J. Boller, A. Imamoglu und S. E. Harris. „Observation of electromagnetically induced transparency“. In: *Phys. Rev. Lett.* 66 (20 Mai 1991), S. 2593–2596. DOI: [10.1103/PhysRevLett.66.2593](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.66.2593).
- [2] R. Abel, Ashok Mohapatra, Mark Bason, J. Pritchard, Kevin Weatherill, Ulrich Krohn und Charles Adams. „Laser frequency stabilization to excited state transitions using electromagnetically induced transparency in a cascade system“. In: *Applied Physics Letters* 94 (März 2009). DOI: [10.1063/1.3086305](https://doi.org/10.1063/1.3086305).
- [3] Michael Fleischhauer, Atac Imamoglu und Jonathan P. Marangos. „Electromagnetically induced transparency: Optics in coherent media“. In: *Rev. Mod. Phys.* 77 (2 Juli 2005), S. 633–673. DOI: [10.1103/RevModPhys.77.633](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.77.633).
- [4] Thomas Stolz, Hendrik Hegels, Maximilian Winter, Bianca Röhr, Ya-Fen Hsiao, Lukas Husel, Gerhard Rempe und Stephan Dürr. „Quantum-Logic Gate between Two Optical Photons with an Average Efficiency above 40%“. In: *Phys. Rev. X* 12 (2 Mai 2022), S. 021035. DOI: [10.1103/PhysRevX.12.021035](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.12.021035).
- [5] D. Budker, D. F. Kimball, S. M. Rochester und V. V. Yashchuk. „Nonlinear Magneto-optics and Reduced Group Velocity of Light in Atomic Vapor with Slow Ground State Relaxation“. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (9 Aug. 1999), S. 1767–1770. DOI: [10.1103/PhysRevLett.83.1767](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.83.1767).
- [6] Gregory H. Wannier. „The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals“. In: *Phys. Rev.* 52 (3 Aug. 1937), S. 191–197. DOI: [10.1103/PhysRev.52.191](https://doi.org/10.1103/PhysRev.52.191).
- [7] Masakazu Hayashi und Kiichiro Katsuki. „Absorption Spectrum of Cuprous Oxide“. In: *Journal of the Physical Society of Japan* 5.5 (1950), 380B–381. DOI: [10.1143/JPSJ.5.380B](https://doi.org/10.1143/JPSJ.5.380B).
- [8] Tomasz Kazimierczuk, Dietmar Fröhlich, Stefan Scheel, Heinrich Stolz und Manfred Bayer. „Giant Rydberg excitons in the copper oxide Cu<sub>2</sub>O“. In: *Nature* 514.7522 (2014), S. 343–347. DOI: [10.1038/nature13832](https://doi.org/10.1038/nature13832).
- [9] Frank Schweiner. „Theory of excitons in cuprous oxide“. Diss. Universität Stuttgart, 2017. URL: <http://dx.doi.org/10.18419/opus-9483>.

- [10] Patric Rommel. „Theory of yellow and green excitons in cuprous oxide with emphasis on correction terms and external fields“. Diss. Universität Stuttgart, 2022. URL: <http://dx.doi.org/10.18419/opus-12357>.
- [11] Patric Rommel, Jörg Main, Sjard Ole Krüger und Stefan Scheel. „Interseries dipole transitions from yellow to green excitons in cuprous oxide“. In: *Phys. Rev. B* 104 (8 Aug. 2021), S. 085204. DOI: [10.1103/PhysRevB.104.085204](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.104.085204).
- [12] Julio Gea-Banacloche, Yong-qing Li, Shao-zheng Jin und Min Xiao. „Electromagnetically induced transparency in ladder-type inhomogeneously broadened media: Theory and experiment“. In: *Phys. Rev. A* 51 (1 Jan. 1995), S. 576–584. DOI: [10.1103/PhysRevA.51.576](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.51.576).
- [13] Harald Kübler. „Kohärente Rydberg-Spektroskopie in einer Rubidium Mikrozelle“. Diss. Universität Stuttgart, 2012. URL: <https://elib.uni-stuttgart.de/handle/11682/5113>.
- [14] Jonathan David Pritchard. „Cooperative Optical Non-linearity in a blockaded Rydberg Ensemble“. Diss. Durham University, 2011. URL: <http://etheses.dur.ac.uk/782/>.
- [15] Franz Schwabl. *Quantenmechanik (QM I): Eine Einführung*. Springer-Verlag, 2007. URL: <https://link.springer.com/book/10.1007/978-3-540-73675-2>.
- [16] Robert W. Boyd. „Chapter 1 - The Nonlinear Optical Susceptibility“. In: *Nonlinear Optics (Third Edition)*. Hrsg. von Robert W. Boyd. Third Edition. Burlington: Academic Press, 2008, S. 1–67. ISBN: 978-0-12-369470-6. DOI: [10.1016/B978-0-12-369470-6.00001-0](https://doi.org/10.1016/B978-0-12-369470-6.00001-0).
- [17] Chantal Voss. „EIT-Spektroskopie von Rydbergzuständen an Rubidium“. Bachelor thesis. Johannes Gutenberg-Universität Mainz, 2015.
- [18] Jan Ertl, Michael Marquardt, Moritz Schumacher, Patric Rommel, Jörg Main und Manfred Bayer. „Signatures of Exciton Orbits in Quantum Mechanical Recurrence Spectra of  $\text{Cu}_2\text{O}$ “. In: *Phys. Rev. Lett.* 129 (6 Aug. 2022), S. 067401. DOI: [10.1103/PhysRevLett.129.067401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.129.067401).
- [19] Michel Mom. „Klassische Bahnen und Poincaré-Schnitte in Kupferoxydul mittels adiabatischer Näherung für die Dynamik von Exzitonen“. Bachelor thesis. Universität Stuttgart, 2019. URL: <http://dx.doi.org/10.18419/opus-10584>.
- [20] George F. Koster. *Properties of the Thirty-Two Point Groups*. 1969.
- [21] M. Artoni, G. C. La Rocca und F. Bassani. „Electromagnetic-induced transparency of Wannier-Mott excitons“. In: *Europhysics Letters* 49.4 (Feb. 2000), S. 445. DOI: [10.1209/epl/i2000-00169-0](https://doi.org/10.1209/epl/i2000-00169-0).

- 
- [22] Petr M. Anisimov, Jonathan P. Dowling und Barry C. Sanders. „Objectively Discerning Autler-Townes Splitting from Electromagnetically Induced Transparency“. In: *Phys. Rev. Lett.* 107 (16 Okt. 2011), S. 163604. DOI: [10.1103/PhysRevLett.107.163604](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.163604).
- [23] Dongyeon Daniel Kang, Aaron Gross, HeeBong Yang, Yusuke Morita, Kyung Soo Choi, Kosuke Yoshioka und Na Young Kim. „Temperature study of Rydberg exciton optical properties in Cu<sub>2</sub>O“. In: *Phys. Rev. B* 103 (20 Mai 2021), S. 205203. DOI: [10.1103/PhysRevB.103.205203](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.205203).
- [24] R.M. Habiger und A. Compaan. „Photoluminescence at high exciton densities in cuprous oxide“. In: *Solid State Communications* 18.11 (1976), S. 1531–1534. ISSN: 0038-1098. DOI: [10.1016/0038-1098\(76\)90386-0](https://doi.org/10.1016/0038-1098(76)90386-0).
- [25] Grun, J.B., Sieskind, M. und Nikitine, S. „Détermination de l’intensité d’oscillateur des raies de la série verte de Cu<sub>2</sub>O aux basses températures“. In: *J. Phys. Radium* 22.3 (1961), S. 176–178. DOI: [10.1051/jphysrad:01961002203017600](https://doi.org/10.1051/jphysrad:01961002203017600).
- [26] Patric Rommel, Patrik Zielinski und Jörg Main. „Green exciton series in cuprous oxide“. In: *Phys. Rev. B* 101 (7 Feb. 2020), S. 075208. DOI: [10.1103/PhysRevB.101.075208](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.075208).
- [27] Frank Schweiner, Jörg Main, Günter Wunner und Christoph Uihlein. „Even exciton series in Cu<sub>2</sub>O“. In: *Phys. Rev. B* 95 (19 Mai 2017), S. 195201. DOI: [10.1103/PhysRevB.95.195201](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.195201).
- [28] Takeshi Tayagaki, André Mysyrowicz und M. Kuwata-Gonokami. „The Yellow Excitonic Series of Cu<sub>2</sub>O Revisited by Lyman Spectroscopy“. In: *Journal of the Physical Society of Japan* 74 (Feb. 2005). DOI: [10.1143/JPSJ.74.1423](https://doi.org/10.1143/JPSJ.74.1423).
- [29] Frank Schweiner, Jörg Main und Günter Wunner. „Linewidths in excitonic absorption spectra of cuprous oxide“. In: *Phys. Rev. B* 93 (8 Feb. 2016), S. 085203. DOI: [10.1103/PhysRevB.93.085203](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.085203).
- [30] D. Ziemkiewicz und S. Zielińska-Raczyńska. „Solid-state pulsed microwave emitter based on Rydberg excitons“. In: *Opt. Express* 27.12 (Juni 2019), S. 16983–16994. DOI: [10.1364/OE.27.016983](https://doi.org/10.1364/OE.27.016983).
- [31] Liam A. P. Gallagher, Joshua P. Rogers, Jon D. Pritchett, Rajan A. Mistry, Danielle Pizzey, Charles S. Adams, Matthew P. A. Jones, Peter Grünwald, Valentin Walther, Chris Hodges, Wolfgang Langbein und Stephen A. Lynch. „Microwave-optical coupling via Rydberg excitons in cuprous oxide“. In: *Phys. Rev. Res.* 4 (1 Jan. 2022), S. 013031. DOI: [10.1103/PhysRevResearch.4.013031](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.4.013031).
- [32] D. Fröhlich, A. Nöthe und K. Reimann. „Observation of the Resonant Optical Stark Effect in a Semiconductor“. In: *Phys. Rev. Lett.* 55 (12 Sep. 1985), S. 1335–1337. DOI: [10.1103/PhysRevLett.55.1335](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.1335).

- [33] Silvan Leinß, Tobias Kampfrath, Konrad von Volkmann, Martin Wolf, Johannes T. Steiner, Mackillo Kira, Stephan W. Koch, Alfred Leitenstorfer und Rupert Huber. „Terahertz Coherent Control of Optically Dark Paraexcitons in  $\text{Cu}_2\text{O}$ “. In: *Physical Review Letters* 101 (2008). Article Number: 246401. DOI: [10.1103/PhysRevLett.101.246401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.246401).

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich gerne bei allen bedanken, die mir beim Erstellen dieser Arbeit geholfen haben. Ein besonderer Dank geht dabei an Jörg Main und Patric Rommel für die sehr gute Betreuung. Zudem möchte ich mich bei Julian Heckötter und Marc Aßmann aus Dortmund für die Informationen bezüglich Literatur und nutzbaren Laserfeldstärken bedanken. Ich bedanke mich außerdem bei Johannes Reiff und Frau Bund für die gute Organisation sowie bei allen Mitarbeitern am 1. Institut für Theoretische Physik der Universität Stuttgart für die tolle Arbeitsatmosphäre und die netten Gespräche.



## **Erklärung**

Ich versichere,

- dass ich diese Bachelorarbeit selbstständig verfasst habe,
- dass ich keine anderen als die angegebenen Quellen benutzt und alle wörtlich oder sinngemäß aus anderen Werken übernommenen Aussagen als solche gekennzeichnet habe,
- dass die eingereichte Arbeit weder vollständig noch in wesentlichen Teilen Gegenstand eines anderen Prüfungsverfahrens gewesen ist,
- und dass das elektronische Exemplar mit den anderen Exemplaren übereinstimmt.

Stuttgart, den 6. April 2023

*Julian Zeitler*